



**NOTA PRELIMINAR SÔBRE PROPRIEDADES E ESTRUTURAS DE DISPERSÕES  $U_3O_8$  — AL**

*RICHARD M. BIDWELL, HELITON M. HAYDT, CLAUER TRENCH DE FREITAS e THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS*

**Publicação IEA N.º 80**  
Dezembro — 1964

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA**  
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)  
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"  
SÃO PAULO — BRASIL

NOTA PRELIMINAR SÔBRE PROPRIEDADES E  
ESTRUTURAS DE DISPERSÕES  $U_3O_8$  - AL

por

Richard M. Bidwell

Heliton M. Haydt

Clauer Trench de Freitas

Tharcisio D. de Souza Santos

DIVISÃO DE METALURGIA NUCLEAR

Instituto de Energia Atômica

São Paulo - Brasil

Publicação IEA nº 80

Dezembro 1964

---

Separata do ABM - Boletim da Associação Brasileira de  
Metais - nº 84 - vol. 20

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof. Marcello Damy de Souza Santos

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof. Luiz Antonio da Gama e Silva

Instituto de Energia Atômica

Diretor: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IEA

Prof. José Moura Gonçalves

Prof. Francisco João Humberto Maffei

Prof. Rui Ribeiro Franco

Prof. Theodoreto H.I. de Arruda Souto

} pela USP

} pela CNEN

Divisões Didático-Científicas:

Div. de Física Nuclear: Prof. Marcello D.S. Santos

Div. de Física de Reatores: Prof. Paulo Saraiva de Toledo

Div. de Engenharia Nuclear: Prof. Luiz Cintra do Prado

Div. de Radioquímica: Prof. Fausto Walter de Lima

Div. de Radiobiologia: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Div. de Metalurgia Nuclear: Prof. Tharcisio D.Souza Santos

Div. de Engenharia Química: Prof. Pawel Krumholz

## RESUMEN

Los estudios experimentales descritos en esta contribución visaron la obtención de datos para el proyecto de instalación destinada a la fabricación de los elementos combustibles para el reactor "Argonauta", totalmente construido en el país para la Comisión Nacional de Energía Nuclear y que está siendo instalado en el Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro, GB.

Los autores describen los trabajos desarrollados relativos a la producción de dispersiones de polvo de  $U_3O_8$  natural y de aluminio, de diversas granulometrias, y a las estructuras micrográficas obtenidas en los núcleos transformados mecánicamente y con dimensiones de la sección transversal próximas a las previstas para aquellos elementos combustibles. Los resultados obtenidos indicaron distribución bastante homogénea y perfecta continuidad física entre el núcleo, constituido por la dispersión, y el material de revestimiento, aleación de aluminio 2 S.

## SOMMAIRE

Les études préliminaires ici décrites nous ont mené à l'obtention de résultats pour le projet d'installation destiné à la fabrication des éléments combustibles pour le réacteur "Argonauta", entièrement construit dans ce pays par la Comissão Nacional de Energia Nuclear et qui est en train d'être installé à l'Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro, Guanabara.

Les auteurs étudient la production de dispersiones de poudre de  $U_3O_8$  naturel et d'aluminium de différentes granulomé

tries aussi bien que les structures micro graphiques obtenues dans les noyaux transformés mécaniquement et ayant une section transversale de dimensions très proches de celles prévues pour les éléments combustibles.

Les résultats obtenus montrent une distribution assez homogène et une parfaite continuité physique entre le noyau constitué par la dispersion et le matériel de revêtement, une liaison d'aluminium 25.

#### ABSTRACT

The experimental studies described in this paper were carried out in order to obtain the elements for the project of installation appropriate to the fabrication of the fuel elements for the Argonaut reactor, totally built in this country for the Comissão Nacional de Energia Nuclear which reactor has being installed at the Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro, Guanabara.

The authors describe the work done related to the production of natural  $U_3O_8$  and aluminum powder dispersions of different grain sizes and to the micrographic structures obtained in the cores mechanically worked and with the dimensions of the transversal section near the ones desired for these fuel elements. The obtained results showed a homogeneous distribution and a perfect physical continuity between the core containing the dispersion and the cladding material, a 2 S aluminum alloy.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE METAIS

NOTA PRELIMINAR SÓBRE PROPRIEDADES E  
ESTRUTURAS DE DISPERSÕES  $U_3O_8$ -AL

*por*

RICHARD M. BIDWELL  
HELINTON M. HAYDT  
CLAUER TRENCH DE FREITAS  
THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS



Separata do A B M  
BOLETIM DA ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE METAIS  
N.º 84 — Vol. 20

1964  
SÃO PAULO — BRASIL

# NOTA PRELIMINAR SÔBRE PROPRIEDADES E ESTRUTURAS DE DISPERSÕES $U_3O_8$ -AL <sup>(1)</sup>

RICHARD M. BIDWELL <sup>(2)</sup>

HELINTON M. HAYDT <sup>(3)</sup>

CLAUER TRENCH DE FREITAS <sup>(3)</sup>

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS <sup>(4)</sup>

## RESUMO

*Os estudos experimentais descritos nesta contribuição visaram a obtenção dos dados para o projeto de instalação destinada à fabricação dos elementos combustíveis para o reator "Argonauta", totalmente construído no país para a Comissão Nacional de Energia Nuclear e que está sendo instalado no Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro, Gb.*

*Descrevem os autores os trabalhos desenvolvidos relativos à produção de dispersões de pó de  $U_3O_8$ , natural e de alumínio, de diversas granulometrias, e às estruturas micrográficas obtidas nos núcleos transformados mecânicamente e com dimensões na secção transversal próximas das previstas para aqueles elementos combustíveis. Os resultados obtidos indicaram distribuição bastante homogênea e perfeita continuidade física entre o núcleo, constituído pela dispersão, e o material de revestimento, liga de alumínio 2S.*

- (1) Contribuição técnica n.º 533. Apresentada ao XVIII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais, Belo Horizonte, MG., julho de 1963.
- (2) Membro ABM; Consultor da Agência Internacional de Energia Atômica junto à Comissão Nacional de Energia Nuclear; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo. Do corpo técnico do "Los Alamos Scientific Laboratory", Los Alamos, N.M., Estados Unidos da America do Norte.
- (3) Membro ABM; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo.
- (4) Membro ABM; do Instituto de Pesquisas Tecnológicas, presentemente com funções de Chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo.

## 1. INTRODUÇÃO

O reator de pesquisas heterogêneo "Argonauta", desenvolvido no "Argonne National Laboratory", Argonne, Illinois, Estados Unidos da América do Norte, emprega elementos combustíveis constituídos por conjuntos de placas paralelas, formadas por núcleo de dispersão  $U_3O_8$ -Al e revestidos por liga de alumínio, geralmente 1100 ou M-388. Outros tipos de reatores de pesquisa empregam elementos combustíveis análogos quanto à sua geometria. O Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro, Gb, tem quase pronto reator desse tipo, totalmente construído no país, o qual empregará elementos combustíveis a serem fabricados pela Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica, de São Paulo.

Convém recordar que a importância do emprêgo de compostos cerâmicos de urânio, bem como de outros elementos férteis ou fisséis, é devido principalmente aos seguintes fatores: 1) estabilidade em temperaturas elevadas; 2) grande resistência à ação dos meios líquidos ou gasosos que possam atingir o núcleo do elemento combustível; e 3) bom comportamento sob radiação. Para contrabalançar as deficiências físicas e mecânicas habituais nos materiais cerâmicos, foram desenvolvidas as misturas por dispersão, nas quais o composto fissil ou fértil é disperso em metal, que constitui a fase contínua. Por isso, em metalurgia nuclear tem sido dedicada particular atenção aos "cermets", principalmente nos casos em que o óxido de urânio é disperso em alumínio, ou zircônio, ou aço inoxidável, para constituir o núcleo de elementos combustíveis de reatores.

Nesta contribuição, estudam os autores os característicos principais de "cermets" constituídos de proporções variáveis de  $U_3O_8$  e alumínio, bem como as estruturas desses "cermets" após transformação mecânica do conjunto, de forma a constituir uma peça delgada de seção retangular, como exigida para aquele tipo de reator.

Os estudos experimentais descritos foram realizados para a obtenção dos dados para o projeto de fabricação daqueles elementos combustíveis, presentemente em andamento na Divisão de Metalurgia Nuclear.

## 2. ESTUDO DE ALGUMAS VARIÁVEIS SOBRE OS CARACTERÍSTICOS DOS "CERMETS"

Convém lembrar preliminarmente que os estudos realizados por Waugh <sup>(1, 2)</sup> demonstraram a superioridade do comportamento

de  $U_3O_8$  sobre o do  $UO_2$  quando em dispersão com alumínio em núcleos de combustíveis "Argonauta". Por essa razão, em todos os estudos experimentais adiante descritos, os autores utilizaram sempre o óxido de urânio na forma de  $U_3O_8$ , por êles produzido por calcinação do di-uranato de amônio processado pela Divisão de Radioquímica do Instituto de Energia Atômica.

Nas experiências realizadas somente foi utilizado o óxido natural, isto é, com a concentração de isótopo U-235 encontrada na natureza e cuja granulometria era sensivelmente igual à do pó de  $U_3O_8$  a 20% de enriquecimento em U-235 que será utilizado na fabricação dos elementos combustíveis. O pó de alumínio utilizado era a fração — 100 mesh, obtida por classificação de pó especialmente importado da firma "L'Aluminium Français" para o fim indicado.

Tendo em vista que as densidades e as dimensões finais dos "cermets" para o reator "Argonauta" devem variar dentro de limites muito estreitos, principalmente quando se utiliza o método de montagem em moldura ("picture frame"), tornou-se necessário desenvolver um controle dimensional rigoroso. O outro processo utilizado nos estudos experimentais foi o de co-lingotagem ("cast cladding").

As variáveis estudadas foram: 1) relação  $U_3O_8/Al$ ; 2) pressão de compactação; 3) geometria dos corpos compactados; 4) proporção de lubrificante na carga; e 5) condições de pre-sinterização.

Estudaram-se as condições de compactação de cargas constituídas por misturas de 60%  $U_3O_8$  e 40% Al, 50% de cada e 40%  $U_3O_8$  e 60% Al, bem como de cargas constituídas exclusivamente por  $U_3O_8$  ou por Al. As pressões de compactação variaram de 0,2 a 5 t/cm<sup>2</sup>. Constataram os autores que as densidades dos corpos compactados produzidos a partir dessas cargas eram praticamente independentes das dimensões e da forma das matrizes empregadas, as quais forneceram peças cilíndricas de 10 mm de diâmetro e paralelepípedicas de 60 mm × 10 mm e altura variável, ou de 64 mm × 32 mm e também de altura variável. Constatou-se que a adição de estearato de zinco, até 1% em peso, não alterava sensivelmente a densidade no estado compactado, facilitando contudo e de maneira acentuada a operação de compactação e permitindo a obtenção de peças perfeitas, sem trincas mesmo depois de efetuado o tratamento de pre-sinterização. A pre-sinterização, realizada sempre sob atmosfera de argônio, em forno contínuo, e à temperatura de 600°C, visou não só facilitar a deformabilidade ulterior do núcleo como eliminar o estearato de zinco e a umidade adsorvida, o que causaria má contiguidade fi-

sica entre o revestimento e o núcleo no processo de transformação mecânica posterior.

A fig. 1 reproduz os valores obtidos da densidade no estado compactado em função da pressão de compactação, para as diversas proporções de  $U_3O_8$  e de Al utilizadas. No gráfico logarítmico, os valores da densidade são funções lineares da pressão de compactação, obedecendo à lei

$$\log d_c = \log k + 0,141 \log p$$

onde  $d_c$  é a densidade no estado compactado,  $k$  uma constante característica da mistura e, em particular, da composição utilizada, e  $p$  a pressão de compactação, em  $t/cm^2$ .

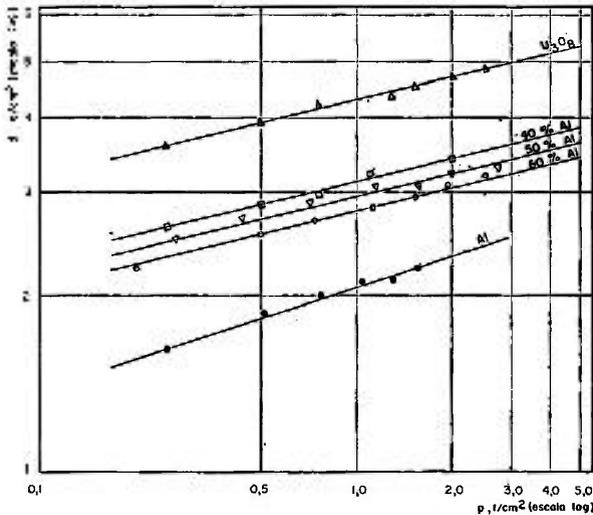


fig. 1 — Valores experimentais da densidade no estado compactado em função da pressão de compactação de peças prismáticas de  $U_3O_8$ , de alumínio e de misturas  $U_3O_8$ -Al.

As flutuações de densidade das peças obtidas nas matrizes mencionadas foram no máximo de 3%, desde que houvesse sido feita de maneira correta a lubrificação da matriz.

Os resultados obtidos forneceram tôdas as indicações necessárias para o projeto das unidades e das operações ligadas à fabricação dos elementos combustíveis para o reator "Argonauta".

### 3. ESTRUTURA MICROGRÁFICA DOS NÚCLEOS

O exame da estrutura micrográfica dos elementos combustíveis experimentais, produzidos a partir de núcleos de  $U_3O_8$  natural em dispersão com alumínio, foi feito nas secções transversais e longitudinais de diversas das placas produzidas pelos dois processos mencionados, com auxílio do microscópio metalográfico Leitz MM5, com iluminação com lâmpada de xenônio.

O preparo das amostras foi feito seccionando-se as placas nos locais desejados por meio de serra de carborundum e montando os fragmentos em lucita. O polimento grosseiro foi feito sobre discos de lixa e o polimento fino com auxílio de pasta de diamante de 6 e depois de 1 micron, terminando-se com alumina-gama levigada. Em alguns dos exames metalográficos utilizou-se o polidor eletrolítico Zeiss, recentemente instalado na Secção de Metalografia da Divisão.

A micrografia da fig. 2 mostra a estrutura da secção longitudinal de uma placa obtida pela técnica de moldura, seguida de laminação. A dispersão indicada no núcleo de 40%  $U_3O_8$  e 60% Al é bastante regular, sendo de se notar a uniformidade na espessura do material do revestimento, liga de alumínio 2S. Mostra entretanto a micrografia a existência de fissuras próximas à interface entre o núcleo e o material de revestimento. Essa anomalia estrutural é indesejável, porquanto alguns dos grãos de  $U_3O_8$  podem entrar em contacto com a água utilizada como agente resfriador do reator se houver defeito na chapa de alumínio.

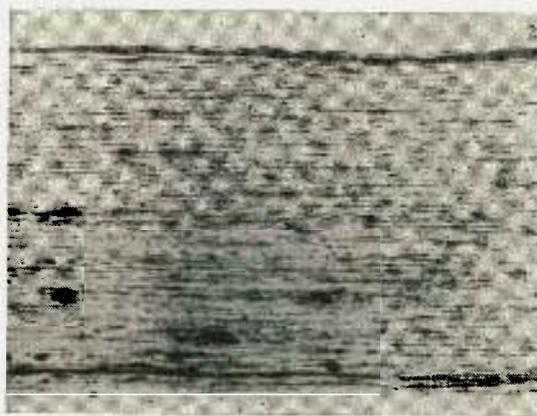


Fig. 2 — Micrografia da secção longitudinal de placa obtida pela técnica de moldura, contendo núcleo de "cermet" de 40%  $U_3O_8$  e 60% Al (30 $\times$ ).

A micrografia da fig. 3 da mesma placa corresponde à secção transversal, indicada pelo pronunciado achatamento dos grãos, em lugar do alongamento observado na micrografia anterior. A interface entre o núcleo e o revestimento indica soldagem quase perfeita, a não ser uma fissura entre o núcleo e o revestimento.



Fig. 3 — Micrografia de secção transversal na mesma placa da micrografia da fig. 2 (25 ×)

A estrutura segundo a secção longitudinal do núcleo contendo 40%  $U_3O_8$  e 60% Al, obtida por co-lingotagem e posterior laminação, é evidenciada na micrografia da fig. 4. A espessura do revestimento mostra-se irregular. Provavelmente essa irregularidade decorre da intensa deformação plástica do núcleo que contém 60% de alumínio e do bloqueamento localizado da deformação em torno de agregados maiores de  $U_3O_8$ . Essa irregularidade não foi constatada em placas obtidas posteriormente, e principalmente naquelas em que se empregou pó de diâmetro máximo de 325 mesh. A estrutura é típica de placa produzida por co-lingotagem, não existindo separatriz entre o núcleo e o revestimento. Esse detalhe indicativo da perfeita união entre o núcleo e o revestimento pode ser melhor apreciado sob aumento de 500 vezes (fig. 5), correspondendo as linhas finas às partículas de menor granulometria do óxido, sempre descontínuas, como é desejável para o elemento combustível.

A fig. 6 reproduz a microestrutura sob 50 aumentos de uma secção longitudinal de placa também obtida por co-lingotagem, o núcleo tendo partes iguais de  $U_3O_8$  e de alumínio. A estrutura uniforme bem como a regularidade de espessura do revestimento é característica dos elementos que vêm sendo produzidos com essa técnica. A união entre o núcleo e o revestimento, em ambas as faces, parece perfeita, podendo ser melhor evidenciada sob ampliação de 500 vêzes (fig. 7). As maiores áreas negras têm aproximadamente a mesma dimensão das maiores partículas do

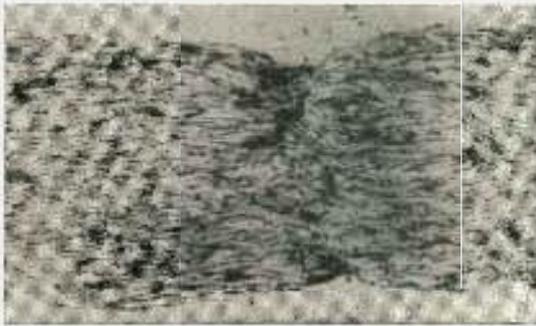


Fig. 4 — Micrografia da secção longitudinal de placa obtida por co-lingotagem com núcleo de 40%  $U_3O_8$  e 60% Al (25  $\times$ ).

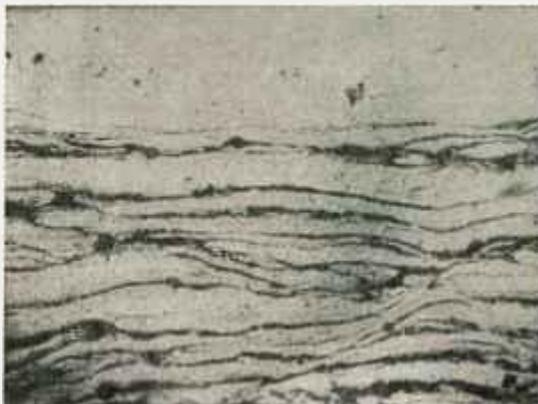


Fig. 5 — Micrografia da secção longitudinal da mesma placa da fig. 4 (250  $\times$ ).

óxido utilizado, e indicam a presença de partículas maiores e duras de  $U_3O_8$ . Em alguns pontos existem vazios como mostrado na fig. 8, que devem ter resultado do arrancamento de grãos de  $U_3O_8$  e de alumínio durante o polimento. No preparo das superfícies polidas constatou-se que o número desses vazios diminuiu consideravelmente quando se passaram a tomar maiores precauções no polimento.

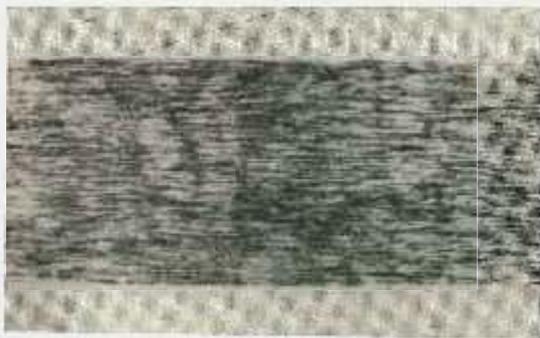


Fig. 6 — Micrografia de secção longitudinal de placa obtida por co-ligotagem com "cermet" de 50%  $U_3O_8$  e 50% Al (25  $\times$ ).

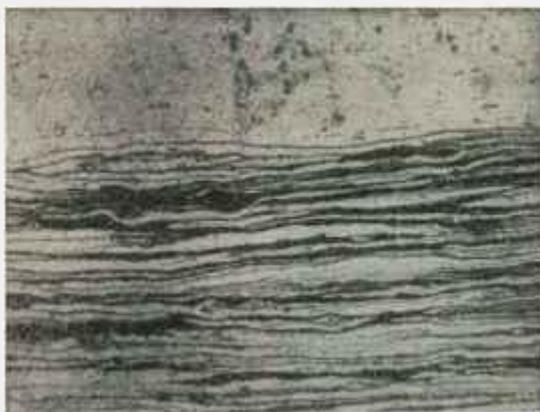


Fig. 7 — Micrografia da secção longitudinal da mesma placa da fig. 6 (250  $\times$ ).

Exames metalográficos de secções longitudinais nas extremidades do núcleo mostraram a forma em cunha no revestimento de alumínio, com dispersão bastante uniforme e sem apresentar a tendência do efeito "halterre" ("dog boning") que possa contri-

buir para o mau comportamento do elemento combustível no reator ou mesmo na produção das placas.

Finalmente, a fig. 9 reproduz a micrografia da secção transversal da placa com núcleo de 60%  $U_3O_8$  e 40% Al. Evidencia-se distribuição bastante uniforme das partículas de  $U_3O_8$  encer-

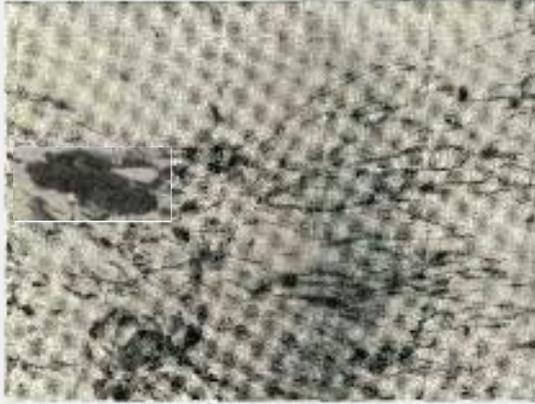


Fig. 8 — Micrografia da secção longitudinal da mesma placa da fig. 6 em região de arrançamento, no polimento, de grão de  $U_3O_8$ . (250  $\times$ ).

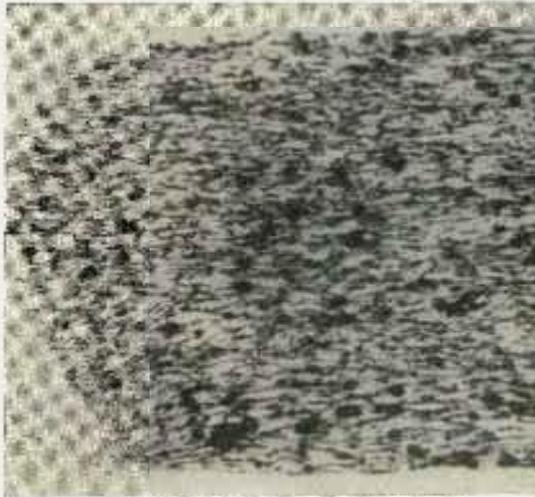


Fig. 9 — Micrografia de secção transversal de placa com núcleo de 60%  $U_3O_8$  e 40% Al, evidenciando a uniformidade da distribuição dos constituintes (30  $\times$ ).

radas em matriz quase contínua de alumínio, bem como a perfeita ligação entre o núcleo e o material de revestimento.

#### 4. CONCLUSÕES

1. Os estudos experimentais descritos nesta nota preliminar permitiram estabelecer as condições para a produção dos "cermets" constituídos de dispersões de  $U_3O_8$  e alumínio em proporções variáveis, destinados a núcleos de elementos combustíveis para o reator "Argonauta".

2. A correlação entre a densidade dos "cermets" no estado compactado em função da pressão de compactação segue a lei

$$\log d_c = \log k + 0,141 \log p$$

onde  $d_c$  é a densidade no estado compactado,  $k$  uma constante que depende das proporções de  $U_3O_8$  e de alumínio na mistura, e  $p$  é a pressão de compactação, em  $t/cm^2$ .

3. Os exames das micrografias de secções polidas depois de cortes longitudinais e transversais de placas transformadas mecanicamente, evidenciaram os característicos estruturais do núcleo transformado e do material de revestimento. Em particular, mostram que a dispersão obtida é bastante uniforme no caso das misturas feitas com  $U_3O_8$  de 325 mesh de diâmetro máximo, e que a contiguidade entre o núcleo e o revestimento é perfeita.

#### REFERÊNCIAS

- (1) WAUGH, R. C. — *The Reaction and Growth of Uranium Dioxide-Aluminum Fuel Plates and Compacts*, pg. 13. ORNL 2701.
- (2) WILKINSON, W. D. — *Combustíveis Cerâmicos e Grafita*, pg. 21. CNEM-1-EN. Rio de Janeiro, 1961.