

# ESTUDO DA POROSIDADE RESIDUAL EM NÚCLEOS DE PLACAS COMBUSTÍVEIS A BASE DE DISPERSÕES $U_3O_8$ -AL

M. Durazzo <sup>1</sup>

<sup>1</sup> Centro do Combustível Nuclear, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares-ipen/cnen-SP  
Av.Prof.Lineu Prestes,2242 CEP 05508-900, São Paulo/SP – mdurazzo@ipen.br

## RESUMO

A porosidade residual presente no núcleo de placas combustíveis nucleares a base de dispersão, também chamada de vazios de fabricação, explica o comportamento da corrosão desses núcleos quando expostos à água usada como refrigerante e moderador dos reatores de pesquisa tipo MTR. Os vazios de fabricação também explicam variações observadas no desempenho sob irradiação de combustíveis tipo dispersão usados em reatores nucleares. Para obter um melhor desempenho quanto à corrosão e irradiação, é necessário entender os fatores de fabricação que controlam o volume de vazios no núcleo das placas combustíveis. O objetivo deste estudo foi investigar a concentração de vazios no núcleo de placas combustíveis a base de dispersão  $U_3O_8$ -Al em função das características da dispersão de partida usada na confecção do núcleo da placa, obtida por compactação e denominada briquete.

A concentração de vazios é sensível à concentração de  $U_3O_8$ . Para uma determinada concentração, o processo de laminação conduz a uma concentração de vazios constante, denominada porosidade de equilíbrio. A quantidade de vazios de equilíbrio é independente da densidade inicial do briquete de partida.

**Descritores:** placa combustível, combustível nuclear, dispersões, combustível MTR, fabricação de combustíveis,  $U_3O_8$ .

## INTRODUÇÃO

Os reatores de pesquisa são basicamente empregados para a produção de radioisótopos e testes de materiais. Após a

## ABSTRACT

The residual porosity in the meat of nuclear dispersion fuel plates, the fabrication voids, explains the corrosion behavior of the meats when exposed to the water used as coolant and moderator of MTR type research reactors. The fabrication voids also explain variations in irradiation performance of many fuel dispersions for nuclear reactors. To obtain improved corrosion and irradiation performance, we must understand the fabrication factors that control the amount of void volume in fuel plate meats. The purpose of this study was to investigate the void content of aluminum-base dispersion-type  $U_3O_8$ -Al fuel plates depending on the characteristics of the starting fuel dispersion used to produce the fuel meat, which is fabricated by pressing.

The void content depends on the  $U_3O_8$  concentration. For a particular  $U_3O_8$  content, the rolling process establishes a constant void concentration, which is called equilibrium porosity. The equilibrium quantity of voids is insensitive to the initial density of the fuel compact.

**Key-words:** fuel plate, nuclear fuel, dispersions, MTR fuel, fuel fabrication,  $U_3O_8$ .

construção e operação desde 31 de março de 1952 do primeiro MTR (Materials Testing Reactor), empreendimento conjunto ORNL (Oak Ridge National Laboratories) e ANL (Argonne National Laboratories), os reatores

de pesquisa com elementos combustíveis tipo placa têm sido denominados reatores tipo MTR. O reator do IPEN/CNEN-SP, denominado IEA-R1, é utilizado para a produção de fontes radioativas seladas de aplicação industrial e de radioisótopos primários para uso na medicina nuclear, principalmente o Iodo-131.

Assim como o reator IEA-R1, numerosos reatores de pesquisas em todo o mundo utilizam elementos combustíveis tipo MTR que, usualmente, empregavam placas combustíveis contendo núcleos de ligas urânio-alumínio fabricadas por laminação de um conjunto formado por núcleo, moldura e revestimento. A liga utilizada como núcleo geralmente continha urânio com alto grau de enriquecimento (93% em  $U^{235}$ ) e, devido ao alto enriquecimento, apenas 18% em peso de urânio na liga era suficiente [1,2].

No início da década de 80, aproximadamente 156 reatores de pesquisas em 34 países utilizavam anualmente 1200 kg de urânio altamente enriquecido, com um inventário total de aproximadamente 5000 kg [3]. Isto representava um risco de proliferação nuclear associada ao extravio deste combustível durante a fabricação, transporte e armazenamento. Desta forma, restringiu-se a comercialização de urânio com alto grau de enriquecimento (acima de 90% em  $U^{235}$ ), provocando-se um impacto na disponibilidade e utilização deste combustível para reatores de pesquisas. Para que não fosse diminuída a reatividade e a vida útil dos núcleos dos reatores, decorrente da substituição do urânio altamente enriquecido por urânio com baixo grau de enriquecimento (20% em  $U^{235}$ ), tomou-se necessário o aumento da quantidade de urânio em cada elemento combustível.

Devido às dificuldades encontradas na fabricação de placas combustíveis com núcleos de ligas U-Al contendo 45% em peso de urânio com baixo enriquecimento [4,5,6], iniciaram-se desenvolvimentos de novos combustíveis utilizando tipos diferentes de núcleos que possibilitaram a incorporação de grandes quantidades de urânio em cada placa combustível [7,8,9,10,11,12].

Uma alternativa para aumentar-se a quantidade de urânio no núcleo da placa combustível é a utilização de cermetes, que podem ser sumariamente descritos como uma dispersão uniforme de partículas contendo o material fissil (normalmente

óxidos ou intermetálicos) numa matriz contínua de um metal não fissil. Muita experiência foi acumulada nos últimos anos na produção e utilização de dispersões de  $U_3O_8$  e  $UAl_x$  em alumínio, sendo que combustíveis contendo núcleos de  $U_3O_8$ -Al e  $UAl_x$ -Al já eram utilizados no HFIR (High Flux Isotope Reactor) em 1965 e no ATR (Advanced Test Reactor) em 1967.

Movido pelas dificuldades em obter no mercado internacional o combustível nuclear para o seu reator de pesquisas, o Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares da Comissão Nacional de Energia Nuclear (IPEN-CNEN/SP) iniciou um programa de desenvolvimento objetivando a fabricação do combustível para suprir o reator de pesquisas IEA-R1, utilizando-se urânio com baixo enriquecimento (20% em  $U^{235}$ ) na forma de dispersão em alumínio. Aproveitando-se a experiência anteriormente adquirida no desenvolvimento do processo de fabricação de placas combustíveis contendo núcleos de cermetes  $U_3O_8$ -Al [13,14,15] e, em virtude da fabricação deste tipo de combustível para o reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear, localizado no Rio de Janeiro [16,17], o  $U_3O_8$  foi, inicialmente, a opção escolhida para utilização na dispersão.

Concluídos seus trabalhos de desenvolvimento visando o suprimento imediato do seu reator, o IPEN iniciou em 1988 a fabricação de placas combustíveis contendo núcleos de  $U_3O_8$ -Al com concentração de urânio ao redor de 1,9 g/cm<sup>3</sup>, concentração esta suficiente para a operação do reator. Prosseguindo no desenvolvimento desta linha de combustível, o objetivo deste trabalho é avaliar o efeito da concentração de urânio incorporada no núcleo na sua porosidade residual, mantendo-se, por hora, o  $U_3O_8$  como material fissil. Outras características relevantes do núcleo também foram estudadas, tais como a integridade mecânica do núcleo e a uniformidade de distribuição de urânio.

## O PROCESSO DE FABRICAÇÃO DO COMBUSTÍVEL TIPO MTR

Os elementos combustíveis tipo MTR são formados pela montagem de um conjunto de placas combustíveis espaçadas entre si, permitindo a passagem de um fluxo de água que serve como refrigerante e moderador. As placas combustíveis consistem de um núcleo,

contendo o material físsil, que é totalmente revestido com alumínio. Elas são fabricadas adotando-se a tradicional técnica de montagem núcleo, moldura e revestimentos e posterior laminação, técnica conhecida internacionalmente com o nome de "picture frame technique" [2,18]. Técnicas de metalurgia do pó são utilizadas na fabricação dos núcleos das placas combustíveis, compostos de cermet, compósitos cerâmico-metálicos, utilizando pó de  $U_3O_8$  ou  $U_3Si_2$  enriquecido a 20% no isótopo  $U^{235}$  (material combustível nuclear), em conjunto com pó de alumínio (material estrutural da matriz do núcleo).

De modo geral, o processo de fabricação de elementos combustíveis do tipo óxido de urânio ( $U_3O_8$ ), envolve inicialmente a produção do diuranato de amônio (DUA) ou tricarbonato de amônio e urânio (TCAU) a partir de uma solução de hidrólise do  $UF_6$  ou diretamente do  $UF_6$ , respectivamente (ambos os compostos podem também ser obtidos a partir de uma solução de nitrato de urânio - NU). A partir do DUA ou TCAU é produzido o pó de  $U_3O_8$  por calcinação. A partir de pós de  $U_3O_8$  e alumínio são produzidos, por compactação, os núcleos combustíveis. Obtendo-se os núcleos, as placas são fabricadas por laminação e são montados os elementos combustíveis. A etapa do processo referente à produção das placas combustíveis é aquela que tem interesse direto para este trabalho, sendo, portanto, descrita em detalhes a seguir.

Como mencionado anteriormente, as placas combustíveis são fabricadas utilizando-se a técnica de montagem de moldura e revestimentos e posterior laminação ("picture frame technique"). O processo é iniciado com a preparação da dispersão do pó de  $U_3O_8$  em alumínio, obtida utilizando-se técnicas de metalurgia do pó. Ambos os pós, de alumínio e de  $U_3O_8$  são homogeneizados e compactados, obtendo-se uma peça sólida com boa resistência mecânica, a qual será o núcleo da placa combustível. Essa peça, constituída por uma dispersão de partículas de  $U_3O_8$  em partículas de alumínio, as quais constituirão a matriz metálica da dispersão, é denominada briquete. O pó de alumínio utilizado na fabricação dos briquetes é classificado e seco, sendo rejeitada a fração maior que 44  $\mu m$ . O pó de  $U_3O_8$  também é previamente classificado na faixa entre 89  $\mu m$  e 44  $\mu m$ ,

aceitando-se um teor máximo de 20 % em peso de finos menores do que 44  $\mu m$ .

A massa de pó de  $U_3O_8$  no briquete é calculada pela concentração de  $U^{235}$  especificada na placa combustível. De acordo com o cálculo das massas de  $U_3O_8$  e de alumínio, os pós são pesados separadamente, preparando-se uma carga apenas por pesagem. Uma vez pesados os pós, a carga é colocada num frasco especial de vidro e é homogeneizada num homogeneizador especial.

As cargas pesadas e homogeneizadas são compactadas sob temperatura ambiente para obtenção de briquetes, utilizando-se uma prensa hidráulica. O frasco contendo a carga homogeneizada é esvaziado sobre a cavidade da matriz mantendo-se o punção inferior inicialmente levantado. O pó é colocado em camadas com o auxílio de um aplainador, abaixando-se o punção inferior gradualmente até que toda a carga esteja carregada, quando o punção é totalmente abaixado até a sua posição normal durante a compactação. Em seguida, o punção superior é introduzido e a pressão é aplicada, mantendo-a por 15 segundos.

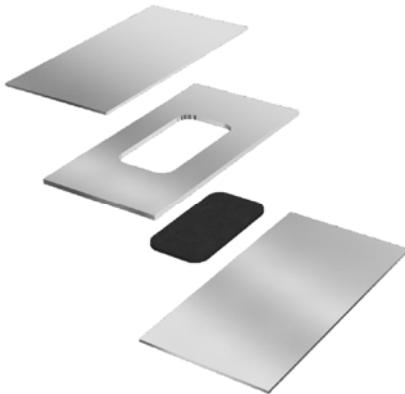
Após a sua remoção da matriz de compactação os briquetes são rebarbados, pesados, medidos e identificados.

Os briquetes devidamente qualificados são desgaseificados sob vácuo dinâmico de  $2 \times 10^{-5}$  torr numa retorta. A temperatura é de 520° C e o tempo de permanência é de 3 horas. Os briquetes desgaseificados são embrulhados em papel de alumínio e são imediatamente acondicionados em suportes especiais no interior de uma estufa a vácuo até que sejam processados.

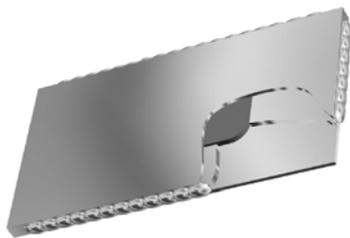
As peças componentes do conjunto que dará origem à placa combustível são uma placa de moldura, um briquete e duas placas de revestimento. A placa de moldura é aquecida no forno de montagem à temperatura de 440 °C e é encaixada no briquete frio apoiado numa placa de revestimento. Após o resfriamento da moldura, o briquete é fixado na cavidade da moldura por interferência. A outra placa de revestimento é posicionada por cima. A figura 1 ilustra o esquema de montagem do conjunto a ser laminado, segundo a técnica "picture frame".

Este conjunto montado é preso por grampos e é soldado em sua borda, fixando-se todos os componentes do conjunto. A

soldagem é realizada por meio de cordões contínuos nas arestas do conjunto, deixando-se as extremidades das arestas, ou seja, os quatro cantos, livres de solda. Esse procedimento é necessário para permitir a saída de gases durante os primeiros passes de laminação. A figura 2 ilustra um conjunto soldado.



**Figura 1** – Montagem do conjunto núcleo-moldura-revestimentos para laminação.

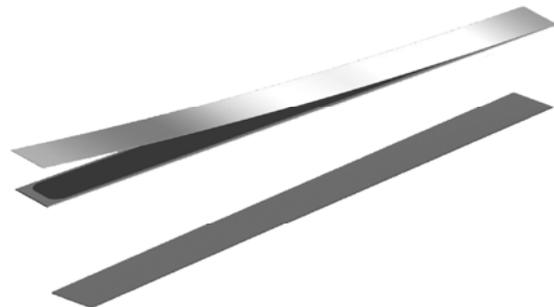


**Figura 2** – Vista do conjunto montado já soldado, ilustrando o cordão de solda.

Os conjuntos soldados, devidamente identificados, são inseridos no forno de aquecimento de placas por 60 minutos sob temperatura de 440°C. A laminação a quente é realizada em vários passes conforme programa bem estabelecido. Os cilindros de laminação são lubrificados com óleo especial para laminação a quente. O projeto de passes foi determinado empiricamente e não é variado além do limite de 0,1 mm, para garantia do caldeamento e do controle e reprodutibilidade da deformação do núcleo. O projeto de passes adotado basicamente prevê uma redução a quente total de 81,3% em espessura, em 9 passes, e um ou mais passes a frio, com redução de 10% em espessura, totalizando uma redução de

83,3%, a quente e a frio. Entre cada passe a quente, os conjuntos são reaquecidos por 15 minutos. A velocidade de laminação é constante, de aproximadamente 10 metros/minuto.

A laminação a frio é realizada no mesmo laminador adotado na laminação a quente. Nesta operação a espessura especificada é atingida com precisão. A redução a frio é de aproximadamente 10% em espessura, aplicada em um ou mais passes. Durante a laminação a frio, o comprimento do núcleo de cada placa combustível é verificado, garantindo-se o atendimento da especificação de comprimento mínimo e espessura máxima. A figura 3 mostra uma vista da placa obtida após a laminação, ilustrando a forma final dos componentes da placa. Após a laminação ocorre o perfeito caldeamento entre todos os componentes do conjunto, obtendo-se uma peça única onde o núcleo está perfeitamente vedado, encamisado por alumínio, o que impede o contato do material físsil com a água refrigerante do carço do reator.



**Figura 3** – Vista dos componentes da placa combustível após a laminação.

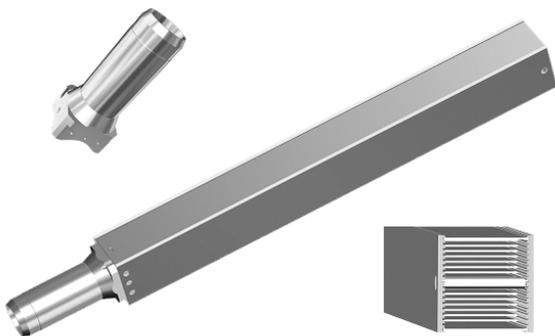
As placas obtidas na laminação a frio apresentam suas superfícies bastante onduladas, sendo necessário uma operação de aplainamento. Esta operação é realizada utilizando-se um aplainador de rolos, que consiste basicamente de um grupo de cilindros aplainadores e um sistema de ajuste destes cilindros.

A próxima etapa é o corte final da placa combustível nas dimensões especificadas. Este corte é realizado em guilhotina utilizando-se a traçagem baseada numa chapa radiográfica, obtida num sistema de radiografia industrial, onde o núcleo é perfeitamente localizado na placa

combustível, riscando-se, a partir da posição do núcleo, os traços que orientarão o corte final. Esta operação é realizada com o auxílio de negatoscópios. Uma vez traçada e cortada, a placa combustível é identificada utilizando-se a fresadora pantográfica, com caracteres de dimensões de largura, altura e profundidade especificadas. As placas combustíveis identificadas são rebarbadas manualmente e caracterizadas dimensionalmente, obtendo-se seu comprimento, largura e espessura. As placas combustíveis aprovadas nestas inspeções são verificadas quanto à qualidade da sua superfície, sendo caracterizada sua rugosidade superficial com o auxílio de uma lupa e um rugosímetro. As porosidades residuais dos núcleos de todas as placas fabricadas são determinadas utilizando-se o princípio de Archimedes.

A cada lote de 20 placas combustíveis, em uma placa combustível é feita a determinação da espessura do revestimento. Esta análise é realizada destrutivamente por meio de metalografia e análise de imagens.

As placas combustíveis são montadas para a formação de um estojo contendo as placas combustíveis, utilizando-se suportes laterais (direito e esquerdo), bocal, pino de sustentação e parafusos. A montagem é iniciada com a montagem do estojo contendo as placas combustíveis, fixadas por cravamento aos suportes laterais. Posteriormente, são fixados o bocal e o pino de sustentação. A figura 4 mostra um elemento combustível acabado, ilustrando detalhes do pino de sustentação e do bocal, os quais formam as suas duas extremidades.



**Figura 4** – Vista do elemento combustível e detalhes de suas extremidades.

## EXPERIMENTAL

As técnicas utilizadas na fabricação das amostras foram basicamente as mesmas adotadas correntemente na fabricação de placas combustíveis pelo Centro do Combustível Nuclear do IPEN, descritas no item anterior.

**Tabela 1** – Principais características das amostras produzidas.

CONCENTRAÇÃO DE $U_3O_8$ (% em peso)	FRAÇÃO VOLUMÉTRICA (%)	DENSIDADE DE URÂNIO ( $gU/cm^3$ )	POROSIDADE DO COMPACTADO (% em volume)
10	2,9	0,2	15
20	6,4	0,5	15
30	10,3	0,7	15
40	15,0	1,1	15
50	20,7	1,5	15
58	22,9	1,6	25
	24,6	1,8	20
	26,0	1,9	15
	27,7	2,0	10
	29,2	2,1	5
70	36,7	2,6	15
75	42,0	3,0	15
80	47,9	3,4	15
85	54,9	3,9	15
90	62,5	4,5	15

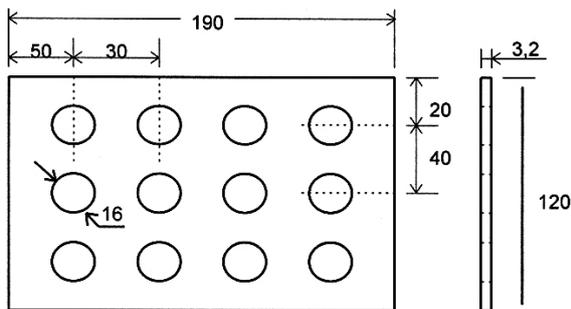
Este trabalho foi planejado de maneira a utilizarem-se placas combustíveis miniaturas para avaliação da influência da concentração de  $U_3O_8$  e da porosidade residual presentes no briquete compactado sobre o seu comportamento durante a deformação na laminação, ou seja, alongamento, porosidade residual, homogeneidade e integridade. Nestas placas combustíveis miniaturas, a concentração de  $U_3O_8$  variou de 10 a 90% em peso (0,2 a 4,5  $gU/cm^3$ ) e, para a concentração de 58% em peso (1,9  $gU/cm^3$ ), variou-se a porosidade residual nos compactados de 5 a 25% em volume, totalizando 180 amostras, com 12 amostras por condição de teste. Devido ao elevado número de amostras necessário, optou-se pela utilização de placas combustíveis miniaturas, uma vez que 12 amostras puderam ser fabricadas numa única operação de laminação. A tabela 1 apresenta um resumo das principais características das amostras preparadas para o desenvolvimento deste trabalho.

Inicialmente, foram realizadas a pesagem e a homogeneização nas proporções desejadas dos pós de  $U_3O_8$  e de alumínio de pureza comercial (Al 1100), devidamente classificados como descrito anteriormente. A homogeneização das misturas foi realizada utilizando-se um misturador especialmente projetado para permitir uma ampla liberdade

de fixação de ângulos e velocidades de rotação. A fixação da rotação em 50 rpm e do ângulo de 45° permitiu a obtenção de suficiente grau de homogeneidade para todas as proporções estudadas, conforme avaliação visual realizada por meio de radiografias obtidas dos compactados, denominados briquetes.

A compactação para a obtenção dos briquetes para a fabricação de placas miniaturas foi realizada utilizando-se uma prensa hidráulica manual e matriz cilíndrica de duplo efeito com diâmetro de 16 mm. A massa de mistura e a pressão de compactação variou de modo a obterem-se briquetes de espessura constante de 3,2 mm e densidade a verde de 85% da densidade teórica da dispersão. Alguns briquetes, com composição fixa de 58% em peso de  $U_3O_8$ , foram preparados com suas densidades a verde variando de 75 a 95% da densidade teórica (porosidade residual de 25 a 5 % em volume) para estabelecer-se qual é a influência da porosidade do compactado nas características finais do núcleo combustível.

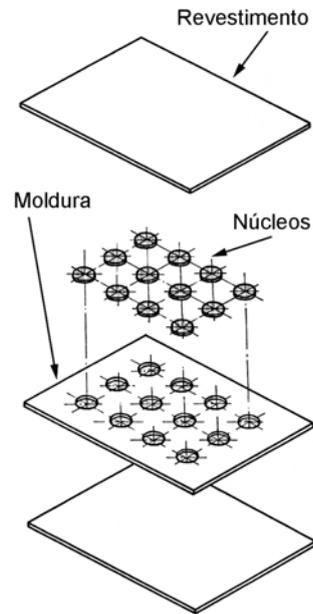
Para a fabricação das placas combustíveis miniaturas, as placas de moldura e revestimento possuíam dimensões de 120 mm X 190 mm. As placas utilizadas como molduras foram furadas em 12 posições para o encaixe dos briquetes. A figura 5 ilustra esquematicamente a placa de moldura, mostrando as posições dos furos.



**Figura 5** – Esquema da placa de moldura usada na fabricação das amostras.

Após o encaixe dos briquetes, o conjunto foi montado e soldado como descrito anteriormente. Cada conjunto montado foi identificado, conhecendo-se a posição de montagem dos briquetes. A figura 6 apresenta o esquema de montagem dos conjuntos. Assim, por meio de laminação a

quente e a frio, 15 placas foram fabricadas, contendo o total de 180 placas miniaturas.



**Figura 6** – Esquema de montagem dos conjuntos para laminação.

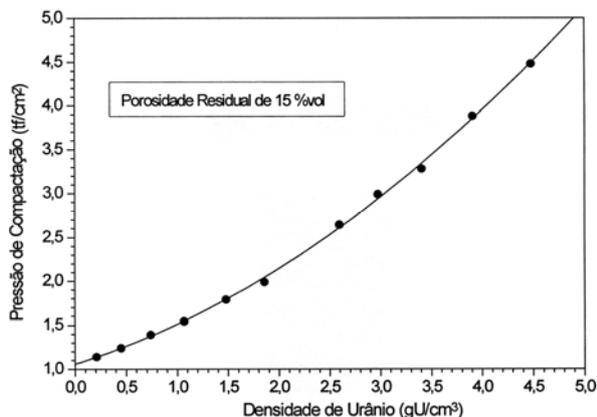
Por meio de radiografia, a qual também permitiu o corte individual das placas combustíveis miniaturas, foram avaliados os comprimentos dos núcleos obtidos e, visualmente, sua integridade e uniformidade de distribuição de material físsil. Após o corte e identificação das placas miniaturas individuais, utilizando-se o método hidrostático com água como líquido, foram determinados os volumes dos núcleos de cada amostra, possibilitando a determinação das suas densidades e, portanto, porosidades residuais.

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

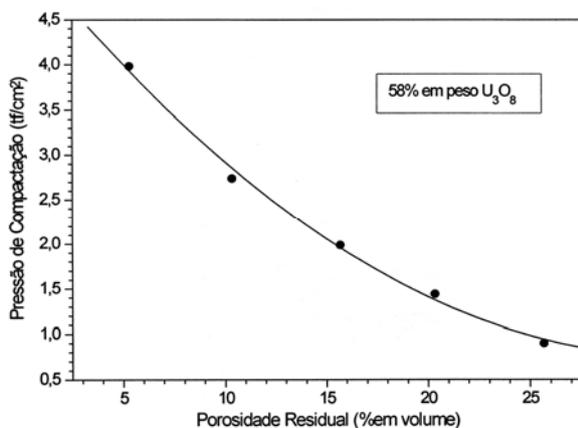
### *Porosidade residual e alongamento*

Para avaliação da influência da concentração de  $U_3O_8$ , ou, em última instância, da densidade de urânio, e da porosidade inicial presente nos briquetes sobre a porosidade residual e alongamento do núcleo durante a laminação, foram preparados briquetes contendo crescentes concentrações de  $U_3O_8$  e porosidade inicial de 15% em volume. Para análise da influência da porosidade inicial, foram preparados briquetes com densidade de

urânio de  $1,9 \text{ gU/cm}^3$  (58 % em peso de  $\text{U}_3\text{O}_8$ ) e porosidades de 5 a 25% em volume. As figuras 7 e 8 apresentam curvas de compactação que mostram a variação da pressão de compactação com a densidade de urânio (porosidade fixa de 15% em volume) e com a densidade relativa dos briquetes obtidos (concentração de  $\text{U}_3\text{O}_8$  fixa de 58 % em peso, ou,  $1,9 \text{ gU/cm}^3$ ).



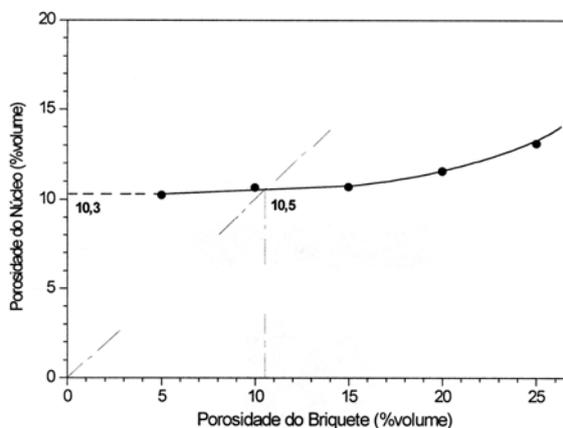
**Figura 7** – Variação da pressão de compactação em função da densidade de urânio de briquetes  $\text{U}_3\text{O}_8$ -Al (3,2 mm de altura e porosidade de 15 %vol.).



**Figura 8** – Variação da pressão de compactação em função da porosidade de briquetes  $\text{U}_3\text{O}_8$ -Al (3,2 mm de altura).

A figura 9 mostra o efeito da densidade inicial do briquete sobre a porosidade do núcleo gerado após a laminação a frio, podendo-se observar que existe densificação dos briquetes com porosidades superiores a aproximadamente 10,5% em volume. Por outro lado, o efeito é contrário nos briquetes

com porosidades inferiores a este valor. Ou seja, independentemente da porosidade do compactado de partida, a porosidade dos núcleos laminados tendem a se igualar, atingindo-se um equilíbrio. O valor desta porosidade de equilíbrio para a concentração de urânio de  $1,9 \text{ gU/cm}^3$  e para nossas condições de fabricação está em torno de 10,3% em volume, como mostra a figura. Possivelmente, o desvio deste valor para núcleos obtidos a partir de compactados com alta porosidade (20 e 25% em volume) é decorrente das irregularidades observadas nestes núcleos através de suas radiografias, conforme será discutido no próximo item.

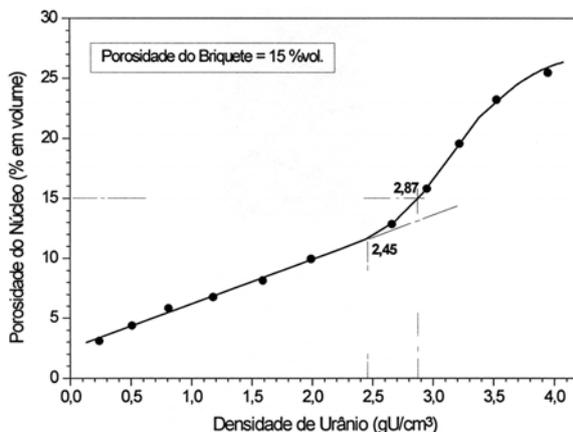


**Figura 9** – Efeito da porosidade inicial do briquete sobre a porosidade do núcleo da placa combustível.

Estes resultados estão de acordo com os resultados obtidos por Martin e Martin [19,20]. Seus trabalhos, estudando a fabricação de placas combustíveis à base de dispersões  $\text{U}_3\text{O}_8$ -Al e  $\text{UAl}_x$ -Al, mostraram que após o primeiro passe de laminação a quente a porosidade do núcleo já atinge um equilíbrio, mantendo-se durante toda a laminação a quente em torno de 7% em volume. Posteriormente, durante a laminação a frio, esta porosidade de equilíbrio aumenta linearmente com a redução. Segundo esses autores, este aumento da porosidade durante a laminação a frio é o resultado da fragmentação das partículas de  $\text{U}_3\text{O}_8$  com posterior alinhamento destes fragmentos ("stringering"). Pode-se concluir, portanto, que o fator principal que determina a porosidade final do núcleo laminado para uma dada concentração de  $\text{U}_3\text{O}_8$  não é a densidade inicial do compactado, mas sim as

condições de laminação a frio e a resistência à fragmentação das partículas de  $U_3O_8$ .

A figura 10 mostra o efeito da concentração de urânio sobre a porosidade residual presente nos núcleos  $U_3O_8$ -Al após a laminação a frio para densidades de urânio desde  $0,24 \text{ gU/cm}^3$  até  $3,95 \text{ gU/cm}^3$  (10 a 90% em peso de  $U_3O_8$ ), mantendo-se a porosidade de 15% em volume nos compactados de partida. Pode-se observar nesta figura que a porosidade de equilíbrio atingida no núcleo laminado é tanto maior quanto maior é sua concentração de  $U_3O_8$ , sendo que, para concentrações acima de 61% em peso de  $U_3O_8$  ( $2,45 \text{ gU/cm}^3$ ) este efeito toma-se mais acentuado. Nota-se que, dependendo da concentração de  $U_3O_8$  no núcleo, pode existir uma densificação (concentrações de  $U_3O_8$  abaixo de aproximadamente 73,6% em peso, ou  $2,87 \text{ gU/cm}^3$ ) ou um aumento da sua porosidade em relação à porosidade inicial do briquete (concentrações acima deste valor). Isto sugere que, durante a laminação, vazios são formados ao mesmo tempo em que são destruídos pela deformação da matriz metálica de alumínio no núcleo. Se a predominância for a formação de vazios, resultará o aumento da porosidade durante a laminação. Caso contrário resultará uma diminuição.



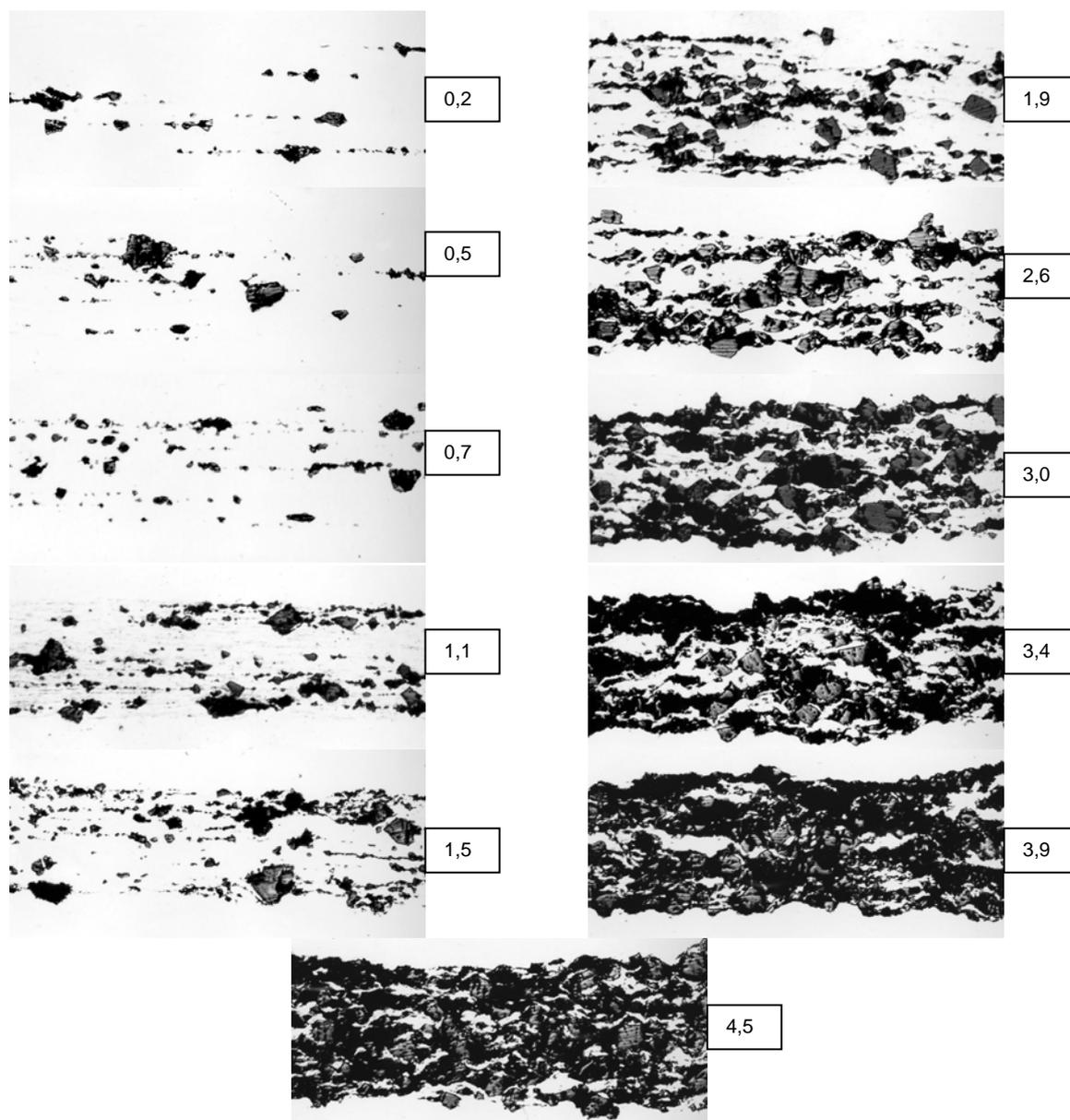
**Figura 10** – Efeito da densidade de urânio na porosidade final do núcleo laminado.

Segundo Hobson e Leitten [21] a fragmentação das partículas de  $U_3O_8$  durante a laminação depende da resistência à fragmentação da partícula, ligada à sua densidade e forma, da temperatura de laminação, da redução por passe e do

espaçamento entre partículas. Uma vez que se mantiveram constantes as características do pó de  $U_3O_8$  utilizado na fabricação de todas as amostras e o processo de laminação, a fragmentação das partículas deve ser dependente somente do espaçamento entre elas, que, por sua vez, depende da concentração de  $U_3O_8$  na amostra.

Estes resultados são confirmados pela análise qualitativa das microestruturas apresentadas na figura 11, onde se pode observar um aumento na porosidade do núcleo com o aumento da sua concentração de  $U_3O_8$ , sendo este aumento acentuado para concentrações acima de 70% em peso, ou  $2,6 \text{ gU/cm}^3$ . Apesar do inevitável arrancamento de algumas partículas de  $U_3O_8$  durante a preparação metalográfica, podemos observar nestas micrografias um aumento na fração de vazios com o aumento da concentração de  $U_3O_8$ , confirmando-se os resultados obtidos hidrostaticamente. Para concentrações de até 40% em peso de  $U_3O_8$  no núcleo ( $1,1 \text{ gU/cm}^3$ ), são poucos os vazios observados nas micrografias, o que sugere baixa porosidade. Nos núcleos contendo entre 50 e 70% em peso de  $U_3O_8$ , ou  $1,5$  a  $2,6 \text{ gU/cm}^3$ , observa-se um aumento gradativo na fração de vazios. Comparando-se as micrografias das amostras contendo 70 e 75% em peso de  $U_3O_8$  ( $2,6$  e  $3,0 \text{ gU/cm}^3$ , respectivamente), pode-se verificar um aumento acentuado na fração de vazios presentes no núcleo, aumento este que continua com o aumento da concentração de  $U_3O_8$  até 90% em peso, equivalente à densidade de urânio de  $4,5 \text{ gU/cm}^3$ .

Observando-se as micrografias da figura 11, obtidas por meio de cortes longitudinais das amostras, ou seja, na direção da laminação, além de verificar-se a presença de fragmentação de partículas de  $U_3O_8$ , com posterior alinhamento dos fragmentos ("stringering"), podem-se observar, para altas concentrações de  $U_3O_8$ , vazios alongados na direção de laminação. Estes vazios alongados devem ter sido formados por meio do arraste de partículas de  $U_3O_8$  pelo fluxo de alumínio da matriz durante a deformação. Tendo isto em vista, pode-se supor que partículas de  $U_3O_8$  fragmentam-se e são arrastadas durante a laminação, formando vazios, ao mesmo tempo em que a matriz metálica de alumínio se deforma plasticamente, eliminando ou fechando estes



**Figura 11** – Micrografias de núcleos  $U_3O_8$ -Al com diferentes densidades de urânio (em  $gU/cm^3$ ).

vazios. Aumentando-se a concentração de  $U_3O_8$ , aumenta-se a formação de vazios (tanto por fragmentação quanto por arraste) ao mesmo tempo em que se diminui a fração volumétrica de alumínio, dificultando a eliminação dos vazios formados, resultando num aumento da porosidade final do núcleo. Acima de 70 % em peso de  $U_3O_8$  ( $2,6 gU/cm^3$ ), quando a fração volumétrica de alumínio no núcleo é menor do que 50 %, a fragmentação aumenta marcadamente, devido à grande probabilidade de choque entre partículas, ao mesmo tempo em que já não existe mais a matriz metálica contínua de alumínio responsável pela eliminação de

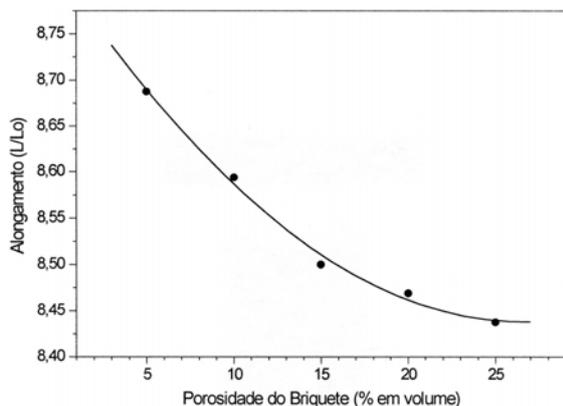
vazios, explicando-se o comportamento observado nas curvas apresentadas na figura 10.

Estes vazios formados durante a fabricação, segundo Martin e Richt [22], estão significativamente relacionados com o desempenho do combustível durante a irradiação. Estes autores, comparando o desempenho de placas combustíveis miniaturas contendo núcleos de  $UAl_3$ -Al e  $U_3O_8$ -Al em testes de irradiação, atribuíram a maior estabilidade (menor inchamento) das dispersões  $U_3O_8$ -Al à sua maior porosidade após a fabricação, possibilitando uma acomodação dos gases de fissão. Ainda,

testes adicionais de irradiação em combustíveis a base de dispersões indicaram que a porosidade presente na matriz da dispersão reduz a menos da metade o inchamento da placa combustível para uma determinada taxa de queima [23].

Como o efeito desta porosidade maior em núcleos com alta concentração de urânio é benéfico quanto ao desempenho do combustível sob irradiação, o fator limitante do aumento da concentração de urânio não deve ser a porosidade residual do núcleo mas sim a sua integridade mecânica, discutida no próximo item.

O conhecimento do alongamento do núcleo da placa combustível é importante para o projeto apropriado das dimensões dos componentes do conjunto para a laminação, uma vez que o comprimento final do núcleo da placa combustível acabada é uma especificação que deve ser atendida. Tendo isto em vista, foi determinada a relação entre o comprimento do núcleo e a concentração de  $U_3O_8$  utilizando-se os dados obtidos por meio de placas combustíveis miniaturas. O comprimento dos núcleos das placas combustíveis miniaturas foi determinado por meio de radiografias, utilizando-se uma escala métrica com precisão de 0,5 mm. Os resultados estão apresentados na figura 12.

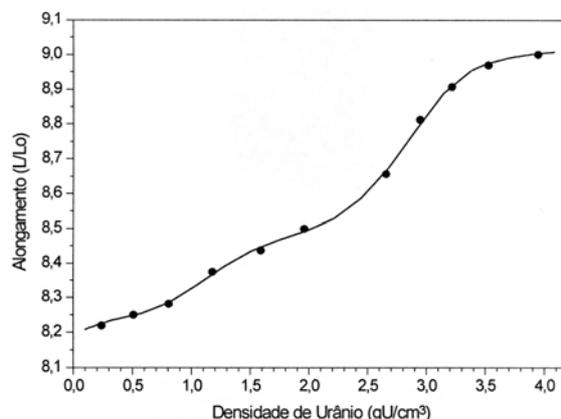


**Figura 12** – Efeito da porosidade inicial no briquete sobre o alongamento do núcleo na laminação.

Observa-se na figura 12 que, partindo-se de briquetes com alta porosidade, acima de 15% em volume, o alongamento, calculado pela razão entre o comprimento do núcleo laminado (L) e do briquete ( $L_0$ ), não é muito sensível à porosidade. Ao contrário, quando a porosidade presente no briquete é pequena

(igual ou menor do que 10% em volume), o alongamento é consideravelmente incrementado com a diminuição da porosidade residual do briquete de partida. Estes resultados são consistentes com os resultados de porosidade dos núcleos obtidos, apresentados na figura 9. Briquetes com alta porosidade, acima da porosidade de equilíbrio, sofrem menor alongamento durante a laminação, pois ocorre uma diminuição da porosidade inicial presente no briquete, ou seja, uma diminuição do seu volume. Ao contrário, quando a porosidade do briquete é pequena, abaixo da porosidade de equilíbrio, porosidade é formada durante a laminação, aumentando-se o volume do núcleo durante a laminação, resultando num alongamento que é tanto maior quanto menor é a porosidade inicial do briquete.

A relação entre o alongamento do briquete durante a laminação e a densidade de urânio, determinado da mesma forma como mencionado acima, pode ser observada na figura 13. Os resultados também são consistentes com os resultados de porosidade obtidos, apresentados na figura 10.



**Figura 13** – Efeito da densidade de urânio do briquete sobre o alongamento do núcleo na laminação.

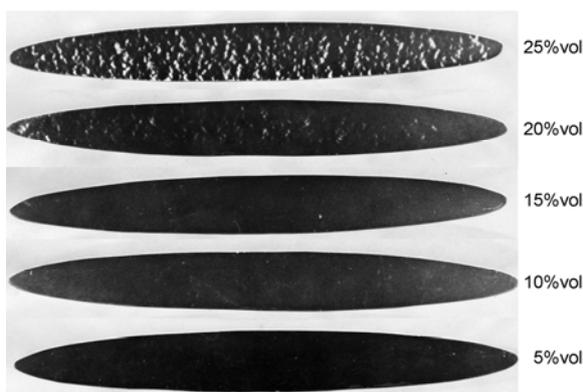
O alongamento durante a laminação aumenta com a densidade de urânio, ou concentração de  $U_3O_8$ , de maneira muito similar ao aumento observado da porosidade de equilíbrio, como não poderia deixar de ser, já que o aumento da porosidade conduz a um aumento do volume do núcleo que é refletido no aumento do seu comprimento, uma vez que sua espessura é predeterminada. Este aumento é praticamente linear até a concentração de aproximadamente 60 % em

peso de  $U_3O_8$  ( $2,45 \text{ gU/cm}^3$ ) quando ocorre um sensível incremento, como no caso da porosidade.

### **Integridade e distribuição de urânio**

Por meio de radiografias foi verificada a presença de possíveis defeitos estruturais nos núcleos laminados, tais como inclusões com alta concentração de urânio e distribuição irregular de combustível. Estas radiografias também permitiram o corte das várias amostras individuais.

Na figura 14 estão apresentadas as radiografias dos núcleos laminados contendo 58 % em peso de  $U_3O_8$  fabricados a partir de compactados com porosidades variando de 5 a 25 % em volume. Na figura 15 estão apresentadas as radiografias dos núcleos laminados contendo de 10 a 90 % em peso de  $U_3O_8$  fabricados a partir de compactados com porosidade de 15 % em volume.

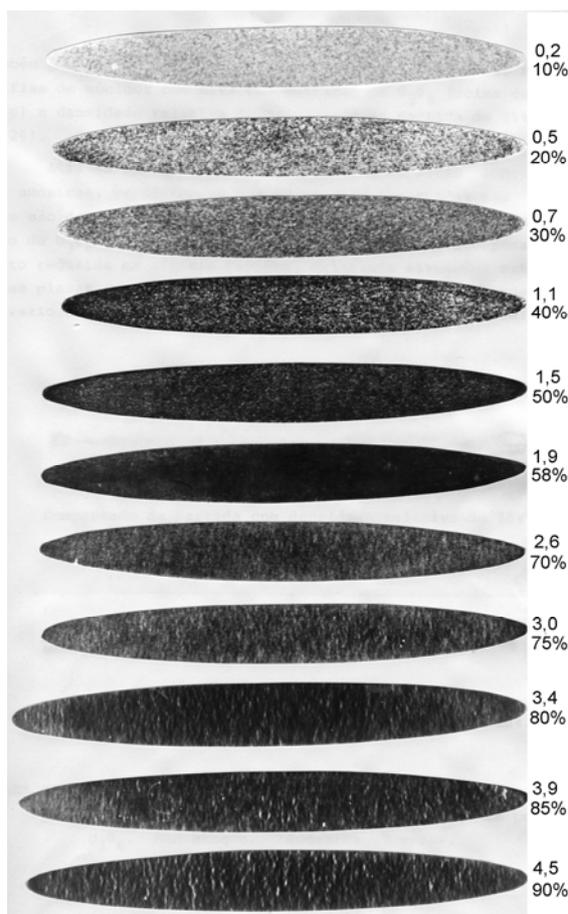


**Figura 14** – Impressões de radiografias de placas miniaturas obtidas a partir de briquetes com 58 % em peso de  $U_3O_8$  ( $1,9 \text{ gU/cm}^3$ ) e diferentes níveis de porosidade.

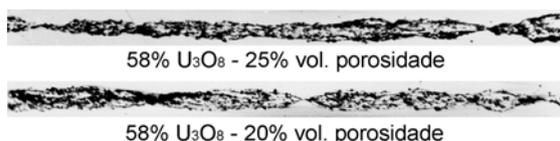
Nas radiografias da figura 14 podem-se observar manchas claras, alinhadas perpendicularmente à direção de laminação, nos núcleos fabricados a partir de compactados com baixas densidades (porosidades de 25 e 20 % em volume). Tais manchas também podem ser observadas, porém em menor intensidade, nas radiografias de núcleos com alta concentração de  $U_3O_8$  (acima de 75 % em peso) apresentadas na figura 15.

Por meio da observação metalográfica da secção longitudinal das amostras, verificou-

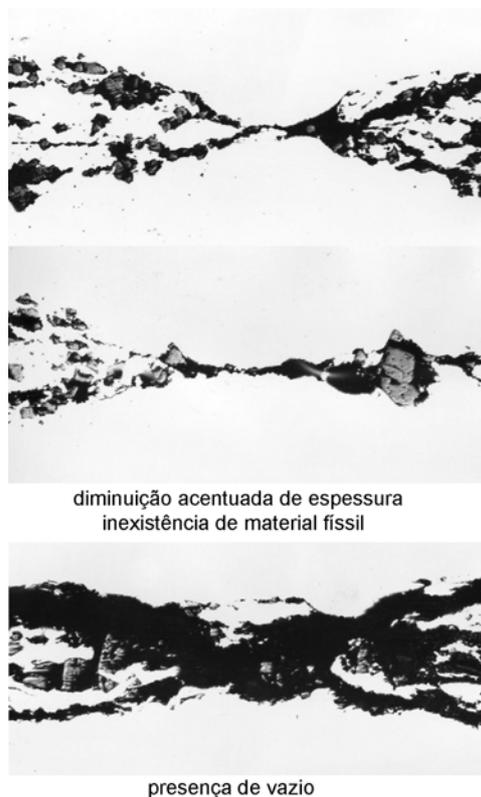
se que as manchas observadas nas radiografias são decorrentes de variações pronunciadas na espessura do núcleo de  $U_3O_8$ -Al, na forma de estrangulamentos. Esta espessura fica muito reduzida em algumas regiões, existindo situações extremas onde as placas de revestimento praticamente se tocam ou onde existe um vazio entre elas. As figuras 16 e 17 ilustram este efeito.



**Figura 15** – Impressões de radiografias de placas miniaturas obtidas a partir de briquetes com diferentes densidades de urânio e porosidade de 15% em volume.



**Figura 16** – Macrografias da secção longitudinal de placas combustíveis miniaturas ilustrando defeitos que são evidenciados nas radiografias.

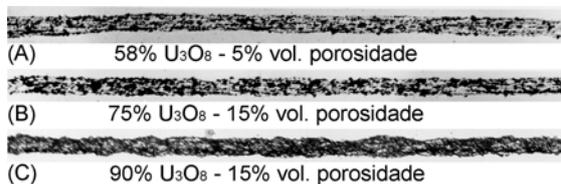


**Figura 17** – Micrografias detalhando as causas das manchas observadas nas radiografias das figuras 14 e 15.

Amostras contendo núcleos com 58% em peso de  $U_3O_8$  e porosidade no compactado de partida abaixo de 20% em volume não apresentaram este tipo de irregularidade, sendo que sua espessura apresentou-se uniforme, como pode ser observado na figura 18(A). Amostras contendo núcleos com concentrações de  $U_3O_8$  acima de 75% em peso também apresentaram estes estrangulamentos. A figura 18(B) mostra a secção longitudinal de uma amostra contendo núcleo com 75% em peso de  $U_3O_8$  onde se pode observar a uniformidade da espessura do núcleo. Por outro lado, a figura 18(C) mostra a macrografia de uma amostra contendo núcleo com 90% em peso de  $U_3O_8$ , onde podem ser observadas variações pronunciadas na espessura do núcleo, resultando manchas claras nas radiografias.

Estes estrangulamentos sugerem o aparecimento de trincas, perpendicularmente à direção de laminação, nos primeiros passes de laminação, sendo preenchidas com o alumínio do revestimento nos passes posteriores. Segundo Ramirez Velazco,

Badino, Muro e Hey [24], este comportamento pode ser explicado pelo campo de tensões de compressão a que está submetida a zona de deformação. Dependendo da redução aplicada, este campo tem uma certa profundidade que, em certas condições, pode abranger toda a espessura do conjunto, resultando numa deformação homogênea. Por outro lado, se as reduções aplicadas são menores, altera-se o campo de tensões originando-se uma zona central de tração que seria a responsável pelo trincamento do núcleo e aparecimento destes estrangulamentos. Estes autores, estudando a deformação do núcleo durante a laminação de placas combustíveis, verificaram o aparecimento destes estrangulamentos em núcleos contendo 60% em peso de fase cerâmica, conseguindo eliminá-los em núcleos com até 75% em peso com o aumento da redução por passe na laminação. Portanto, pode-se, pelo menos em parte, compensar o aumento da natureza frágil do núcleo combustível, devido ao aumento da concentração de  $U_3O_8$ , com um apropriado projeto de passes na laminação.



**Figura 18** – Macrografias da secção longitudinal de placas combustíveis miniaturadas.

Esta uniformidade na espessura do núcleo de  $U_3O_8$ -Al deve ser considerada por duas razões. Primeiramente, deve-se considerar a diminuição da espessura do revestimento em regiões onde ocorre um aumento na espessura do núcleo. Em segundo lugar, deve-se considerar a não uniformidade na distribuição de urânio causada por variações na espessura do núcleo, sendo que a presença de regiões localizadas onde existe uma maior concentração de combustível (maior espessura do núcleo) pode resultar em temperaturas excessivamente altas nestas regiões durante a irradiação. Qualitativamente, não pode ser observado nas radiografias qualquer indicação de segregação de  $U_3O_8$  devido à problemas de homogeneização, mesmo para altas concentrações (90% em peso), o que

também poderia resultar numa distribuição de urânio heterogênea.

Observando-se as micrografias da figura 11, o limite para obtenção de núcleos com a presença de uma matriz contínua de alumínio parece ser de 75% em peso de  $U_3O_8$ , ou densidade de urânio de  $3,0 \text{ gU/cm}^3$ , sendo que a aparência da microestrutura destes núcleos é muito semelhante à dos núcleos obtidos por Copeland e Martin [25] contendo também 75% em peso de  $U_3O_8$ , que impuseram esta concentração como limite para fabricação de placas combustíveis para testes de irradiação. A continuidade da matriz de alumínio é importante em termos de resistência mecânica do núcleo pois, em regiões onde a concentração de vazios é demasiadamente alta, sua resistência à tração na direção da espessura fica comprometida e estas áreas podem acumular gases de fissão durante a irradiação possibilitando o surgimento de uma bolha ("blister") devido ao aumento da pressão.

## CONCLUSÕES

Qualitativamente, nossas observações indicaram que, partindo-se de briquetes com porosidade de 15% em volume, podem-se obter núcleos de  $U_3O_8$ -Al com espessura de aceitável uniformidade para concentrações de até 75% em peso de  $U_3O_8$ , equivalente a uma densidade de urânio de  $3,0 \text{ gU/cm}^3$ . Além disto, as observações dos núcleos contendo 58% em peso de  $U_3O_8$  fabricados a partir de compactados com diferentes densidades indicaram que se aumentando a densidade do compactado de partida pode-se obter núcleos de espessura uniforme mesmo para concentrações de  $U_3O_8$  acima de 75% em peso. Ainda, indicações da literatura [24] sugerem que o aumento da redução por passe na laminação produz um efeito benéfico em termos de uniformidade da espessura do núcleo. Portanto, o aumento da densidade do briquete de partida e o apropriado projeto de passes devem ser variáveis a serem consideradas nos trabalhos de desenvolvimento de combustíveis a base de  $U_3O_8$ -Al com alta densidade de urânio, indicando um limite entre 3,0 e  $3,4 \text{ gU/cm}^3$ . Essa conclusão também é válida para o combustível a base de  $U_3Si_2$ -Al (raciocinando-se em termos de fração volumétrica do composto físsil), o qual é o

próximo combustível a ser desenvolvido pelo IPEN.

## REFERÊNCIAS

- [1] A. N. HOLDEN. Dispersions Fuel Elements. Gordon&Breach, 1967.
- [2] J. E. CUNNINGHAM and E. J. BOYLE. MTR-Type fuel elements. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses atomic energy: proceedings of the International Conference on..., held in Geneva, 8-20 Aug. 1955. V. 9: Reactor technology and chemical processing. New York, N.Y., 1956. p. 203-7.
- [3] A. TRAVELLI. Current Status of the RERTR Program. In: Development Fabrication and Application of Reduced-Enriched Fuels for Research and Test Reactor: proceedings held in Argonne, m., 12-14 November, 1980. CONF - 801144
- [4] J. E. CUNNINGHAM, R. J. BEAVER, W. C. THURBER, R. C. WAUGH. Fuel dispersions in aluminum-base elements for research reactors. In: USAEC. Fuel elements, conference held in Paris, 18-23 Nov. 1957. Oak Ridge, Tn. 1958. V. 1. p. 269-97. (TID-7546)
- [5] H. A. SALLER. Preparation, properties and cladding of aluminum-uranium-alloys. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses atomic energy: proceedings of the International Conference on..., held in Geneva, 8-20 Aug. 1955. V. 9: Reactor technology and chemical processing. New York, N.Y., 1956. p. 214-20.
- [6] W. C. THURBER and R. J. BEAVER. Segregation in uranium-aluminum alloys and its effects on the fuel loading of aluminum-base fuel element. In: Reactor fuel measurements techniques symposium, Oak Ridge, Tn. 1958. (TID-7560)
- [7] F. T. BINFORD and R. W. KNIGHT. Trans. Amer. Nucl. Soc., v 27, p. 834, 1977.
- [8] A. TRAVELLI, R. A. LEWIS, J. E. MATOS, E. DELANEY, W. BALLARD, L. U. S. AKERS. Trans. Amer. Nucl. Soc., v. 30, p. 725, 1978.
- [9] J. P. SCHWARTZ. Trans. Amer. Nucl. Soc., v. 30, p. 729, 1978.

- [10] J. L. SNELGROVE, R. R. BURN, H. KOMORIYA, T. A. MOSS. Trans. Amer. Nucl. Soc., v. 30, p. 727, 1978.
- [11] D. STAHL, J. E. CUNNINGHAM, W. C. FRANCIS. Trans. Amer. Nucl. Soc., v. 30, p. 726, 1978.
- [12] A. J. GIETZEN and G. B. WEST. Trans. Amer. Nucl. Soc., v. 30, p. 726, 1978.
- [13] J. D. T. CAPOCHI, S. H. L. CINTRA, E. F. GENTILE. Metalurgia, v 24, 124, p.207, 1968.
- [14] J. D. T. CAPOCHI, S. H. L. CINTRA, E. F. GENTILE. Metalurgia, v 24, 133, p.913, 1968.
- [15] S. H. L. CINTRA, E. F. GENTILE, L. NISHIOKA, M. A. S. ABRÃO, F. F. AMBROZIO. Metalurgia, v 26, 146, p. 31, 1970.
- [16] T. D. SOUZA SANTOS, H. M. HAYDT, C. T. FREITAS. Metalurgia, v 21, 90, p. 369, 1965.
- [17] T. D. SOUZA SANTOS, H. M. HAYDT, C. T. FREITAS. Metalurgia, v 21, 97, p. 909, 1965.
- [18] A. R. KAUFMAN. Nuclear reactor fuel elements, metallurgy and fabrication. New York, N.Y. Interscience, 1962.
- [19] M. M. MARTIN and W. R. MARTIN. Fabrication Voids in Aluminum-Based Fuel Dispersions, Oak Ridge National Laboratory, Metals and Ceramics Division. Oct. 1970. (ORNL-4611)
- [20] MARTIN, M. M. Parametric Study of the deformation of  $U_3O_8$ -Al and  $UAl_x$ -Al dispersion fuel plates. Fuel and material development program QPR for period ending December, 31, 1969., May 1970. p.277-82. (ORNL-4520).
- [21] D. O. HOBSON and C. P. LEITEN Jr. Characterization of  $U_3O_8$  dispersions in aluminum. Oak Ridge, Tn., Oak National Lab., 1967. (ORNL-TM-1962)
- [22] M. M. MARTIN and A. E. RICHT. Trans. Amer. Nucl. Soc., 12 (1969), p. 98.
- [23] W. R. MARTIN, G. N. ADAMSON Jr., J. E. CUNNINGHAM. Trans. Amer. Nucl. Soc., v. 12 (1 Suppl.), p. 41, 1969.
- [24] J. R. VELAZCO, N. BADINO, S. MURO, A. HEY. Procesos de deformación en nucleos ceraméticos. Lima, Peru. Instituto Peruano de Energia Nuclear, s.d.
- [25] G. L. COPELAND. and M. M. MARTIN. Fabrication of high-uranium-loaded  $U_3O_8$ -Al developmental fuel plates. Oak Ridge, Tn., Oak National Lab., 1980. (ORNL-TM-7607)