



INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
SECRETARIA DA INDÚSTRIA, COMÉRCIO, CIÊNCIA E TECNOLOGIA
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**DESENVOLVIMENTO DE COMBUSTÍVEL TIPO PLACA, COM
NÚCLEO CONSTITUÍDO POR DISPERSÃO U-AI, PARA
RETORES DE ENSAIOS DE MATERIAIS**

JOSÉ CARLOS BRESSIANI

Dissertação apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares como parte dos requisitos para obtenção do grau de "Mestre — Área Reatores Nucleares da Potência e Tecnologia do Combustível Nuclear".

Orientador: Dr. Clauer Trench de Freitas

3.4

**São Paulo
1979**

E R R A T A

Pag.	Linha	Onde se lê	Leia-se
Resumo	3	dispersões de	dispersões
Resumo	6	53 de 105 μ m	53 e 105 μ m
Resumo	18	UAl ₃ e UAl ₄	UAl ₃ e UAl ₄
Abstract	11	IEA-R1 swimming	IEA-R1 swimming
Abstract	17	uranium as also	uranium was also.
Abstract	23	when extendid	when extended
4	7	não dos sistema na forma dispersão	não do sistema na forma de dispersão
7	6	suas energias	sua energia
7	8	o recuo dos	o recuo dos
8	3	de combustível máxima	máxima de combustível
8	6	identificadas (Ω m) e não de nificadas	identificada (λ m) e não de- nificada
9	18	A parte da matriz	A fração da matriz
16	10	As especificidades	As especificações
21	17	3) Não existe dificuldades	3) Não existe dificuldade
29	3	, constituída de UC ₃ ,	, constituída de UC ₃ ,
31	2	um terço de espessura	um terço de espessura
31	4	é de 50 μ m	é de 500 μ m.
32	7-8	facilidade extração	facilidade de extração
43	12	serem altamente	serem altamente
47	9	de prova forma	de prova foram
47	Tab.9	Kg/mm ²	kgf/mm ²
50	1	65,70 e 80%	70,75 e 80%
52	5	O caldeamento	O caldeamento
68	18	suficientes para	suficiente para
68	17	reação de UAl ₂	reação de UAl ₂
68	18	figuras abaixo	figuras 26 e 31
74	3	é importante	é importante
76	7-8	dispersivas de raios-X	dispersiva de raios-X
76	13	de interface	de interface

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

SECRETARIA DA INDÚSTRIA, COMÉRCIO, CIÊNCIA E TECNOLOGIA

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**DESENVOLVIMENTO DE COMBUSTÍVEL TIPO PLACA, COM
NÚCLEO CONSTITUÍDO POR DISPERSÃO U-AI, PARA RE
ATORES DE ENSAIOS DE MATERIAIS.**

JOSÉ CARLOS BRESSIANI

Dissertação apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares como parte dos requisitos para obtenção do grau de "Mestre - Área Reactores Nucleares de Potência e Tecnologia de Combustível Nuclear".

Orientador: Dr. CLAUER TRENCH DE FREITAS

SÃO PAULO

1979



*À Ana Helena
Aos meus pais*

AGRADECIMENTOS

Agradeço:

Ao Dr. Clauer Trench de Freitas, pela orientação no desenvolvimento deste trabalho.

Ao Dr. Kengo Imakuma pela eficiente ajuda prestada na obtenção e interpretação dos dados de difração de raios-X.

A todos os colegas e colaboradores do Centro de Metalurgia Nuclear que, direta ou indiretamente, colaboraram na execução deste trabalho.

Ao João Batista Cubas Cardoso, pela confecção dos desenhos que ilustram esta dissertação.

A Florinda Vieira e Luzinete Pereira Barbosa, pela preparação das fotografias que compõem este trabalho.

Ao Dr. Joel Alvarenga de Souza e Ítalo Salzano Junior do COUR, pelas facilidades de irradiação da placa.

A Ana Helena, pelo estímulo, apoio e compreensão.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, nas pessoas de Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni e Dr. Hermani Augusto Lopes Amorim, pelas facilidades concedidas para que este trabalho pudesse ser realizado.

José Carlos

RESUMO

Este trabalho é uma contribuição para o desenvolvimento de elementos combustíveis tipo placa, para reatores de pesquisas e ensaios de materiais, com núcleos constituídos por dispersões de urânio metálico e alumínio.

São discutidos os aspectos referentes a: (1) obtenção do pó de urânio com partículas entre 53 e 105 μm de diâmetro; (2) mistura e compactação dos pós de urânio e alumínio, para diversas concentrações de urânio; (3) comportamento das dispersões nas condições de laminação; (4) qualidade das placas produzidas por meio de ensaios de empolamento, radiográficos, metalográficos e ensaio de irradiação. O ensaio de irradiação foi realizado no reator de pesquisa IEA-R1, em uma placa protótipo contendo dispersão de alumínio e urânio natural a 45% em peso, atingindo-se um fluxo integrado de neutrons de $8,663 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$, sem que ocorresse qualquer defeito.

Também foi estudado o comportamento da reação urânio-alumínio para dispersões com 45% em peso de urânio, constatando-se, por meio de difração de raios-X, a formação de UAl_2 , UAl_3 e UAl_4 e por análise de energia dispersiva de raios-X (EDAX), ficou evidenciado que a reação se dá com a difusão do alumínio para o urânio. A energia de ativação da reação U-Al, foi determinada por meio de ensaios dilatométricos e apresentou um valor de 20,2 kcal/mol. A reação do alumínio-urânio se completa quando prolongada por 96 horas a 600°C , ou seja, todo o urânio passa a se apresentar sob a forma de UAl_4 .

DEVELOPMENT OF MTR FUEL PLATE WITH U-AL
DISPERSION CORE CONSTITUENTS.

ABSTRACT

This work is a contribution to the development of fuel plates for Research Nuclear Reaction Materials Test Reactors. The plates have the core constituted by dispersions of metallic uranium in aluminum.

The main topics of this work are: 1) The preparation of uranium powder with particle sizes in the 53-105 μ m diameter range; 2) The mixture and cold-pressing of uranium and aluminum powders for different uranium concentrations; 3) The behavior of the dispersions in the roll milling conditions; 4) Blister, radiographic, metalographic and irradiation tests for quality control of the plates. The irradiation test was performed in the IEA-R1 ~~swimming~~^{swimming} pool reactor using a prototype with a dispersion of aluminum and natural uranium (45 w/o), reaching an integrated neutron flux of 8.663×10^{18} n/cm², no visual changes being noticed after the completion of the experiment.

The behavior of the uranium-aluminum reaction for dispersions with 45% w/o uranium ~~was~~^{was} also studied. X-ray diffraction experiments showed the formation of UAl_2 , UAl_3 and UAl_4 , while energy dispersive analysis of X-rays (EDAX) demonstrated that the diffusion of aluminum in uranium is the mechanism responsible for that reaction. The activation energy for the U-Al reaction was determined by dilatometric experiments yielding 20.2 kcal/mol. The aluminum-uranium reaction reaches an end when extended to 96 h at 600°C, namely, when all the uranium is found in the UAl_4 composition.

Í N D I C E

	Pág.
I - INTRODUÇÃO E OBJETIVOS	1
II - CONSIDERAÇÕES GERAIS	5
II.1. Teoria das dispersões	5
II.2. Dispersões Ideais	5
II.3. Dispersões Reais	13
II.4. Principais requisitos na seleção de materiais para elementos combustíveis à base de dispersões ..	14
II.5. Processo de fabricação de elementos combustíveis	19
II.5.1. Fabricação de Núcleos	19
II.5.2. Fabricação de placas combustíveis	22
III - TÉCNICA EXPERIMENTAL.....	26
III.1. Materiais	26
III.1.1. Alumínio	26
III.1.2. Pó de urânio metálico	27
III.2. Mistura de compactação dos pós de alumínio e urânio	31
III.3. Determinação do comportamento plástico das dispersões	32
III.4. Montagem do conjunto moldura-núcleo-revestimento e laminação	32
III.5. Radiografia	34
III.6. Tratamentos térmicos	34
III.7. Difração de raios-X	35
III.8. Metalografia	37
III.9. Dilatometria	38
III.10. Análise da penetração do urânio através do revestimento de alumínio	38
III.11. Ensaio de irradiação	40

	Pág.
IV - RESULTADOS E DISCUSSÕES	43
IV.1. Obtenção do pó de urânio	43
IV.2. Compactação	44
IV.3. Determinação do comportamento plástico de dis persões relacionando-o ao alumínio 1100	46
IV.4. Laminação dos conjuntos compostos por núcleo, moldura e revestimento	49
IV.5. Caldeamento entre núcleo e revestimento	52
IV.6. Radiografia das placas	53
IV.7. Homogeneidade das dispersões	55
IV.8. Estudo da reação entre urânio e alumínio em dispersões	59
IV.8.1. Difração de Raios-X	59
IV.8.2. Metalografia	69
IV.8.3. Análise de penetração de urânio através de revestimento de alumínio	74
IV.8.4. Determinação da energia de ativação da reação urânio-alumínio	76
IV.9. Variação linear na espessura das placas após tratamentos térmicos	79
IV.10. Ensaio de irradiação	81
V - CONCLUSÕES	84
SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS	85
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	86

1 - INTRODUÇÃO E OBJETIVOS

Reatores nucleares para pesquisas, principalmente os MTR (Materials Testing Reactors) usam frequentemente elementos combustíveis planos, contendo núcleos formados por liga de urânio-alumínio. O processo de fabricação destes elementos normalmente utiliza a técnica de moldura, que consiste na laminação de um conjunto briquete emoldurado por metal revestido por duas placas também metálicas ("picture frame techniques") (16).

Empregando-se esta técnica, para que haja um bom caldeamento entre o revestimento, a moldura e o núcleo, deve-se ter uma alta porcentagem de redução na laminação. Usualmente esta redução fica em torno de 80% na espessura. Para se conseguir tal redução é necessária uma boa ductilidade do núcleo, pois caso contrário o mesmo não se deforma homogeneamente durante a laminação, provocando defeitos na placa combustível.

As ligas urânio-alumínio são lamináveis até um teor de 25% em peso de urânio; acima deste teor a laminação começa a ser dificultada devido ao aumento da fração volumétrica das fases frágeis, constituídas pelos intermetálicos UAl_4 , UAl_3 e UAl_2 (34). A figura 1 mostra o diagrama de equilíbrio de urânio-alumínio.

Considerando as dificuldades em obter, no mercado internacional, urânio com alto grau de enriquecimento (93% em peso do isótopo U^{235}), faz-se necessária a utilização de urânio com um grau de enriquecimento menor, usualmente 20% em peso do seu isótopo U^{235} . Essa variação no grau de enriquecimento exige um aumento no conteúdo de urânio da liga de 18,5% para cerca de 45% em peso de urânio, para manter condições aceitáveis de funcionamento dos

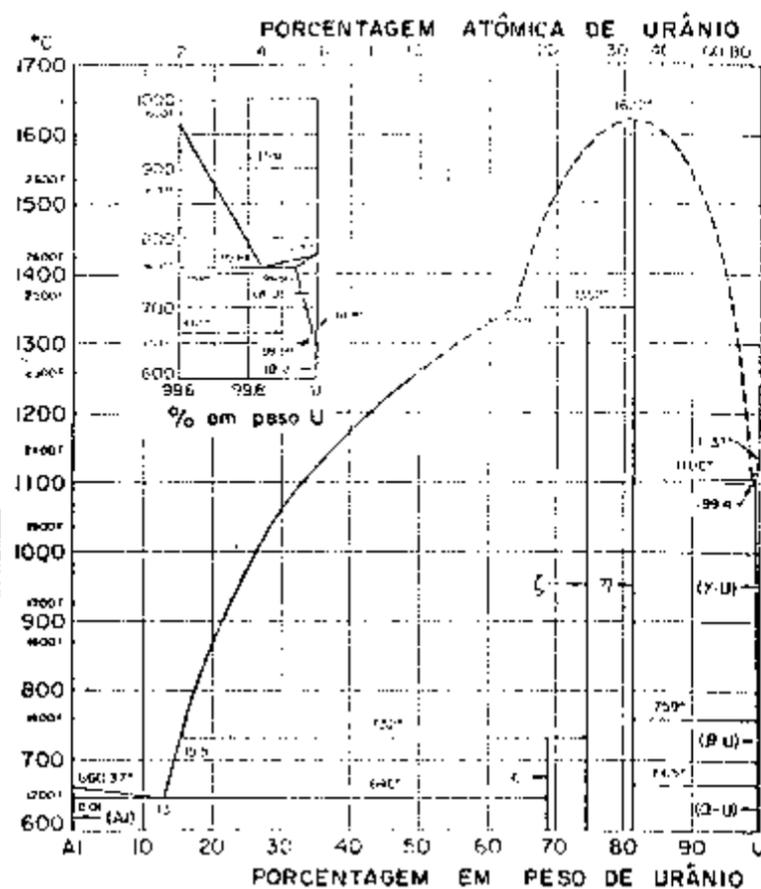


FIGURA 1 - Diagrama de equilíbrio de Alumínio-urânio

reatores em que se utiliza o combustível.

A laminação destas ligas de 45% em peso de urânio, preparadas pelos métodos convencionais de fundição, apresenta sérias dificuldades, pois contém no seu interior grande quantidade de intermetálicos, que são extremamente frágeis. Além da dificuldade de laminação, existe outro fator altamente prejudicial nestas ligas, que é a alta segregação que ocorre entre o alumínio e o urânio durante o processo de fundição, acarretando numa grande variação de concentração desses metais ao longo das peças fundidas (41).

Um meio alternativo para resolver estes problemas é confeccionar placas de elementos combustíveis, utilizando núcleos de dispersões, onde as partículas da fase dispersa estão uniformemente distribuídas em uma matriz contínua de um material não físsil.

O núcleo de um elemento combustível à base de dispersões consiste do combustível nuclear, na forma de metal ou óxido físsil e de matriz composta de metal, liga, substâncias cerâmicas, grafite, material orgânico ou outros materiais não físsis.

As principais vantagens dos elementos combustíveis à base de dispersões, em relação a elementos combustíveis de ligas, são descritas a seguir:

a) Os elementos combustíveis à base de dispersões possibilitam a fabricação de núcleos com uma grande gama de variação de concentração das fases dispersas.

b) Os elementos combustíveis de dispersões são mais resistentes a danos de radiação durante tempo prolongado em serviço, do que os elementos combustíveis à base de ligas. Esta alta estabilidade à radiação é principalmente devida ao fato dos produtos de fissão ficarem acumulados dentro ou nas vizinhanças de partículas dispersas de combustível. O isolamento dos produtos de fissão previne danos no núcleo do combustível como um todo.

As dispersões mais estudadas até o momento são aquelas que utilizam como fase dispersa UO_2 , U_3O_8 , $UA1_x$, UC e UC_2 e como matriz alumínio e aço inoxidável (7,11,18,19,28,31).

Não se tem conhecimento de estudos realizados sobre dispersões, utilizando-se como fase dispersa urânio metálico e como

matriz alumínio.

O sistema urânio metálico-alumínio na faixa de concentrações útil para uso em elementos combustíveis, apresenta uma série de possíveis reações até atingir o UAl_4 que é o produto termodinamicamente mais estável (fig. 1). Essas reações devem ser perfeitamente conhecidas, tanto no aspecto termodinâmico quanto no cinético, para dar ao projetista subsídios necessários para que ele possa optar pela possível utilização ou não dos sistema na forma dispersão.

Em decorrência dos processos de fissão nos elementos combustíveis, a composição do núcleo dos mesmos altera-se com sua utilização. Dessa forma, a cinética das transformações correspondentes é particularmente importante, sendo relativamente irrelevante a estabilidade termodinâmica do núcleo combustível, antes da irradiação.

O objetivo deste trabalho é fazer um estudo sobre o comportamento de elementos combustíveis, tendo como núcleo dispersão de urânio em alumínio. O trabalho abrange a obtenção do pó de urânio, a mistura dos pós de urânio e alumínio, a compactabilidade da dispersão, a fabricabilidade do núcleo e posteriormente da placa de combustível, o comportamento da reação urânio-alumínio e o comportamento sob irradiação de uma placa protótipo de combustível contendo urânio natural, isto tudo visando o seu possível aproveitamento como combustível para reatores de pesquisa e de ensaios de materiais.

II - CONSIDERAÇÕES GERAIS

II.1. Teoria das dispersões

Os principais tratamentos teóricos sobre elementos combustíveis a base de dispersões foram realizados por Weber e Hirsch (48); Weber (47) e White, Beard e Willis (49). Estes tratamentos fazem um estudo dos principais parâmetros envolvidos no projeto e utilização de elementos combustíveis a base de dispersões. Os parâmetros mais importantes são: tamanho das partículas do material combustível, distância de recuo dos produtos de fissão no material matriz, e fração volumétrica total do material disperso representada pelas partículas do combustível.

Os desenvolvimentos teóricos realizados por estes pesquisadores, levam em conta dispersões ideais em vez de dispersões reais. Apenas foram tratadas dispersões com partículas esféricas de tamanho constante formando um arranjo cúbico de face centrada, enquanto que as dispersões reais apresentam partículas de tamanho e formas variáveis. Consequentemente, os tratamentos teóricos não oferecem dados absolutos referentes a efeitos de radiação, resistência mecânica, transferência de calor, corrosão e integridade do combustível durante o tempo de vida em serviço requerido, mas pode dar subsídios para uma avaliação preliminar destas propriedades.

II.2. Dispersões Ideais

Uma dispersão ideal é aquela que tem um arranjo de partículas com tamanho constante e forma esférica, de tal maneira que

exista uma razoável quantidade do material da matriz entre as partículas, para possibilitar a existência de uma região não danificada pelos produtos de fissão. Como a distância média de recuo dos fragmentos de fissão das partículas combustíveis dentro da matriz é constante para um dado material da matriz, tem-se que:

a) Para uma dada fração volumétrica de partículas de combustível, quanto menor for o tamanho das partículas, maior será a região danificada pelo recuo dos produtos de fissão.

b) Para um dado tamanho de partículas, quanto maior a fração volumétrica total das partículas de combustível na dispersão, maior será a região danificada pelo recuo dos produtos de fissão. Estas afirmações podem ser visualizadas na figura 2.

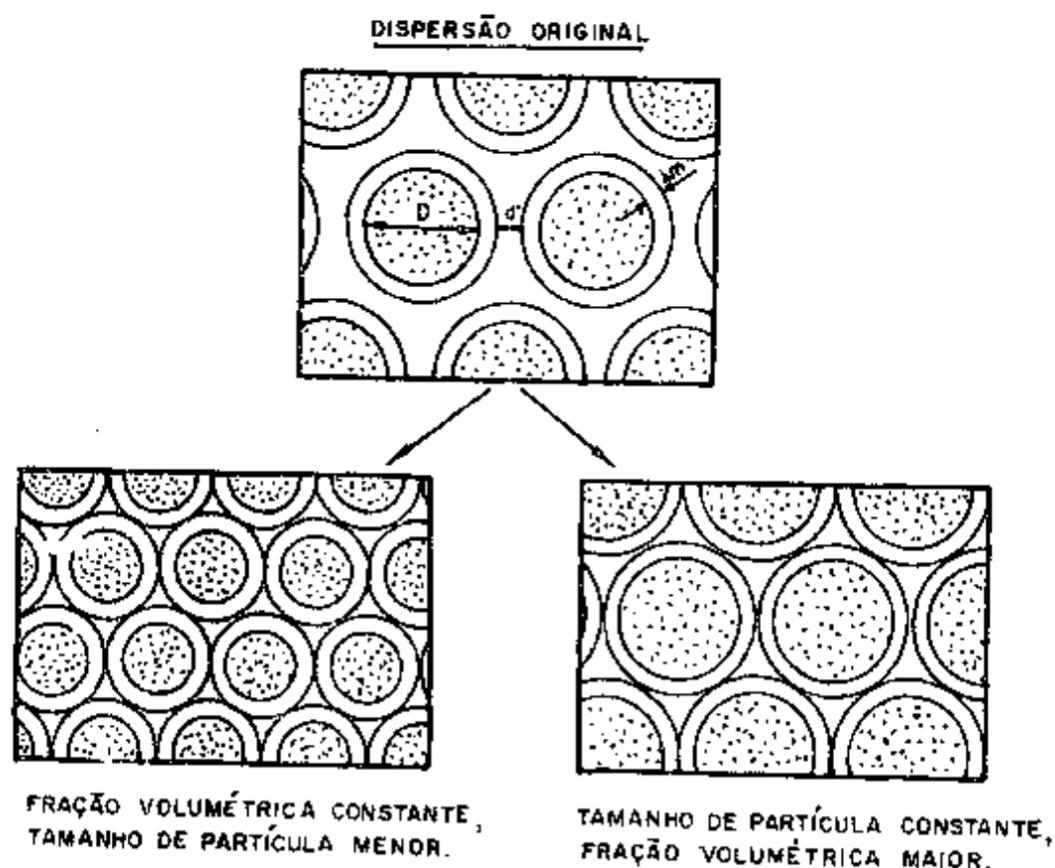


FIGURA 2 - Dois casos de superposição de zonas danificadas.

No processo de fissão ocorre a formação de dois novos núclídeos e a emissão de radiações. Mais que 80% da energia total desprendida na fissão é concedida aos fragmentos de fissão, na forma de energia cinética. Estas partículas extremamente energéticas, percorrem poucos microns, mas provocam sérios danos aos materiais, enquanto dissipam suas energias em forma de calor.

A distância média (em microns) teoricamente calculada, para o récuo aos produtos de fissão do U^{235} para vários materiais é (21,35):

U - metal	6,8
UO ₂	9,4
Zr	9,4
Fe	6,7
Al	13,7

Uma condição essencial para preservar ao máximo as propriedades iniciais da matriz é a continuidade das partes não danificadas. Portanto, a distância entre as partículas do combustível deve ser tal que não haja contato ou superposição das camadas danificadas pelos produtos de fissão.

Para uma estrutura hipotética (partículas esféricas de combustível ocupando posições numa rede cúbica de face centrada), a distância d entre as partículas de combustível, pode ser relacionada com o diâmetro D destas partículas e a fração volumétrica V_f das partículas de combustível da seguinte forma:

$$d = D \left[\left(\frac{\pi}{3\sqrt{2} V_f} \right)^{1/3} - 1 \right] \quad (1)$$

A equação acima é válida para $V_f < 0,74$. Com $V_f = 0,74$, todas as partículas de combustíveis estariam em contato ($d=0$). Dessa forma, a fração volumétrica de combustível máxima, ocupada por partículas de combustível de mesmo diâmetro é 0,74 (figura 3).

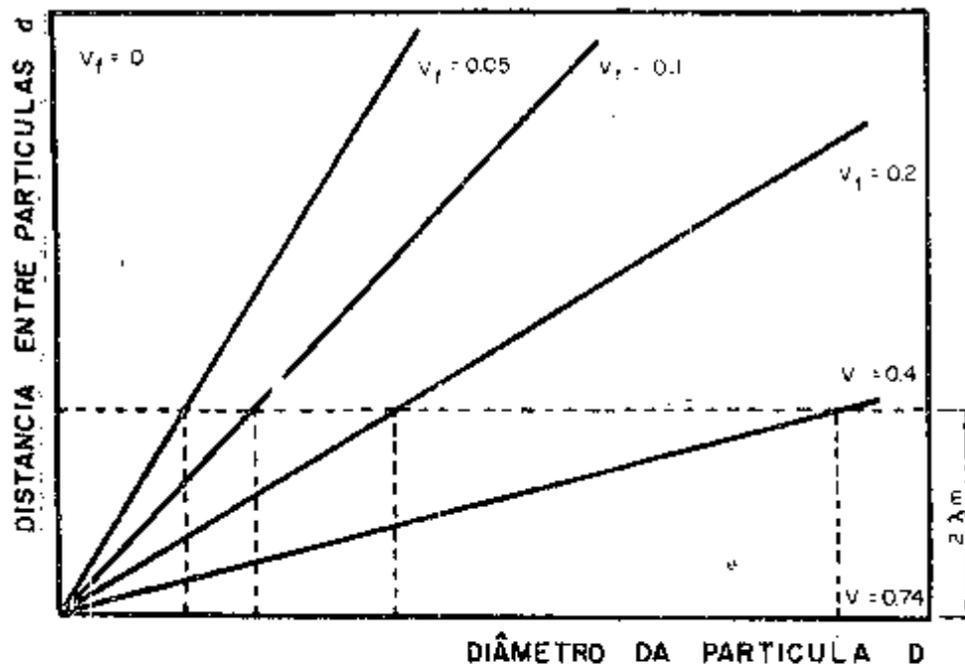


FIGURA 3 - Distância entre partículas em função de seus diâmetros, para sistemas com várias frações volumétricas.

Em geral, a distância entre as partículas é descrita como se consistisse de duas partes: danificadas (λ_m) e não danificadas (d'), onde,

$$d = d' + 2 \lambda_m \quad (2)$$

Na figura 3, a região danificada entre as partículas é indicada com uma linha tracejada paralela ao eixo das abscissas.

os pontos de intersecção entre esta linha e as linhas que representam a função $d = f(D)$, com a fração volumétrica de combustível constante, determinam o tamanho crítico das partículas para as quais as zonas danificadas da matriz estariam em contato, mas sem superposição.

A continuidade da parte não danificada da matriz é quebrada quando o tamanho das partículas é menor ou igual ao tamanho crítico.

Os efeitos dos danos de radiação na matriz são largamente dependentes do volume relativo danificado V_{dm}/V_m , onde, V_{dm} e V_m são respectivamente o volume da matriz danificada, e o volume total da matriz. Esta relação pode ser expressa em termos da fração volumétrica do combustível, do tamanho das partículas do combustível, e da distância média de recuo dos produtos de fissão no material da matriz:

$$\frac{V_{dm}}{V_m} = \frac{V_f}{1-V_f} \left[\left(1 + \frac{1}{D/2 \lambda_m} \right)^3 - 1 \right] \quad (3)$$

No projeto de elementos combustíveis, deve-se minimizar o volume da matriz sujeita a danos pelos produtos de fissão.

A parte da matriz não danificada é dada por:

$$f = \frac{V_{dm}}{V_m} \quad (4)$$

Esta quantidade é mostrada na figura 4, como uma função de $D/2\lambda_m$, para vários valores de V_f . Nessa figura, a linha trace

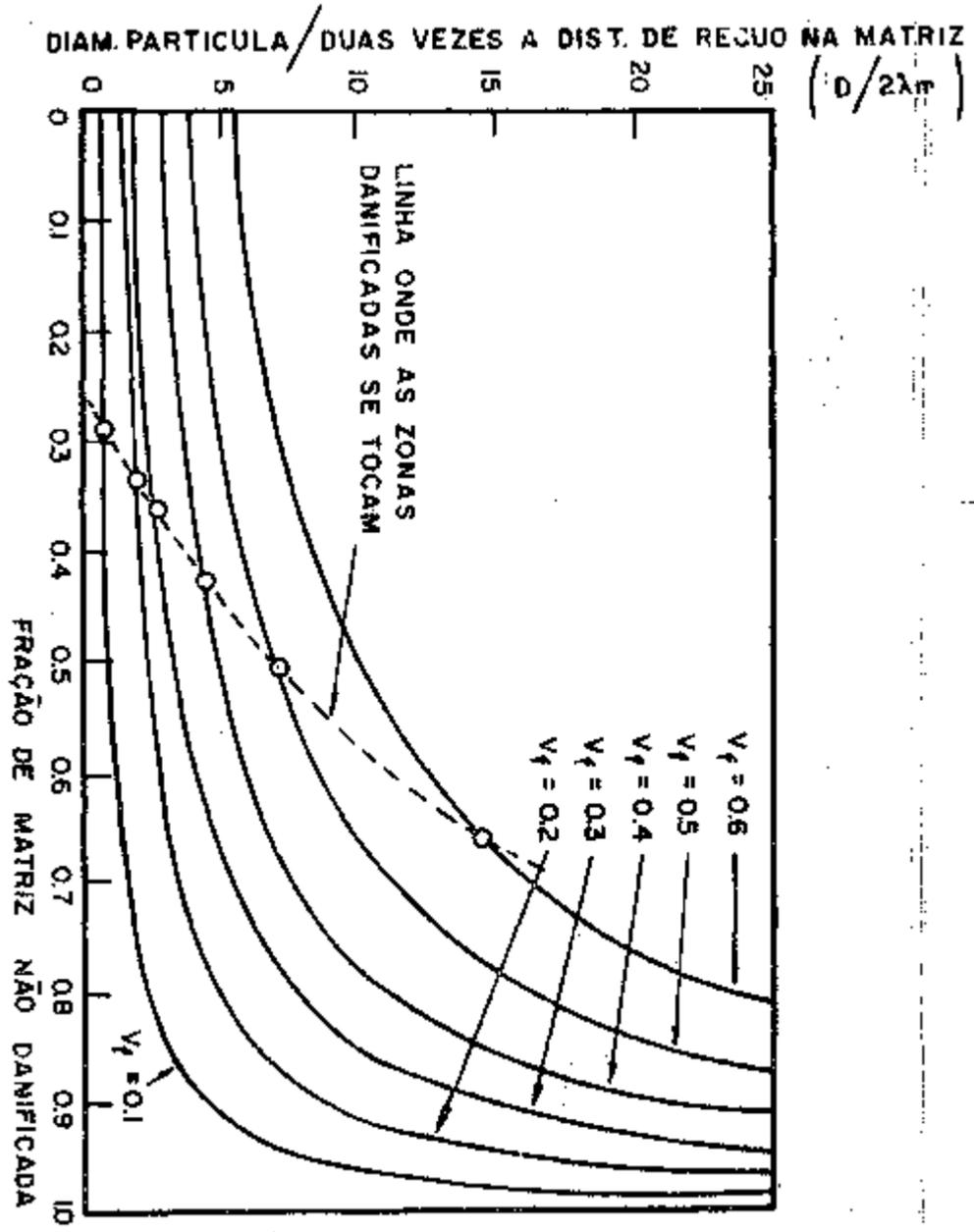


FIGURA 4 - Efeito do tamanho de partícula sobre a fração danificada da matriz.

jada indica os pontos onde existe contato das camadas danificadas ($d' = 0$). Os sistemas de interesse prático são aqueles que correspondem as partes da curva do lado direito da linha tracejada.

Os efeitos produzidos no material da matriz devido aos danos de radiação são dependentes do volume danificado, e do grau do dano. O último é afetado pela quantidade de produtos de fissão que são retidos nas partículas de combustível. O grau de retenção é afetado pela natureza física do combustível, tamanho das partículas do combustível, e caminho livre médio λ_f dos fragmentos de fissão no material combustível.

Uma fração do total dos fragmentos formados no processo de fissão permanece nas partículas de combustível, enquanto que o restante escapa das mesmas. O grau dos danos, provocados pelos fragmentos de fissão, na camada esférica da matriz, ao redor das partículas de combustível, pode ser caracterizado pela fração de fragmentos de fissão (P_a) que escapa das partículas de combustível. A fração dos fragmentos de fissão que penetra na matriz, de cresce com o aumento do diâmetro das partículas do combustível, e com a diminuição da distância percorrida pelos fragmentos de fissão no material combustível.

Weber e Hirsch⁽⁴⁸⁾ correlacionaram os parâmetros acima por meio da seguinte equação:

$$P_a = \frac{3}{4} \frac{2\lambda_f}{D} - \frac{1}{16} \left(\frac{2\lambda_f}{D} \right)^3 \quad (5)$$

A equação (5) é válida para $D \gg \lambda_f$. Todos os fragmentos de

fissão escapariam das partículas de combustível, se o diâmetro da mesma fosse igual ou menor que o caminho livre médio dos fragmentos de fissão no material combustível ($D/2\lambda_f \leq 0,5$). Um valor de λ_f em torno de 10% é normalmente utilizado em projetos de elementos combustíveis.

As considerações acima se referem a concentrações médias dos produtos de fissão nas partes danificadas da matriz. Na realidade, a concentração dentro das partículas e nas zonas danificadas da matriz não é uniforme, mas depende do diâmetro das partículas de combustível e da distância entre elas. Esta relação é mostrada esquematicamente na figura 5a, para três casos: 1) com a zona de penetração do produto de fissão menor que o raio da partícula, 2) com a zona de penetração do produto de fissão maior que o raio da partícula, mas menor que o diâmetro; e 3) com a zona de penetração do produto de fissão maior que o diâmetro da partícula. Os possíveis esquemas de distribuição dos produtos de fissão em duas partículas adjacentes de mesmo diâmetro e no espaço entre elas, são mostrados nas figuras 5b e 5c, em função do tamanho de partículas e da distância entre elas.

Estes fatores da distribuição das concentrações dos produtos de fissão devem ser levados em consideração durante o projeto dos elementos combustíveis de dispersões.

Uma avaliação quantitativa da estabilidade sob irradiação de elementos combustíveis de dispersões, não deve se basear somente nas regras descritas acima, pois a vida em serviço do elemento combustível pode ser afetada por muitos outros fatores. Entretanto, as considerações acima sobre danos de radiação servem como um ponto de partida na avaliação preliminar do desempenho dos

elementos combustíveis de dispersões.

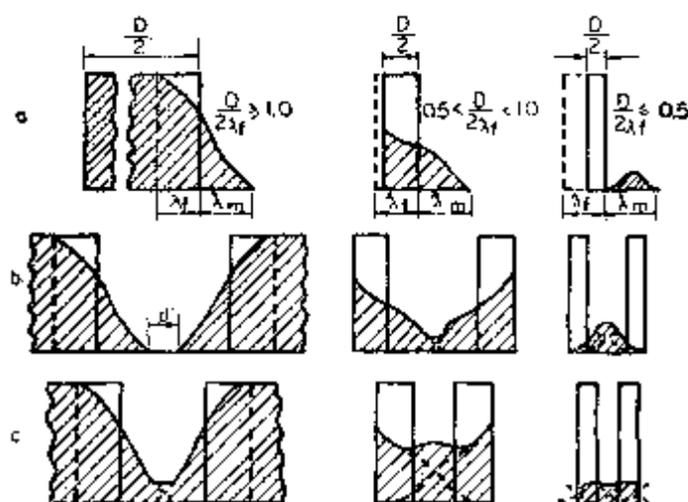


FIGURA 5 - Concentração dos produtos de fissão em combustíveis à base de dispersão.

II.5. Dispersões Reais

Existem alguns sistemas, onde as dispersões reais chegam a estar próximas do caso ideal. Partículas de combustível torna das esféricas e recobertas com carbono pirolítico, com aço inoxidável ou metais refratários chegam a estar próximos do caso ideal. Entretanto, na maioria dos casos as partículas de combustível em sistemas reais são irregulares e seus tamanhos podem variar bastante, devido ao manuseio do pó que provoca produtos finos por atrito, especialmente durante a mistura. Também o processo de trabalho a quente a que é submetida a dispersão durante a fabricação da placa de elemento combustível pode provocar aglomerados, fragmentação, e alongamento de partículas. Muitas dessas imperfeições

são visíveis numa microestrutura de combustível de dispersões.

Tudo que pode ser feito com as dispersões reais é processá-las de maneira a obtê-las tão próximas ao caso ideal quanto possível. O grau de desvio da idealidade causado pelas fragmentações ou pelos alongamentos das partículas durante o processo de fabricação pode ser determinado através de metalografia quantitativa e ser relacionado com as condições de fabricação (10).

II.4. Principais requisitos na seleção de materiais para elementos combustíveis à base de dispersões

Um dos requisitos para os materiais a serem usados em elementos combustíveis à base de dispersões é que todos eles sejam compactáveis à temperatura de serviço, e à temperatura utilizada durante a fabricação dos elementos. Elementos combustíveis podem ser fabricados com materiais que não sejam inteiramente compatíveis, desde que esta incompatibilidade não ocasione riscos ao bom funcionamento do elemento combustível (18).

Os requisitos desejáveis para o material físsil são relacionados a seguir:

1) Deve conter a máxima concentração possível do isótopo físsil. O elemento combustível terá desta forma um volume mínimo, o qual favorece a estabilidade sob radiação.

2) Deve ser estável sob irradiação, isto é, deve manter suas dimensões, e deixar escapar poucos produtos de fissão.

3) Deve ter preferivelmente uma condutividade térmica alta, evitando portanto grandes gradientes de temperatura no elemen

to combustível em operação. Entretanto, materiais físseis com baixa condutividade podem ser utilizados, desde que o material da matriz seja bom condutor térmico.

4) Deve ter suficiente resistência mecânica, para não ocorrer desintegração de partículas durante o processo de fabricação do elemento combustível.

5) A composição do composto que contém o isótopo físsil não pode variar sob irradiação.

Os requisitos desejáveis para os materiais da matriz e do revestimento são:

1) Alta resistência mecânica e adequada plasticidade para suportar as tensões criadas por fatores externos e internos.

Os fatores externos que causam tensões nos elementos combustíveis são:

- a) vibração devido a flutuação do refrigerante;
- b) distorções nos componentes do núcleo do reator;
- c) pressão do refrigerante.

As tensões que podem ser induzidas por fatores internos ao elemento combustível são:

- a) térmicas associadas com gradientes de temperatura;
- b) devidas a mudanças de fase;
- c) causadas pelo aumento no volume do material físsil sob irradiação, e pelo acúmulo de produtos de fissão, ao redor das partículas de material físsil;
- d) criadas devido a diferenças na expansão térmica dos

materiais físséis, matriz e revestimento.

2) Variações na resistência mecânica e na plasticidade, provocadas pela irradiação, dentro de limites, tais que os efeitos produzidos nos elementos combustíveis em serviço sejam mínimos.

3) Alta condutividade térmica para que haja boa transferência de calor e para que não ocorram tensões térmicas durante o serviço.

4) Alta resistência a corrosão e erosão pelo refrigerante. As especificidades para corrosão e erosão da matriz podem ser menos exigentes do que para o revestimento. A resistência à corrosão do material de revestimento deve ser tal que suporte satisfatoriamente toda a vida de serviço do elemento combustível.

5) Alta resistência a fadiga por causa de tensões provocadas pelas ciclagens de temperatura no elemento combustível, resultantes das variações nas condições de trabalho.

6) Valores aproximadamente iguais de coeficientes de expansão térmica para prevenir altas tensões durante o aquecimento do elemento combustível. É desejável também que os coeficientes de expansão térmica dos materiais, da matriz e do revestimento, não sejam muito diferentes daquele do material físsil.

7) Valores de seção de choque de captura de neutrons dos materiais da matriz e do revestimento não muito altos.

8) Alto ponto de fusão e alta temperatura de recristalização, para assegurar adequada resistência na temperatura máxima de trabalho do elemento combustível. Isto é particularmente importante no caso de materiais de elementos combustíveis para reatores de alta temperatura.

Levando-se em conta os requisitos acima citados, pode-se elaborar uma lista dos compostos de urânio e de plutônio que poderão servir como materiais físséis em elementos combustíveis à base de dispersões (ver tabelas 1 e 2).

Na tabela 3 são apresentados os materiais potencialmente candidatos a matriz.

Compostos	Densidade g/cm ³	Volume de urânio por cm ³ do com- posto, cm ³	Ponto de fusão, °C
U	19,05	1,0	1132
UA1 ₄	6,06	0,22	730
UO ₂	10,96	0,51	2750
U ₃ O ₈	8,39	0,33	decompõe
UC	13,63	0,69	2350-2400
UC ₂	11,70	0,56	2450-2500
UN	14,31	0,71	2630
UZr ₂	10,3	0,31	600*
NBe ₁₃	4,73	0,15	2000
U ₂ Ti	15,22	0,73	890**
U ₃ Si	15,6	0,77	930
U ₆ Ni	17,6	0,89	790**
UA1 ₂	8,14	0,35	1590
UA1 ₃	6,8	0,26	132 (1252)
U ₆ Fe	17,7	0,91	815+
UFe ₂	13,2	0,48	1235
UPb	14,5	0,41	1280
U ₃ Si ₂	12,2	0,59	1650
U ₆ Mn	17,8	0,91	726**
U ₆ Co	17,7	0,90	830**
U ₅ Sn ₄	13,0	0,49	1500
USi	9,25	0,40	1600
USi ₂	8,98	0,38	1600
UNi ₅	11,31	0,27	1300
UCu ₅	10,6	0,24	1052

* Temperatura de desordenamento; ** Temperatura de reação peritética;
+ Temperatura de decomposição.

TABELA 1 - Compostos de urânio utilizáveis em dispersão (35)

Compostos	Densidade g/cm ³	Volume de plu- tônio por cm ³ do composto, cm ³	Ponto de fusão, °C
PuO ₂	11,46	0,51	2240
PuC	13,60	0,66	1850
PuN	14,23	0,69	--
PuBe ₁₃	4,36	0,15	1700
PuFe ₂	12,53	0,44	1230
Pu ₂ C ₃	12,70	0,30	2200
PuAl ₂	8,09	0,34	1480
PuAl ₃	6,89	0,26	1270
PuAl ₄	6,11	0,38	920

TABELA 2 - Propriedades dos compostos de plutônio (35)

Metal	Ponto de fusão °C	Seção de choque de absorção microscó- pica*, barns	Seção de choque macroscópica, cm ² /cm ³
Al	660	0,22	0,015
Be	1282	0,01	0,0013
Fe	1535	2,4	0,20
Mg	651	0,059	0,0025
Mo	2610	2,4	0,15
Nb	2468	1,1	0,061
Ni	1452	4,5	0,41
Ti	1668	5,8	0,33
V	1890	4,7	0,33
Zr	1852	0,18	0,008

* energias térmicas

TABELA 3 - Metais potencialmente candidatos a matriz (48)

A partir dos dados da tabela I, foi feito um gráfico da concentração em peso de urânio em função da fração volumétrica de alguns compostos de urânio para uma dispersão onde a matriz é de alumínio (figura 6).

Nessa figura nota-se a grande variação que existe na fração volumétrica dos compostos de urânio, para a mesma concentração de urânio, numa dispersão onde a matriz é alumínio; se por exemplo, for usado urânio metálico em vez de UAl_4 , a fração volumétrica da fase dispersa é cerca de quatro vezes menor.

Levando-se em conta principalmente esse fator, é que foi escolhido para este trabalho o sistema urânio metálico-alumínio, embora sabendo-se da reatividade entre os dois metais, a qual foi estudada por diversos pesquisadores (3,6,9,17,26,27,30,31), alguns dos quais apresentam resultados conflitantes.

11.5. Processo de fabricação de elementos combustíveis

Neste item discute-se a fabricação dos elementos combustíveis do ponto de vista de processamento metalúrgico. Os detalhes específicos da fabricação dos elementos serão discutidos no próximo capítulo. Diversas revisões na literatura (4,5,22,23,27,29,32,33,42,43,44,45,46) oferecem informações detalhadas sobre a fabricação de elementos combustíveis a base de dispersões.

11.5.1. Fabricação de Núcleos

O método empregado para fabricação de núcleo de elementos combustíveis de dispersões é o de metalurgia do pó, que consiste na utilização de materiais combustíveis e da matriz na for

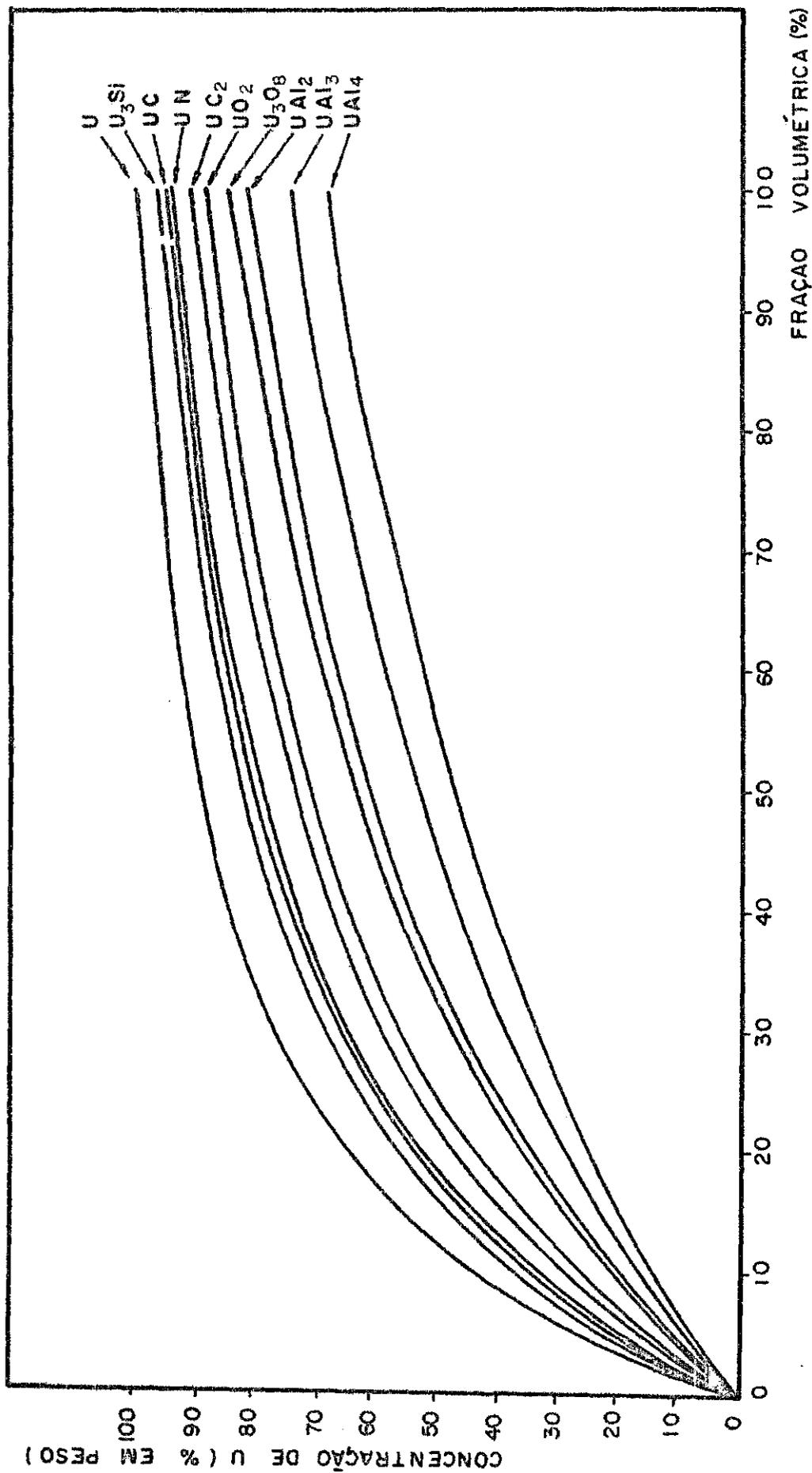


FIGURA 6 - Concentração em peso de urânio em função da fração volumétrica de alguns compostos de urânio para dispersão com matriz de alumínio.

ma de pós, misturando-os nas devidas proporções e compactando-os.

As principais vantagens do método de metalurgia do pó para produção de núcleos de dispersões para elementos combustíveis, são listadas a seguir:

1) As temperaturas utilizadas durante o processo de fabricação são usualmente menores que a temperatura de fusão dos materiais da matriz e do combustível. Nessas condições são mais numerosos os materiais que podem ser utilizados em núcleos de elementos combustíveis, devido a maior compatibilidade dos mesmos em temperaturas relativamente mais baixas.

2) O método permite a produção de dispersões que de outra forma seriam difíceis ou impossíveis de serem preparadas. Exemplos de tais sistemas são aqueles constituídos de matriz metálica e combustível cerâmico e aqueles com uma estrutura complexa, no qual cada partícula é envolta por uma camada metálica de grafite ou cerâmica.

3) Não existem dificuldades para produzir dispersões, no qual as partículas de combustível, de tamanho e forma especificadas, estejam uniformemente distribuídas dentro do volume da matriz.

4) A perda de material durante a fabricação é muito pequena.

A fabricação de núcleos de elementos combustíveis por metalurgia do pó, envolve usualmente os seguintes estágios:

- 1) Preparação dos pós do combustível e da matriz.
- 2) Pesagem e mistura dos pós a serem utilizados na dispersão.

3) Compactação dos pós misturados para obter o núcleo na forma e tamanho especificados.

4) Tratamento térmico (sinterização) do núcleo prensado para reduzir sua porosidade e para atingir os valores requeridos de densidade, resistência mecânica, condutividade térmica, etc. Em alguns sistemas este tratamento não é necessário, pois os valores especificados são obtidos somente com a compactação.

II.5.2. Fabricação de placas combustíveis

Para a fabricação de placas de elementos combustíveis foi utilizada a técnica de montagem de núcleo, moldura e revestimento (picture frame technique) e posterior laminação a quente. Esta técnica é bastante utilizada na fabricação de elementos combustíveis tipo placa (15,16,19,25,31,37,50).

Após a montagem do núcleo na moldura e a colocação dos revestimentos, as bordas do conjunto são soldadas, deixando os cantos sem solda, para facilitar o escape de gases do interior do sistema nos primeiros passos da laminação.

A figura 7 apresenta o esquema de um conjunto antes da laminação. Normalmente para se obter um bom aquecimento entre o núcleo e o revestimento, a redução, durante a laminação, deve ser maior do que 60% em espessura.

O núcleo do combustível é facilmente localizado após a laminação, por meio de radiografias, devido a grande diferença de densidade entre o combustível e o revestimento.

Um diagrama esquemático do processo completo de fabrica

ção das placas de elementos combustíveis, utilizado neste trabalho, é apresentado na figura 8.

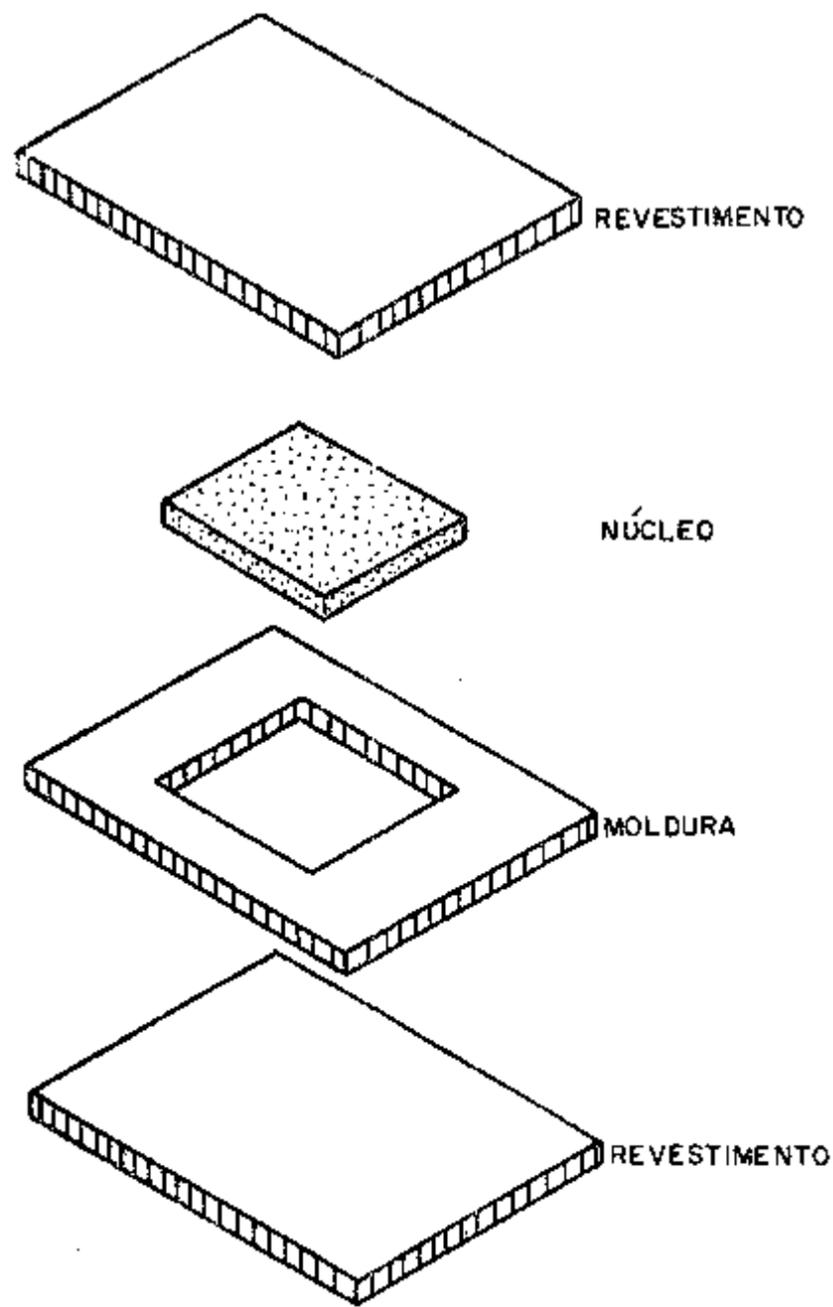


FIG - 7 ESQUEMA DO CONJUNTO A SER LAMINADO

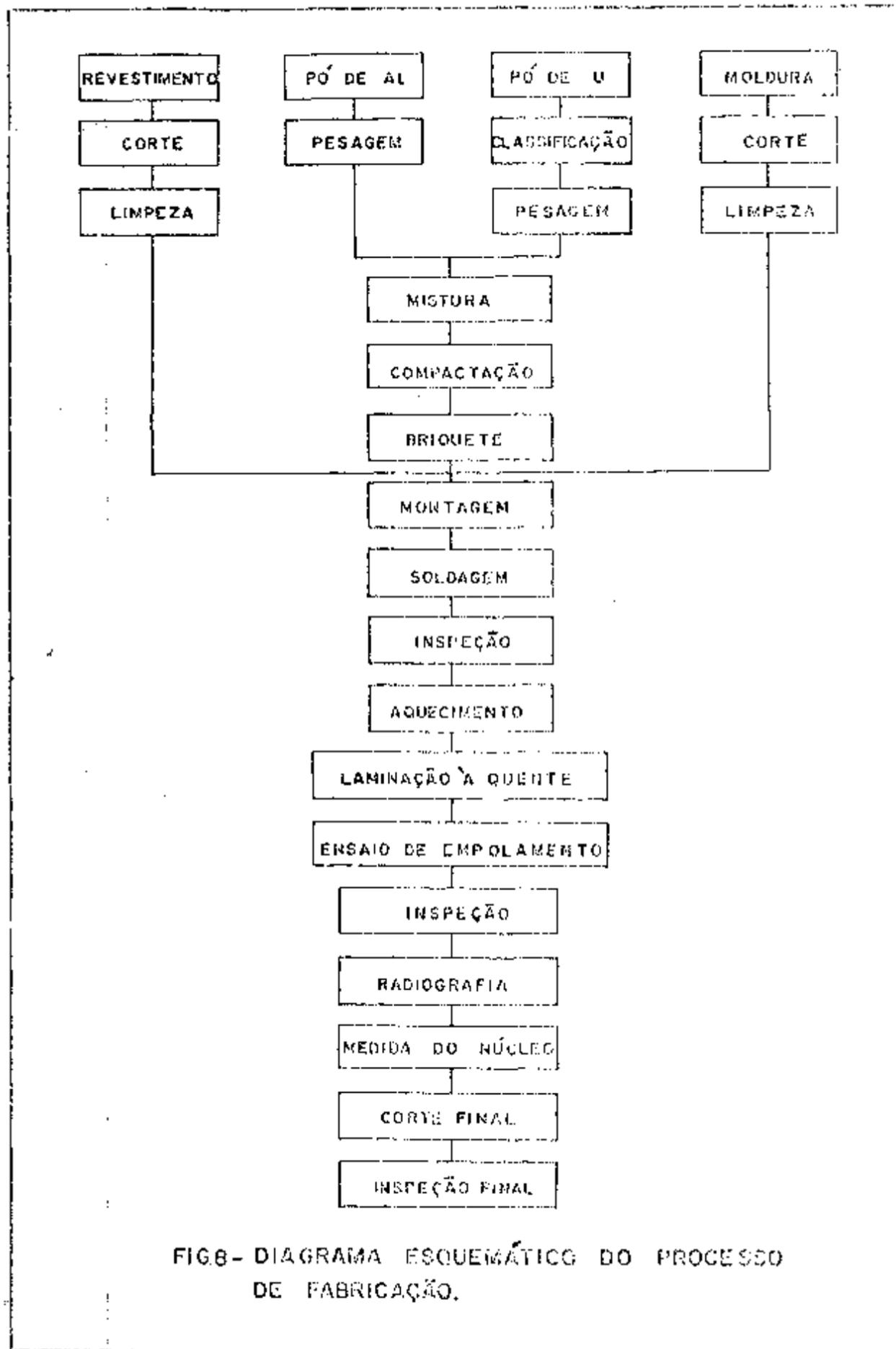


FIG8- DIAGRAMA ESQUEMÁTICO DO PROCESSO DE FABRICAÇÃO.

III - TÉCNICA EXPERIMENTAL

III.1. Materiais

III.1.1. Alumínio

Utilizou-se alumínio 1100, em forma de chapas, de 3,2 mm de espessura, para o revestimento e para a moldura do elemento combustível. Também na matriz foi utilizado alumínio 1100, mas em forma de pó (adquirido de Indústria Metalúrgica Belgo Brasileira). A composição química nominal do alumínio 1100 é apresentada na tabela 4. A distribuição granulométrica das partículas do pó de alumínio é dada na tabela 5, enquanto que a figura 9 apresenta a morfologia do mesmo.

Al	99,00 mín
Fe+Si	1,00 máx
Cu	0,20 máx
Mn	0,05 máx
Zn	0,10 máx
Outros	0,15 máx

TABELA 4 - Composição química nominal do alumínio 1100 (% em peso)

Tamanho, μ	Peneiras, malhas por polegada linear	% em peso
> 149	+ 100	0
149 - 105	- 100 + 150	4,2
105 - 53	- 150 + 270	84,1
53 - 44	- 270 + 325	9,7
< 44	- 325	2,0

TABELA 5 - Distribuição granulométrica do pó de alumínio



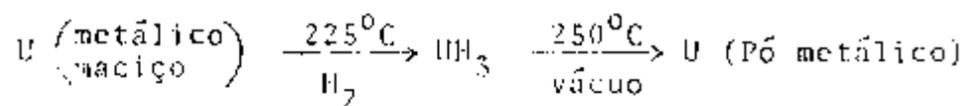
FIGURA 9 - Pó de alumínio 1100 - Aumento 50 X

III.1.2. Pó de urânio metálico

Três processos foram utilizados com a finalidade de se obter urânio metálico em pó: a) hidretação; b) redução; c) mecânico.

a) Processo de hidretação

O processo de hidretação ocorre através de uma reação reversível entre o metal e o hidrogênio em determinadas condições de temperatura e pressão (12,51).



As experi\u00eancias foram realizadas em forno com atmosfera controlada (Wild Barfield), obedecendo-se a sequ\u00eancia abaixo:

Um pedaço de urânio metálico com cerca de 20g, retirado de um tarugo de urânio refinado a vácuo, foi colocado em cadinho de aço inoxidável e introduzido na câmara de aquecimento do forno, que foi evacuada até 5×10^{-5} torr. Posteriormente fez-se a introdução de hidrogênio na câmara do forno atingido a pressão de 1,8atm.

Foi iniciado então o aquecimento do forno até atingir 225°C , na qual a velocidade de reação entre o hidrogênio e o urânio é máxima (51), permanecendo nesta temperatura até que todo o urânio se transformasse em UH_3 (aproximadamente 30 minutos). Após a completa hidretação, desligou-se o sistema de aquecimento do forno. Quando a temperatura interna atingiu a ambiente, a câmara do forno foi novamente evacuada até 5×10^{-5} torr. Depois seguiu-se novo aquecimento até 250°C , permanecendo nesta temperatura até que todo o UH_3 , que é um pó fino, se transformasse em pó de urânio metálico, sendo em seguida a temperatura elevada para 800°C , permanecendo nesta por 30 minutos com o objetivo de se fazer uma pré-sinterização do pó e assim evitar a piroforicidade do mesmo, devido a diminuição da área superficial. Depois deste tratamento, o forno foi desligado e quando a temperatura interna atingiu a temperatura ambiente, ele foi aberto.

Os resultados obtidos por este método, após ter-se feito muitas variações, não foram satisfatórios, ocorrendo a oxidação do pó ou durante a sua fabricação ou quando a câmara do forno era aberta.

b) Processo de redução

As experiências de redução de óxidos foram realizadas em reservatórios de aço, hermeticamente fechados (bomba de redução), colocando no seu interior a carga a ser reduzida. A superfí

cie interna da bomba de redução foi revestida com material refratário, pois a temperatura durante a reação pode atingir até 1600°C.

A carga a ser reduzida, constituída de UO_3 , Cu ou Mg (como agentes redutores) e $CaCl_2$ (como fluxo). Tanto o cálcio quanto o magnésio foram adicionados com 50% em excesso com relação a estequiometria, enquanto que o fluxo ($CaCl_2$) foi colocado na proporção de 10% em peso do total da carga.

Após a bomba de redução ser fechada, a mesma foi introduzida em um forno tipo mufla e aquecida a uma taxa de 300°C/h, até atingir a temperatura de reação, que é de 730°C (51). Em algumas experiências, após ter ocorrido a reação, elevou-se a temperatura até 1200°C, permanecendo constante por 2 horas, a fim de se obter aglomeração das partículas originalmente muito finas.

A separação do pó de urânio do restante da carga (escória, refratário, etc.) foi feito lixiviando-se todo o material por várias vezes com uma solução 6N de ácido acético, e posterior lavagem em álcool.

Muitas experiências foram realizadas, variando-se a temperatura, a porcentagem dos componentes da carga, o refratário de revestimento da bomba, a atmosfera do forno, o tamanho da bomba de redução, a compactação da carga, mas não se chegou a resultados satisfatórios, pois também neste caso o pó produzido oxidou, antes mesmo da bomba ser aberta.

Os resultados dos processos a e b, poderiam ter sido satisfatórios, caso as experiências tivessem sido realizadas em ambientes com atmosfera totalmente controlada, condição essa que

poderia, por exemplo, ser cumprida com utilização de caixas de luvas com atmosfera inerte.

c) Processo mecânico

Inicialmente produziu-se urânio metálico através da redução de UF_4 com cálcio e com magnésio em bombas de redução, com um rendimento no processo de 94%. Este urânio metálico foi então refundido em vácuo de 10^{-4} torr, obtendo-se tarugos de urânio refinado. A análise química deste urânio é mostrada na tabela 6.

Si	220 ppm
Fe	150 ppm
Mg	100 ppm
Cu	38 ppm
Mn	12 ppm
Cr	10 ppm
Ni	12 ppm

TABELA 6 - Análise química do urânio refinado

Desses tarugos, foram retirados raspas com cerca de 100 μ m de espessura e de comprimento variando de alguns milímetros até cerca de 10 cm. Estas raspas foram retiradas em torno mecânico a uma velocidade de 75 rpm, sendo limpas em solução 1:1 de ácido nítrico. Posteriormente essas raspas foram trituradas num moinho Fritch Pulverisetti tipo 00.001 até que as mesmas se tornassem pequenas partículas.

O tamanho de partícula ideal deve estar entre um tamanho mínimo, o qual foi calculado através da fórmula (1), e um tamanho

máximo que é limitado pelas condições de fabricação e que deve estar entre um quarto e um terço de espessura final do núcleo do elemento combustível (48). Como a espessura nominal do núcleo de placas combustíveis para o reator IEA-RI é de 50 μm e levando-se em conta essas regras, as partículas foram selecionadas, através de peneiramento, no intervalo de 150 e 270 mesh, onde as partículas podem possuir um tamanho de 53 a 105 μm (figura 10).

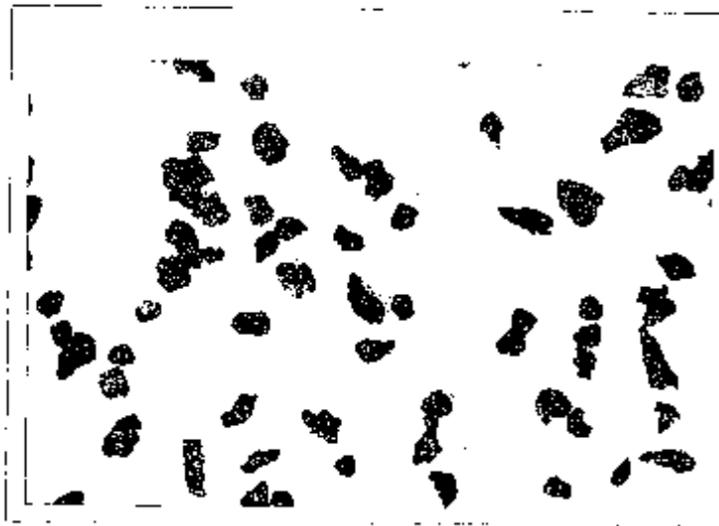


FIGURA 10 - Pó de urânio selecionado por peneiramento entre 53 e 105 μm - Aumento 50X

Antes de ser feita a mistura com o pó de alumínio, o pó de urânio foi submetido a uma nova limpeza em solução 1:1 de ácido nítrico.

III.2. Mistura e compactação dos pós de alumínio e urânio

Após a pesagem dos pós de urânio e alumínio nas devidas

proporções, fez-se a mistura, umidecendo-os em álcool, para se obter uma distribuição mais homogênea das partículas. A prensagem foi feita a frio, em prensa hidráulica manual, com capacidade para 100 toneladas, utilizando-se matrizes cilíndricas de vários diâmetros e matriz retangular. Produziram-se cerca de 100 pastilhas, com diâmetros de 8,0, 10,0 e 12,0 mm e altura entre 3,2mm e 20,0mm e briquetes com 64,0 X 32,0 X 3,2 mm³. Para maior facilidade de extração das pastilhas, utilizou-se estearato de zinco como lubrificante.

III.3. Determinação do comportamento plástico das dispersões

A determinação do comportamento plástico das dispersões foi feito por meio de ensaios de compressão em máquina de ensaios mecânicos Instron, modelo 1125, utilizando-se corpos de provas cilíndricos com 10 mm de diâmetro e 20 mm de altura. Três amostras foram sujeitas a ensaios, sendo uma de pó de alumínio compactado, outra de Al-U (45% em peso de U) e a terceira de Al-U (87% em peso de U). O objetivo destes ensaios foi comparar as propriedades plásticas das dispersões com as da amostra de alumínio, obtendo-se informações a respeito da facilidade ou não da laminação destas dispersões.

III.4. Montagem do conjunto moldura-núcleo-revestimento e laminação

Os conjuntos destinados a fabricação de placas de elementos combustíveis por laminação são construídos por moldura e revestimentos de alumínio 1100 e por núcleo de dispersão de urânio e alumínio. Essa técnica é bastante utilizada para a fabricação de elementos combustíveis planos para reatores de pesquisa (Cf. se

ção II.5.2 e mostrado na figura 7).

Após o ajuste da moldura e das chapas de revestimento, as mesmas foram decapadas por imersão em solução aquosa com 10% de soda cáustica, à temperatura de 80°C, por 3 minutos, seguida de lavagem em água e neutralização em solução de ácido nítrico a 50% em volume por 2 minutos, lavagem em água quente e secagem.

As partes foram então montadas e o conjunto foi preso por grampos para permitir a soldagem das bordas.

A soldagem foi feita pelo processo TIG, soldando-se cada lado com um cordão contínuo. Os quatro cantos não foram soldados para possibilitar o escape de gases internos nos primeiros passos da laminação.

A laminação foi feita à temperatura de 600°C, utilizando um laminador de precisão "Stannat-Mann". O aquecimento foi feito em forno tipo mufla, sendo que antes do primeiro passo de laminação o conjunto ficou por 30 minutos na temperatura de 600°C, para que houvesse perfeita homogeneização. Após cada passo de laminação, o conjunto voltava para o forno permanecendo nesse por 5 minutos para que houvesse uma recuperação do material deformado, facilitando desta forma a deformação seguinte.

Após a laminação das placas foi realizado nas mesmas o ensaio de empolamento (blister test) a 500°C por 1 hora. Este ensaio tem como objetivo salientar possíveis falhas devidas à falta de caldeamento durante a laminação.

III.5. Radiografia

As placas que não apresentaram defeitos após o ensaio de empolamento, foram submetidas a exames radiográficos. As radiografias foram feitas com a finalidade de: 1) observar-se possíveis defeitos devido a laminação, principalmente defeitos terminais no núcleo (que são muito comuns nestes casos), 2) verificar a homogeneidade da dispersão após a laminação e determinar com exatidão a localização do núcleo, para permitir o corte das bordas das placas.

Foi utilizado o aparelho de raios X Sperry 500KVP, operando com uma voltagem de 75 kV, corrente de 1 mA e tempo de 15 segundos. O filme utilizado foi o Kodak tipo AA54 de grão fino.

III.6. Tratamentos térmicos

Foram feitos tratamentos térmicos em diferentes temperaturas e tempos em pastilhas de alumínio-urânio com diâmetro de 10,0mm e altura de 3,2mm e também em amostras provenientes de placas laminadas.

Estes tratamentos térmicos foram realizados com o objetivo de se conhecer o desenvolvimento da reação entre o urânio e o alumínio na dispersão, sendo os produtos desta reação posteriormente identificados por difração de raios-X e metalografia ótica.

As pastilhas foram encapsuladas em tubo de pirex sob vácuo de 5×10^{-5} torr, enquanto que as amostras provenientes das placas laminadas foram tratadas em atmosfera normal, pois neste caso o núcleo estava protegido do meio exterior pelo revestimento de

alumínio.

Os tratamentos foram feitos em fornos tipo mufla e a temperatura foi controlada para ter apenas pequenas flutuações ($\pm 5^{\circ}\text{C}$) durante todo o tempo de tratamento.

Os valores de temperaturas e de tempos de tratamentos são mostrados na tabela 7.

III.7. Difração de raios-X

Para identificação dos produtos de reação entre urânio e alumínio nas dispersões, foi empregada a técnica de difração de raios X.

O aparelho utilizado foi um de marca RIGAKU DENKI tipo SG-7, com tubo de cobre operando a 40 kV e 24 mA, com filtro de níquel, e contador de cintilação. O ângulo de divergência utilizado foi de 1° e a radiação foi a $K\alpha$ do cobre ($\lambda = 1,542\text{\AA}$).

O diagrama esquemático do aparelho é apresentado na figura 11.

Foram obtidos diagramas de difração, na temperatura ambiente, de todas as amostras tratadas termicamente como mostrado na tabela 7. Após os tratamentos térmicos, as pastilhas foram polidas até que as superfícies se apresentassem sem defeitos. Para as amostras provenientes das placas laminadas, o polimento foi feito até se atingir o centro da placa, no qual o núcleo se apresenta totalmente exposto.

Tempo de tratamento (h)	Temperatura (°C) e tipo de amostra	100°C		300°C		600°C	
		Pastilha vácuo	Placa	Pastilha vácuo	Placa	Pastilha vácuo	Placa
1						x	
2						x	x
3						x	x
5						x	x
8						x	
10		x		x	x	x	x
15						x	x
20		x	x	x	x	x	x
30			x		x	x	x
40		x	x	x		x	
50			x		x	x	x
60		x	x				
95			x		x		x
100		x		x			
150		x		x			
180			x				
200		x		x			
240			x				

TABELA 7 - Quadro mostrando as temperaturas e tempos de tratamentos sofridos pelas pastilhas e amostras provenientes de placas laminadas.

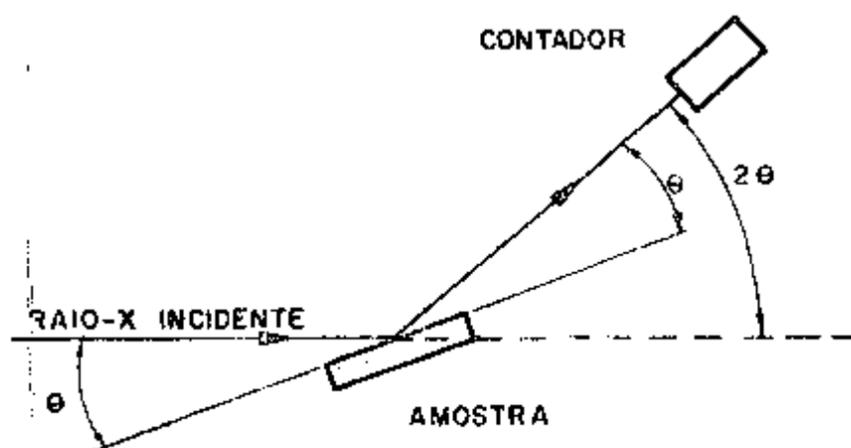


FIGURA 11 - Arranjo experimental usado para análise de difração de raios-X

III.8. Metalografia

Esta análise foi utilizada para determinar a homogeneidade das dispersões antes e após a laminação, observar o caldeamento do núcleo com o revestimento, assim como verificar onde e como a reação se desenvolve nas amostras tratadas termicamente.

Todas as amostras usadas nesta análise foram polidas sucessivamente em papel abrasivo (400, 500, 600, 3-0 e 4-0) e em alumina ($0,05\mu\text{m}$). As amostras que haviam sido tratadas termicamente, após o polimento permaneceram durante um dia expostas ao ar para que o urânio que ainda não havia reagido durante o tratamento oxidasse, diferenciando-se assim dos produtos de reação.

III.9. Dilatometria

A reação do urânio com o alumínio também foi estudada pelo método dilatométrico, utilizando-se um dilatômetro universal modelo URD.

As amostras de dispersões de alumínio-urânio (45% em peso de U) utilizadas foram pastilhas com 8,0mm de diâmetro por 7,0 mm de altura compactadas a frio.

Os ensaios foram realizados isotermicamente a 400°C, 450°C, 500°C e 550°C por um tempo de 5 horas.

Utilizou-se atmosfera de argônio purificado pela passagem do argônio através de "trap", contendo limalhas de urânio metálico mantido a 500°C durante o ensaio, onde o oxigênio presente era retido.

III.10. Análise da penetração do urânio através do revestimento de alumínio

Para verificar se houve penetração de urânio através do revestimento de alumínio, utilizou-se placas em miniatura contendo como núcleo pastilhas deformadas de dispersões de alumínio-urânio com 45% em peso de urânio. A figura 12 apresenta uma das placas utilizadas para este fim.

Essas placas sofreram tratamentos térmicos por 96 horas a 60°C, 100°C, 300°C e 600°C. Após os tratamentos térmicos, foram retiradas amostras dessas placas, as quais foram analisadas por energia dispersiva de raios-X (EDAX). As medidas por meio do

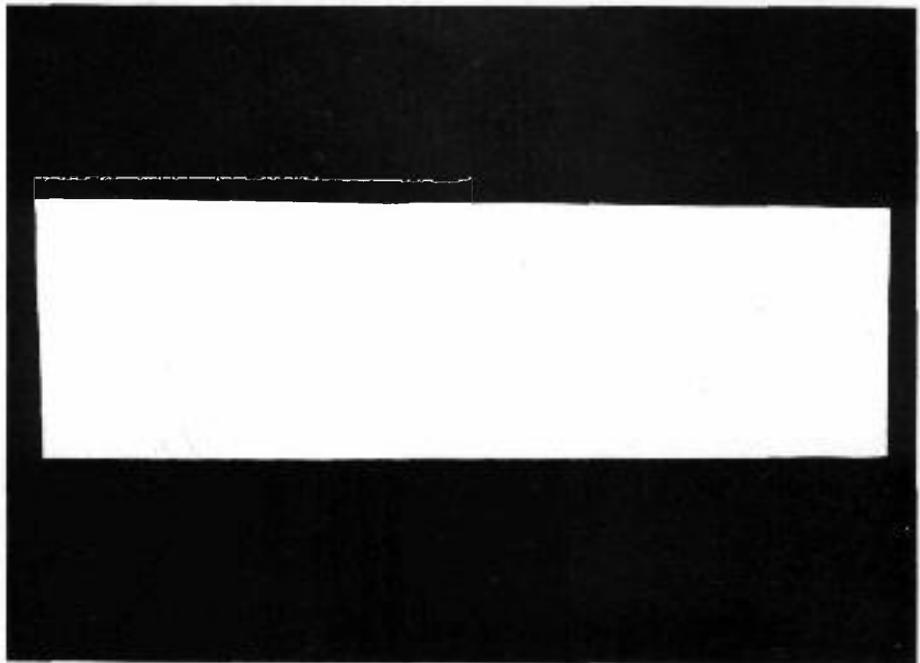


FIGURA 12 - Placa em miniatura de elemento combustível a base dispersão do Al-U (45% em peso), de onde foram tiradas amostras para análise de penetração de urânio no revestimento de alumínio.

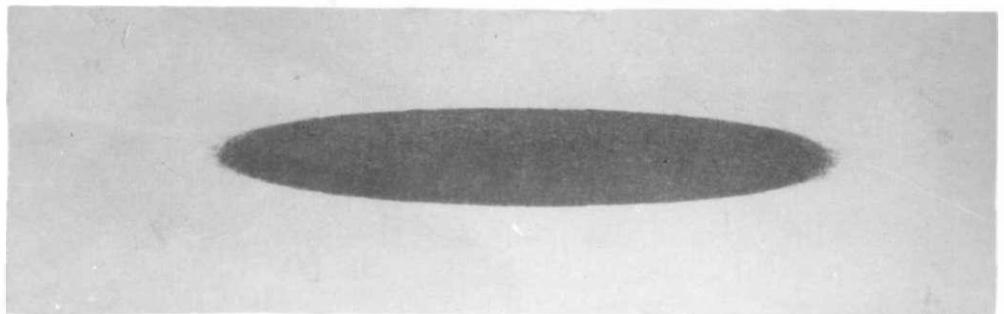


FIGURA 13 - Radiografia da placa utilizada no ensaio de irradiação, antes do início do ensaio.

EDAX foram feitas da superfície externa da placa até o centro da mesma após sucessivos polimentos e contagens a cada 100µm. O aparelho utilizado para esta análise foi o EDAX 707 B que está acoplado a um microscópio eletrônico de varredura marca Cambridge, modelo S-4.

As condições de operação durante as medidas foram as seguintes:

a) Condições do MEV

Corrente do filamento - 2,2 A
Corrente do feixe - 185µA
Tensão do feixe - 18 kV
Aumento - 50 X

b) Condições do EDAX

Escala vertical - 10 000 X
Intervalo de energia - 0 - 4 keV
Contagem de alumínio - 40.000

III.11. Ensaio de irradiação

Uma placa em miniatura, contendo como núcleo dispersão de urânio-alumínio com 45% em peso de urânio, medindo 136,85mm de comprimento, 41,95mm de largura e 1,56mm de espessura, foi irradiada no reator de pesquisas IBA - R1. A figura 13 mostra a radiografia da placa antes da irradiação.

A placa para ser irradiada foi colocada em um dispositivo, o qual a isolou da água da piscina do reator, evitando assim contaminações da água da piscina devido a possíveis danos provoca

dos na placa durante a irradiação. Um esquema do dispositivo utilizado para a irradiação é mostrado na figura 14.

A irradiação foi feita em duas etapas, inicialmente na posição 01 onde o fluxo de nêutrons é de $1,6 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ e posteriormente na posição 21 onde o fluxo de nêutrons é de $2,5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$. O fluxo de Nêutrons integrado foi de $8,663 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$.

A temperatura da superfície da placa durante a irradiação foi monitorada por meio de um termo-par que indicou $32^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$ durante o tempo de irradiação.

A cada 15 dias retirou-se a placa do interior do dispositivo para uma inspeção visual, a fim de se verificar possíveis falhas ocasionadas pela irradiação.

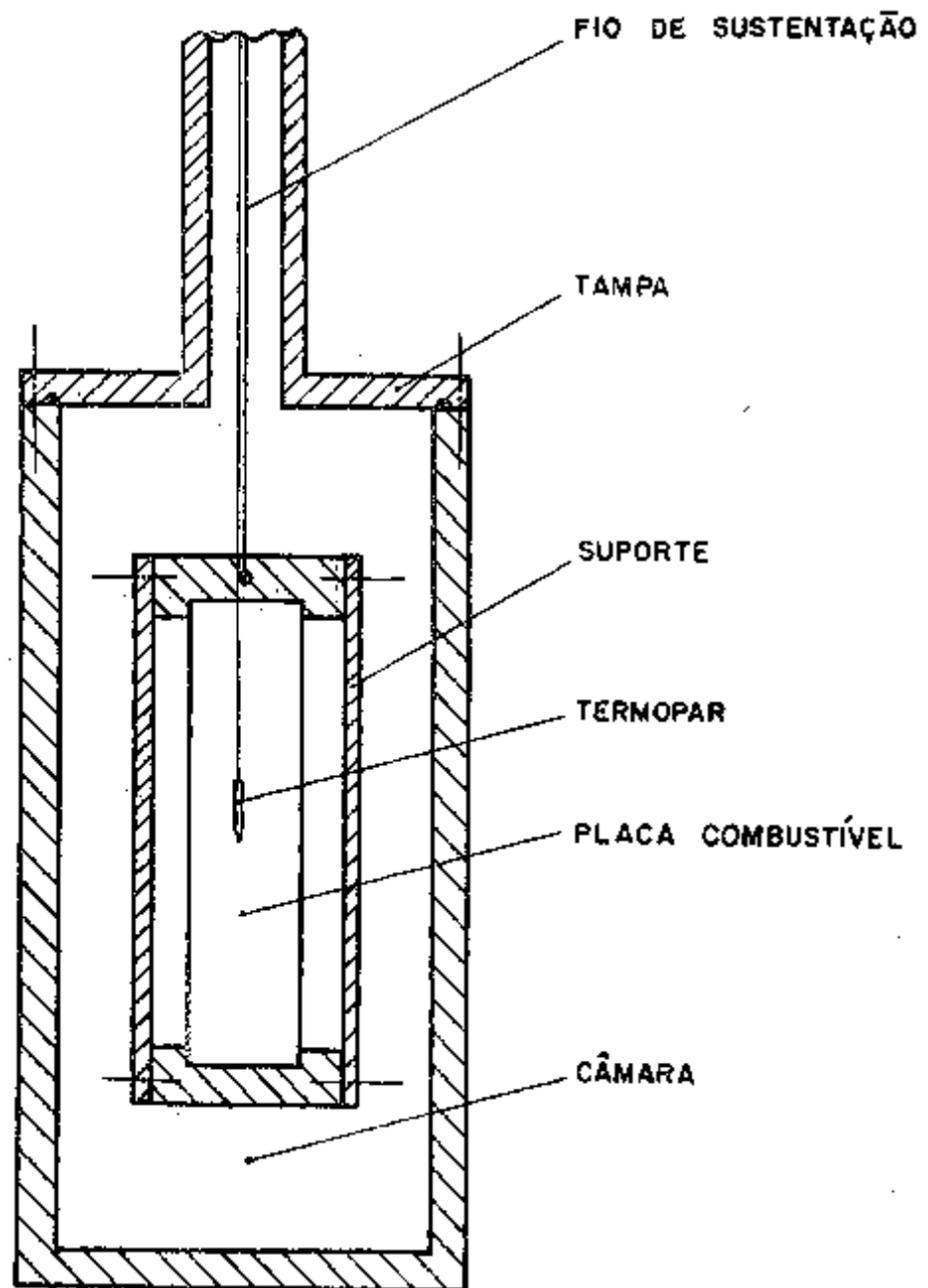


FIGURA 14 - Dispositivo utilizado para a irradiação da placa de elemento combustível no reator IEA-R1.

IV - RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste capítulo são apresentados e discutidos os resultados de cada etapa deste trabalho.

IV.1. Obtenção do pó de urânio

Após diversas tentativas mal sucedidas com o objetivo de se obter pó de urânio nos tamanhos desejados, pelos métodos de hidratação e redução, descritos no capítulo anterior, o mesmo foi obtido através do processo mecânico, utilizando-se raspas de tor no, trituração e seleção por peneiramento.

A obtenção de pó de urânio por esse método é bastante demorada, devido a trituração ser dificultada pelo fato do urânio apresentar relativa dutilidade e os pós finos serem altamente piroforicos, exigindo cuidados especiais, tais como a imersão do urânio em líquidos protetores (benzeno-querozene) durante a trituração.

Como, para uma carga completa de elementos combustíveis para reatores de pesquisa e ensaios de materiais a quantidade de urânio é inferior a 10 quilogramas, o processo pode ser considerado satisfatório.

As perdas de urânio durante o processo, tomando-se todas as precauções são aceitáveis uma vez consideradas as recomendações da Agência Internacional de Energia Atômica, pois são inferiores a 3%.

1V.2. Compactação

O comportamento das dispersões de urânio-alumínio, com relação à compactação, foi estudado por meio do cálculo da densidade geométrica de pastilhas com 10,0mm de diâmetro e 3,2mm de altura. A densidade foi calculada inicialmente em função da pressão de compactação, utilizando-se dispersões com 45% em peso de urânio, como mostrado na figura 15.

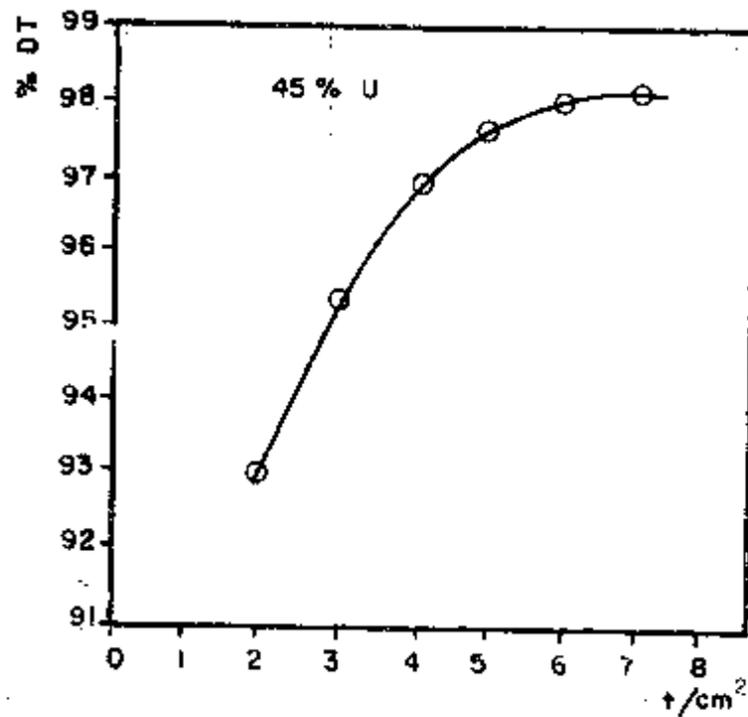


FIGURA 15 - Porcentagem da densidade teórica em função da pressão de compactação, para pastilhas de alumínio com 45% em peso de urânio.

Baseando-se nos dados da figura 15, a pressão de 5 t/cm^2 foi utilizada na preparação de todos os corpos de prova para usos posteriores, pois, a partir desta pressão, a densidade

pouco é aumentada, mesmo empregando um esforço muito grande, o que poderia também danificar as matrizes.

Outro estudo foi feito levantando-se a curva de porcentagem da densidade teórica da mistura em função da variação de concentração de urânio nas dispersões, fixando-se a pressão de compactação em 6 t/cm^2 (figura 16).

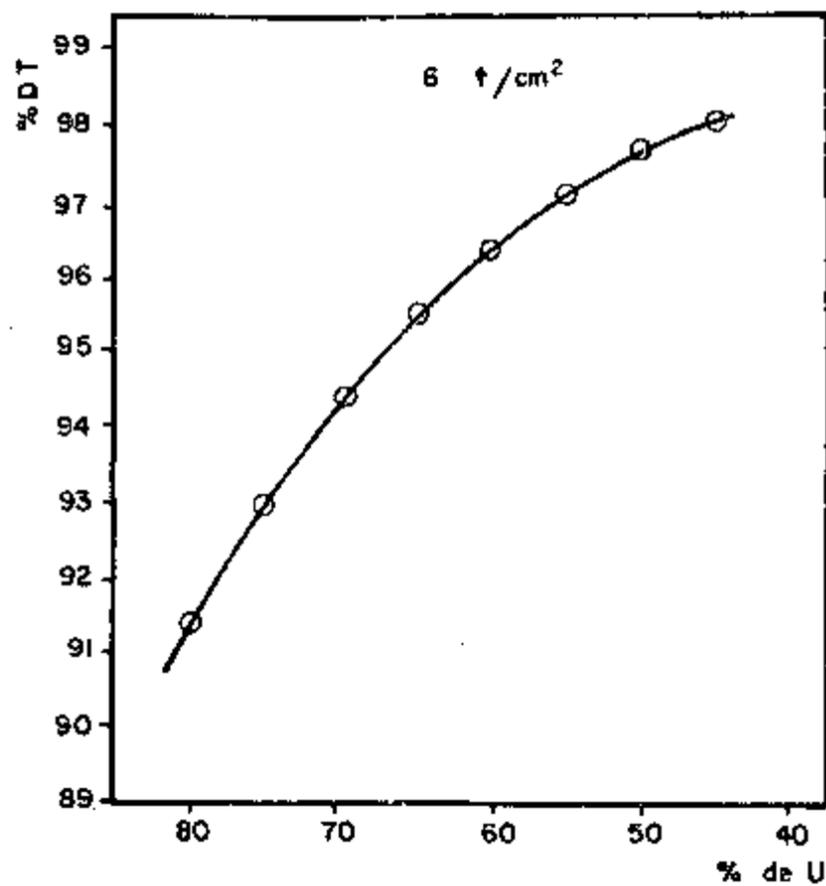


FIGURA 16 - Porcentagem da densidade teórica em função da concentração de urânio, para pastilhas de urânio-alumínio compactadas a 6 t/cm^2 .

A densidade teórica das dispersões foi calculada por meio da fórmula abaixo

$$\delta_t = \frac{\delta_{Al} \delta_u}{X_{Al} \delta_u + (1 - X_{Al}) \delta_{Al}}$$

onde: δ_t é a densidade da dispersão, δ_{Al} e δ_u as densidades do alumínio e urânio, respectivamente, e X_{Al} é a fração em peso de alumínio na dispersão.

Pelos resultados apresentados nas figuras 15 e 16, nota-se que as dispersões de urânio-alumínio, mesmo para teores de urânio da ordem de 80% em peso, não apresentam problemas quanto à compactação.

IV.3. Determinação do comportamento plástico de dispersões relacionando-o ao alumínio 1100

Para a determinação do comportamento plástico, foram feitos ensaios de compressão em amostras cilíndricas de duas dispersões de alumínio e urânio, uma com 45 e outra com 87% em peso de urânio, e uma amostra de alumínio 1100, todas obtidas por metalurgia do pó.

A tabela 8 mostra as características das amostras ensaiadas

Amostras	Densidade (% da teórica)	Diâmetro (mm)	Altura (mm)	Relação altura/diâmetro
Al (1100)	99%	10,026	19,926	1,987
Al-(45%)U	98%	10,030	19,729	1,967
Al-(87%)U	90%	10,076	19,849	1,970

Antes de serem feitos os ensaios nas amostras, fez-se o levantamento de uma curva de carga em função do deslocamento entre as placas de compressão da máquina Instron, a fim de se determinar a deflexão da mesma no intervalo de cargas onde se pretendia realizar os ensaios de compressão propriamente ditos. Este método, embora trabalhoso, assegura que as medidas de deformação que se extraem da carta registradora representam a deformação apenas do corpo de prova, e não do sistema de corpo mais máquina.

Os ensaios com os corpos de prova foram realizados à mesma velocidade de deformação em que foi realizado o ensaio placa contra placa e na temperatura ambiente.

O levantamento de dados foi realizado fixando-se a carga e medindo-se na carta registradora a deformação, descontando-se então a deflexão da máquina para a mesma carga.

A figura 17 mostra as três curvas obtidas pelo método exposto acima. A tabela 9 apresenta os parâmetros mais importantes extraídos das curvas da figura 17.

Amostra	Limite de Escoamento (Kg/mm ²)	Limite de Resistência (Kg/mm ²)	Alongamento uniforme (%)
Al - 1100	10,4	27,8	48,1
Al-(45%)U	13,6	23,3	43,2
Al-(87%)U	16,6	20,2	5,8

TABELA 9 - Parâmetros representativos do comportamento plástico.

O valor do alongamento uniforme foi tomado até o aparecimento da 1ª trinca.

Observa-se na figura 17 que: 1) o escoamento plástico do

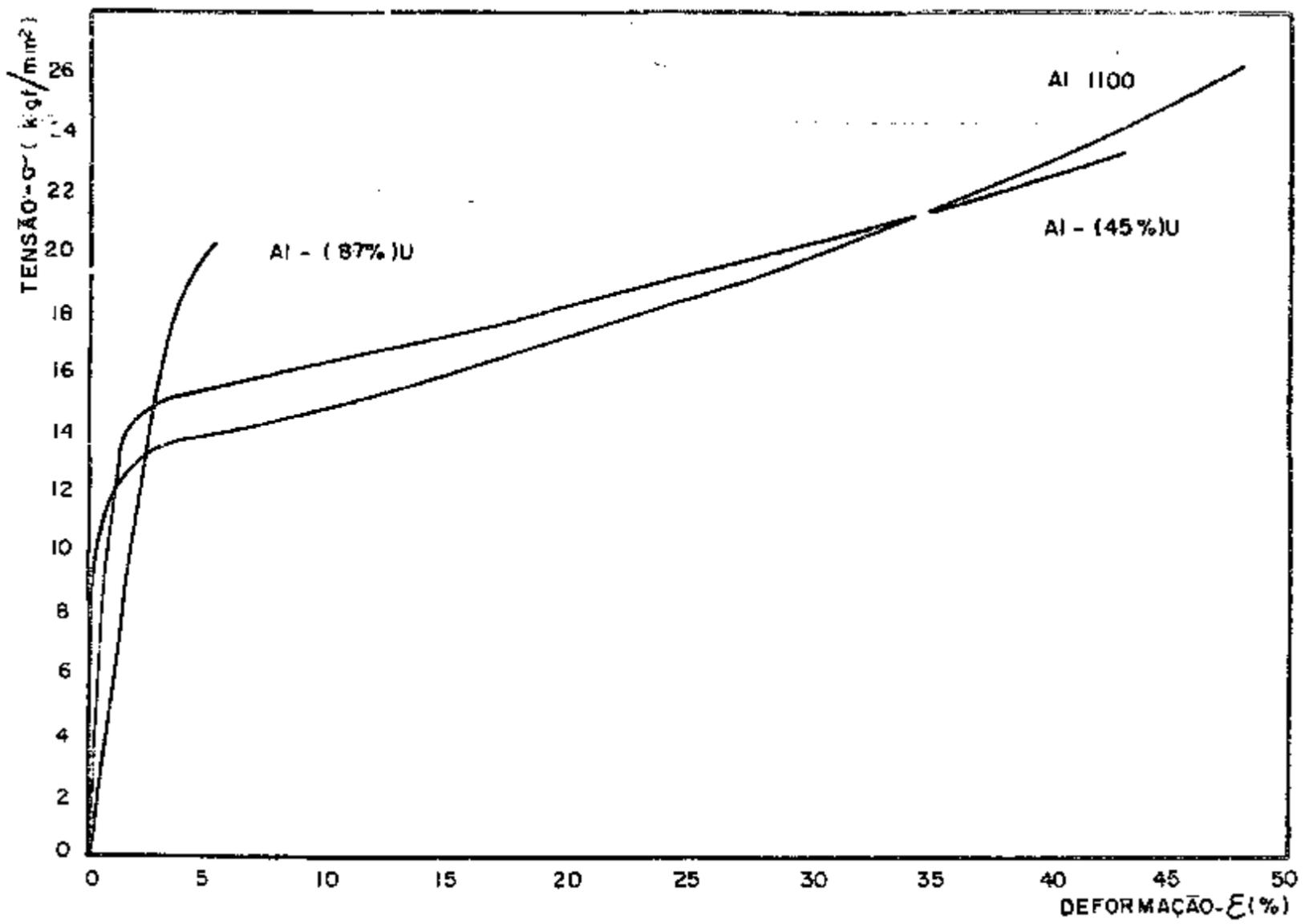


FIGURA 17 - Curvas tensão - deformação de duas dispersões de alumínio-urânio, uma com 45% e outra com 87% em peso de urânio e de uma amostra de alumínio 1100, todas obtidas por metalurgia do pó.

alumínio 1100 se dá a uma menor tensão, como era de se esperar, pois o alumínio é mais dúctil do que o urânio; 2) a primeira trinca na dispersão de alumínio com 45% em peso de urânio aparece a uma tensão menor que a tensão correspondente à mesma deformação do alumínio 1100. Isto mostra que a dispersão suportou um encruamento menor que o alumínio 1100; 3) a proximidade das curvas de alumínio 1100 e da dispersão de alumínio - 45% de urânio indica um comportamento plástico bastante similar, podendo se prever uma fácil laminação do conjunto núcleo-moldura-revestimento; 4) a grande diferença de comportamento entre as curvas do alumínio 1100 e da dispersão de alumínio - 87% em peso de urânio, indica pouca possibilidade de se obter uma boa placa delgada de elemento, combustível com uma deformação uniforme do núcleo pelos processos normais da laminação.

IV.4. laminação dos conjuntos compostos por núcleo, moldura e revestimento

Os núcleos das placas de elementos combustíveis devem atingir as dimensões finais durante a laminação. Além deste controle dimensional, uma distribuição uniforme das partículas dispersas e a ausência de irregularidades geométricas nas interfaces do núcleo com o revestimento e nas superfícies, são os fatores decisivos para o bom comportamento da placa de combustível sob radiação.

Para observar os fatores acima citados, 4 conjuntos foram laminados a 600°C. Um dos conjuntos continha como núcleo um briquete de dispersão de alumínio - 45% em peso de urânio. dois outros continham, cada um, 6 pastilhas, também de dispersão de alumínio com 45% de urânio e o último continha 6 pastilhas de dispersão com quantidades variáveis de urânio, ou seja: 50, 55, 60,

65, 70 e 80% em peso de urânio. A variação no teor de urânio, nos
do último conjunto, teve como objetivo o estudo do comportamento
destas dispersões com relação a laminação.

A preparação dos conjuntos para a laminação foi feita co
mo descrito em 11).4.

A sequência de laminação utilizada é mostrado na tabela
10.

Passo	Marcação no conta giros (voltas)	Espessura do con junto (mm)	Redução %
1	31	9,8	0
2	29,4	9,5	5
3	27,9	8,8	5
4	26,6	8,4	5
5	25,2	8,0	5
6	22,7	7,2	10
7	20,4	6,5	10
8	17,4	5,5	15
9	14,8	4,7	15
10	12,5	4,0	15
11	10,7	3,4	15
12	9,1	2,9	15
13	7,7	2,4	15
14	6,5	2,1	15
15	5,6	1,8	15
16	4,7	1,5	15

TABELA 10 - Sequência utilizada para a laminação dos con
juntos a 600°C

Essa sequência de laminação foi empregada segundo expe
riência adquirida em trabalhos anteriores realizados no Centro de
Metalurgia Nuclear do IPEN (7,8,13,14,20,36,38,39).

A figura 18 mostra um conjunto antes de ser montado e uma placa de elemento combustível após a laminação e ensaio de empolamento.

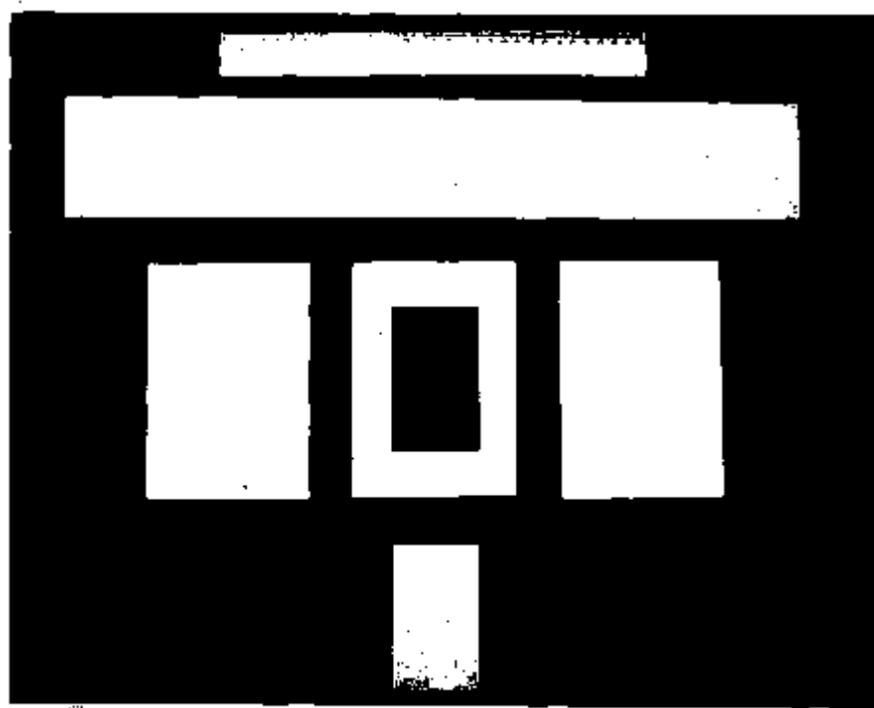


FIGURA 18 - Conjunto revestimentos-moldura-núcleo antes da laminação e placa de elemento combustível após ensaio de empolamento e corte das bordas.

A porcentagem total de redução em espessura devido a laminação das placas, atingiu aproximadamente 85%.

Após a laminação, todas as placas foram examinadas visualmente a fim de se observar possíveis faltas de caldeamento ou outros defeitos provenientes da laminação, os quais não foram constatados em nenhuma das placas. Para um exame mais detalhado das

placas, outros ensaios foram realizados para determinar o caldeamento e a homogeneidade da dispersão e da deformação. Os resultados destes ensaios são mostrados a seguir.

IV.5. Caldeamento entre núcleo e revestimento

O caldeamento das placas de combustível foi estudado através de ensaios de empolamento (blister test), que é um método não destrutivo, e posteriormente por metalografia ótica.

As principais causas da origem de empolamentos são apresentadas por Adamsom (1) como sendo as seguintes: 1) acabamento inadequado do núcleo, moldura e revestimento; 2) laminação inadequada; 3) impurezas dentro do núcleo; 4) faltas de ligação entre as várias interfaces; 5) excesso de gás no interior do núcleo.

Durante a execução deste trabalho foram tomadas medidas de precaução para que as causas acima citadas não ocorressem, mas mesmo assim todas as placas foram submetidas a ensaio de empolamento, para assegurar que houve um bom caldeamento. Esse procedimento é necessário porque, caso uma placa defeituosa seja colocada no reator, as elevações de temperatura durante a sua operação podem provocar o aparecimento de empolamentos, os quais podem causar a ruptura do revestimento; também o empolamento dificulta a transferência de calor para o exterior da placa combustível, elevando a temperatura local.

Para a realização do ensaio de empolamento, as placas combustíveis foram colocadas em um forno tipo mufla a 500°C por uma hora. Terminado o tempo de tratamento, as placas foram retiradas do forno e resfriadas ao ar, seguindo-se uma inspeção visual

detalhada. Nesta inspeção notou-se apenas a formação de pequenos empolamentos nas placas com núcleo de dispersões contendo 75% e 80% em peso de urânio, não se constatando nada de anormal nas placas onde os núcleos eram compostos por dispersões com teores de urânio abaixo de 75% em peso.

Após a realização dos ensaios de empolamento, também foram feitos estudos do caldeamento por meio de metalografia ótica. Para essa análise, várias amostras de diferentes partes das placas foram retiradas, polidas e suas interfaces examinadas com diferentes aumentos. Nessa análise não foi detectada nenhuma falta de caldeamento, tendo sido apenas notada a penetração de algumas partículas de urânio na superfície interna do revestimento. As micrografias das figuras 19 e 20 mostram o bom caldeamento existente entre o núcleo e o revestimento das placas combustíveis. Também pode-se observar, na figura 20, a penetração de algumas partículas de urânio no revestimento.

IV.6. Radiografia das placas

A radiografia das placas é imprescindível e constitui procedimento essencial no controle de fabricação, assim como para o correto ajuste das variáveis do processo, das quais dependem os resultados finais.

Através das radiografias é possível conhecer: 1) a geometria precisa do núcleo da placa combustível após a deformação, e em particular a posição, forma e eventuais irregularidades na zona terminal; 2) a possível presença de fissuras ou trincas no núcleo da placa combustível, devido a fatores inerentes ao núcleo ou ao processo de laminação; 3) a homogeneidade da dispersão.



FIGURA 19 - Micrografia mostrando o bom caldeamento entre o núcleo e o revestimento de uma placa após ensaio de empolamento - Seção longitudinal - Aumento 60 X



FIGURA 20 - Corte transversal de uma placa de elemento combustível mostrando o bom caldeamento entre o núcleo e revestimento após ensaio de empolamento. Pode também ser observado a penetração de algumas partículas de urânio no revestimento - Aumento -50X.

Nas figuras 21, 22 e 23 são apresentadas radiografias de placas delgadas de elementos combustíveis. As radiografias das placas das figuras 21 e 22 apresentam como núcleos dispersões de alumínio com 45% em peso de urânio, enquanto que a figura 23 mostra a radiografia de uma placa contendo como núcleos duas dispersões de alumínio, uma com 75% outra 80% em peso de urânio.

Nota-se a perfeita deformação ocorrida na laminação das dispersões com 45% em peso de urânio (figuras 21 e 22), as quais não apresentaram problemas de deformação irregular nos contornos, tendo boa distribuição das partículas de urânio sem qualquer fissura ou trinca, o que foi uma constante para todas as dispersões com teores de urânio até 70% em peso. Isto não ocorreu com as dispersões de teores de urânio de 75 e 80% em peso, as quais apresentaram trincas (figura 23), devido à baixa ductilidade das mesmas, como foi previsto por meio dos ensaios de compressão em amostras com 87% em peso de urânio (figura 17).

IV.7. Homogeneidade das dispersões

A homogeneidade das dispersões foi estudada antes e após a laminação. A figura 24 mostra a distribuição das partículas de urânio em uma pastilha de alumínio com 45% em peso de urânio, antes da laminação. A mistura dos pós de alumínio e urânio neste caso foi feita a seco, não proporcionando uma distribuição muito homogênea das partículas de urânio. Este defeito foi corrigido posteriormente, com a adição de álcool durante a mistura dos pós de todas as outras pastilhas e briquetes produzidos.

A homogeneidade das dispersões após a laminação pode ser observada na figura 25, onde é apresentada uma micrografia do nú

85



FIGURA 21 - Radiografia de uma placa de elemento combustível de dispersão Al - U(45% em peso) mostrando a perfeita deformação ocorrida no núcleo e a boa distribuição das partículas de urânio.

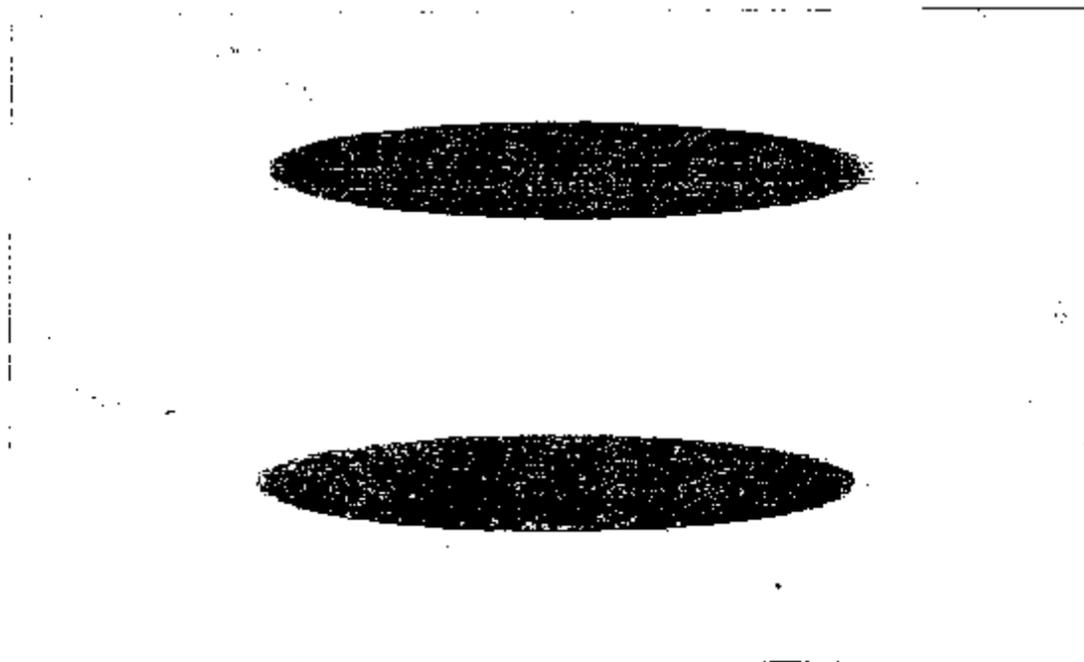


FIGURA 22 - Radiografia de placa de elemento combustível contendo como núcleo pastilhas deformadas de dispersão de Al-U(45% em peso). Também neste caso pode ser vista a perfeita deformação dos núcleos e a boa homogeneidade da mistura.

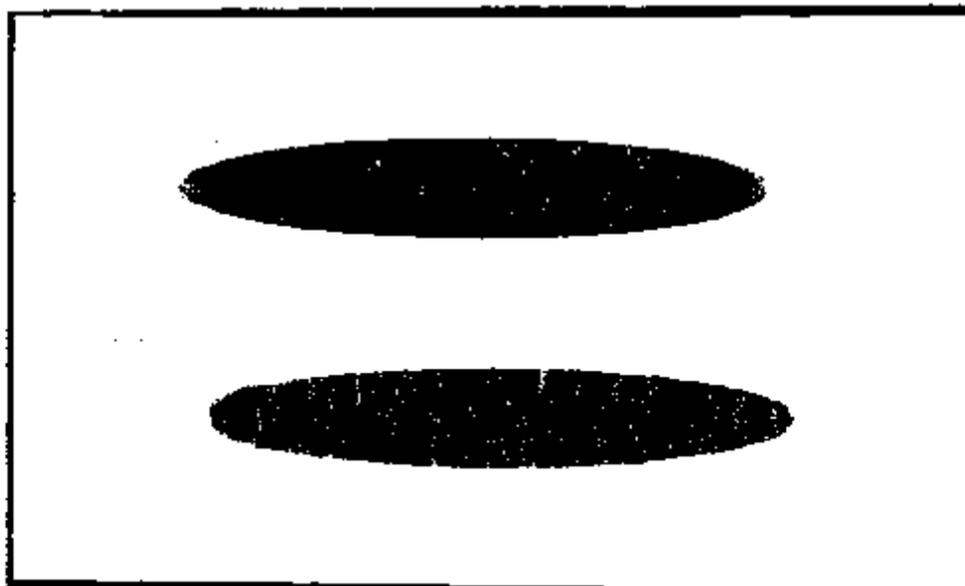


FIGURA 23 - Radiografia de placa de elemento combustível contendo como núcleo duas dispersões de Al-U, a superior contendo 75 e a inferior 80% em peso de urânio. Pode ser observado em ambas que a deformação por laminação provocou trincas nas dispersões.



FIGURA 24 - Pastilha de Al-U(45% em peso) mostrando a distribuição das partículas de urânio antes da laminação. A mistura dos pós de Al e U neste caso foi feita a seco, acarretando uma distribuição dos pós não muito boa. Aumento 6 X.

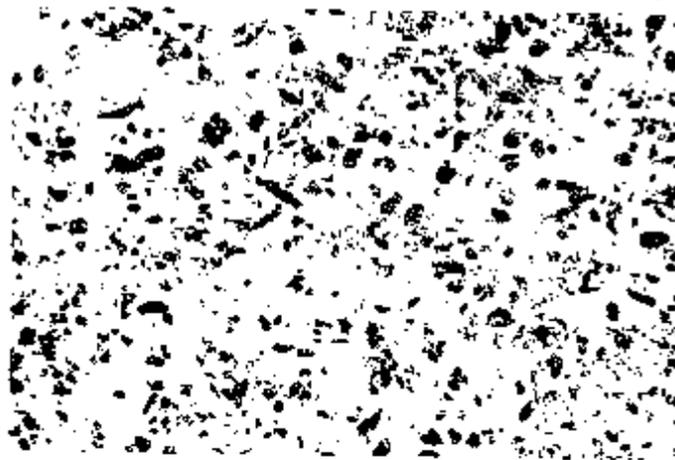


FIGURA 25 - Micrografia do núcleo de uma placa de elemento combustível após a laminação. Nota-se a perfeita distribuição das partículas de urânio. Neste caso a mistura dos pós foi feita após umidecê-los com álcool. Aumento - 20 X.

ciclo de uma placa de combustível com 45% em peso de urânio. Uma visão mais geral da homogeneidade das dispersões após a laminação pode ser vista nas radiografias apresentadas nas figuras 21 e 22, as quais mostram boa distribuição das partículas de urânio.

Segundo Adamson ⁽¹⁾, todas as placas de elementos combustíveis devem ser inspecionadas quanto a homogeneidade das partículas da fase físsel. Essa inspeção deve ser feita utilizando-se as radiografias das placas. Para os reatores de baixa potência tipos MIR, ORR e ETR, apenas um exame visual se faz necessário enquanto que para os reatores do tipo HFIR e ATR, as radiografias devem ser inspecionadas com um densitômetro. Esta inspeção é feita tomando-se discos de 0,08 e 0,50 polegadas de diâmetro nas radiografias, os quais não devem apresentar variações nas medidas, em relação às especificadas, acima de 25% para os discos de 0,08 polegadas de diâmetro e acima de 8% para os discos de 0,50 polegadas de diâmetro.

IV.8. Estudo da reação entre urânio e alumínio em dispersões

Como descrito no item III.6, foram feitos tratamentos térmicos em um série de amostras, as quais posteriormente foram analisadas por difração de raios-X, por metalografia ótica e por análise de energia dispersiva de raios-X (EDAX), a fim de se fazer a identificação dos produtos formados pela reação e acompanhar o desenvolvimento da mesma.

IV.8.1. Difração de Raios-X

Nos diagramas de difração de raios-X os picos (intensidades) de difração aparecem como uma função do ângulo, em que a re

lação de Bragg é satisfeita. O ângulo medido (2θ) corresponde ao dobro de ângulo da relação de Bragg, uma vez que o ângulo que o detector forma com o feixe incidente é igual a θ .

A partir do valor do ângulo medido (2θ) e do comprimento de onda da radiação utilizada ($K\alpha$ do cobre) que é $1,542 \text{ \AA}$, calcula-se a distância entre os planos atômicos (d) pela lei de Bragg.

$$n\lambda = 2d \sin\theta$$

Comparando os valores das distâncias interatômicas (d) de todos os elementos que apresentaram picos nos diagramas de difração, com os valores conhecidos (2,24,26), fez-se a identificação dos produtos formados durante os tratamentos térmicos.

As tabelas 11 e 12 mostram os produtos identificados após cada tratamento. Na tabela 11 são apresentados os produtos a partir de amostras tratadas em vácuo de 5×10^{-5} torr, os quais estão bastante próximos dos resultados obtidos por Kiessling (26), e na tabela 12 são mostrados os resultados obtidos a partir de amostras provenientes de placas laminadas.

Nas figuras 26 a 31 são apresentados os valores das intensidades integradas, para cada composto formado, normalizados em relação ao alumínio, em função do tempo e da temperatura de tratamento.

Como pode ser observado nas figuras 26 a 31, as pastilhas tratadas em vácuo, invariavelmente apresentaram uma cinética de reação mais lenta em relação a idênticos tratamentos efetuados em amostras provenientes das placas de elementos combustíveis.

Tempo de tratamento (h)	Fases identificadas em ordem decrescente de quantidade		
	100°C	500°C	640°C
1	-	-	UA ₂ ³ , UA ₂ ⁴ , UA ₂
2	-	-	UA ₂ ³ , UA ₂ ⁴ , UA ₂
4	-	-	UA ₂ ³ , UA ₂ ⁴ , UA ₂
6	-	-	UA ₂ ³ , UA ₂ ⁴ , UA ₂
8	-	-	UA ₂ ³ , UA ₂ ⁴ , UA ₂
10	-	-	UA ₂ ³ , UA ₂ ⁴ , UA ₂
15	-	-	UA ₂ ³ , UA ₂ ⁴ , UA ₂
20	-	UA ₂ ² , UA ₂ ³	UA ₂ ³ , UA ₂ ⁴ , UA ₂
30	-	-	UA ₂ ³ , UA ₂ ⁴ , UA ₂
40	UA ₂ ² , UA ₂ ³	UA ₂ ³ , UA ₂ ²	UA ₂ ³ , UA ₂ ⁴ , UA ₂
50	-	-	UA ₂ ⁴ , UA ₂ ⁵ , UA ₂
60	UA ₂ ⁵ , UA ₂	UA ₂ ³ , UA ₂	
100	UA ₂ ⁵ , UA ₂ ² , UA ₂ ⁴	UA ₂ ³ , UA ₂ ² , UA ₂ ⁴	
150	UA ₂ ⁵ , UA ₂ ² , UA ₂ ⁴	UA ₂ ³ , UA ₂ ² , UA ₂ ⁴	
200	UA ₂ ⁵ , UA ₂ ² , UA ₂ ⁴	UA ₂ ³ , UA ₂ ² , UA ₂ ⁴	

TABELA 11 - Reação entre urânio e alumínio em pastilhas de dispersões com 45% em peso de urânio, tratados em vácuo de 5×10^{-5} torr.

Tempo de tratamento (h)	Fases identificadas em ordem decrescente de quantidade		
	100°C	500°C	600°C
2	-	-	UAl ₃ , UAl ₄ , UAl ₂
4	-	-	UAl ₃ , UAl ₄ , UAl ₂
6	-	-	UAl ₃ , UAl ₄ , UAl ₂
10	-	UAl ₃ , UAl ₂	UAl ₃ , UAl ₄ , UAl ₂
15	-	-	UAl ₄ , UAl ₃ , UAl ₂
20	UAl ₃ , UAl ₂	UAl ₃ , UAl ₂	UAl ₄ , UAl ₃ , UAl ₂
30	UAl ₃ , UAl ₂	UAl ₃ , UAl ₂ , UAl ₄	UAl ₄ , UAl ₃
40	UAl ₃ , UAl ₂		
50	UAl ₃ , UAl ₂ , UAl ₄	UAl ₃ , UAl ₄ , UAl ₂	UAl ₄ , UAl ₃
60	UAl ₃ , UAl ₄ , UAl ₂		
96	UAl ₃ , UAl ₄ , UAl ₂	UAl ₄ , UAl ₃ , UAl ₂	UAl ₄
160	UAl ₃ , UAl ₄ , UAl ₂		
210	UAl ₃ , UAl ₄ , UAl ₂		

TABELA 12 - Reação entre urânio e alumínio em amostras provenientes de placas de elementos combustíveis a base de dispersões com 45% em peso de urânio.

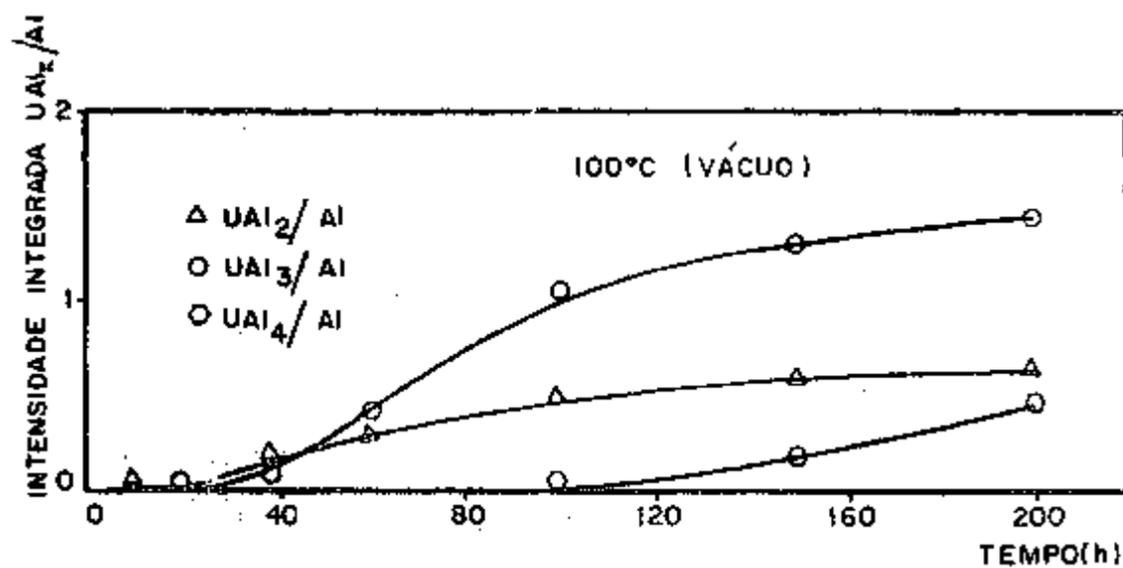


FIGURA 26 - Intensidade integrada relativa dos picos de difração de UAl_x/Al , para pastilhas de alumínio com 45% em peso de urânio, em função do tempo de tratamento térmico a $100^\circ C$ sob vácuo de 5×10^{-5} torr.

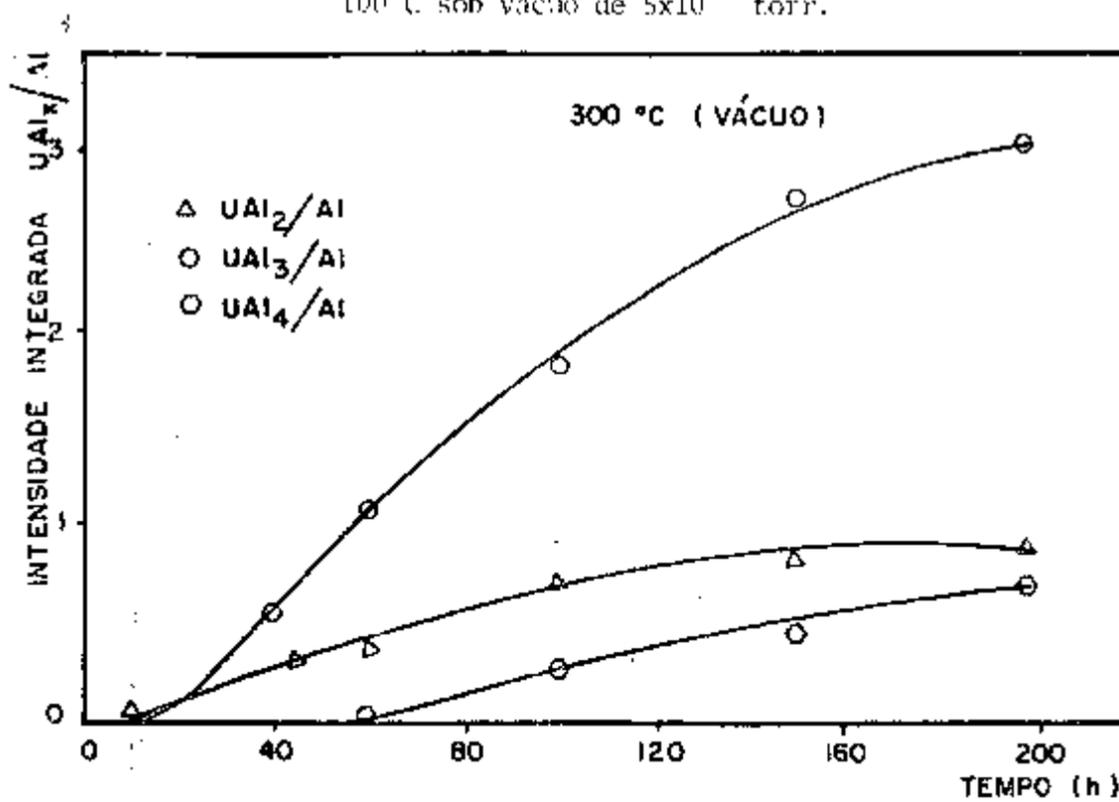


FIGURA 27 - Intensidade integrada relativa dos picos de difração de UAl_x/Al , para pastilhas de alumínio com 45% em peso de urânio, em função do tempo de tratamento térmico a $300^\circ C$ sob vácuo de 5×10^{-5} torr.

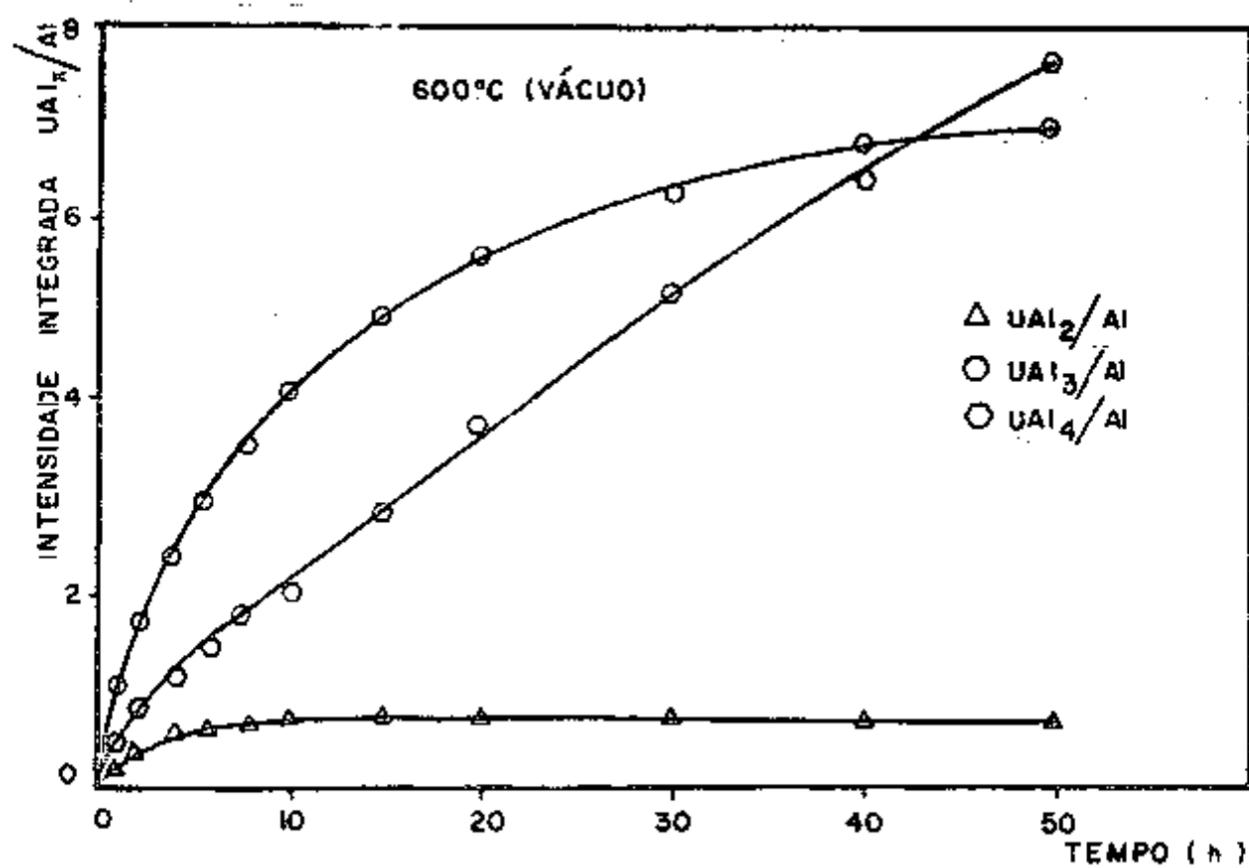


FIGURA 28 - Intensidade integrada relativa dos picos de difração de UAl_x/Al , para pastilhas de alumínio com 45% em peso de urânio, em função do tempo de tratamento a $600^{\circ}C$ sob vácuo de 5×10^{-5} torr.

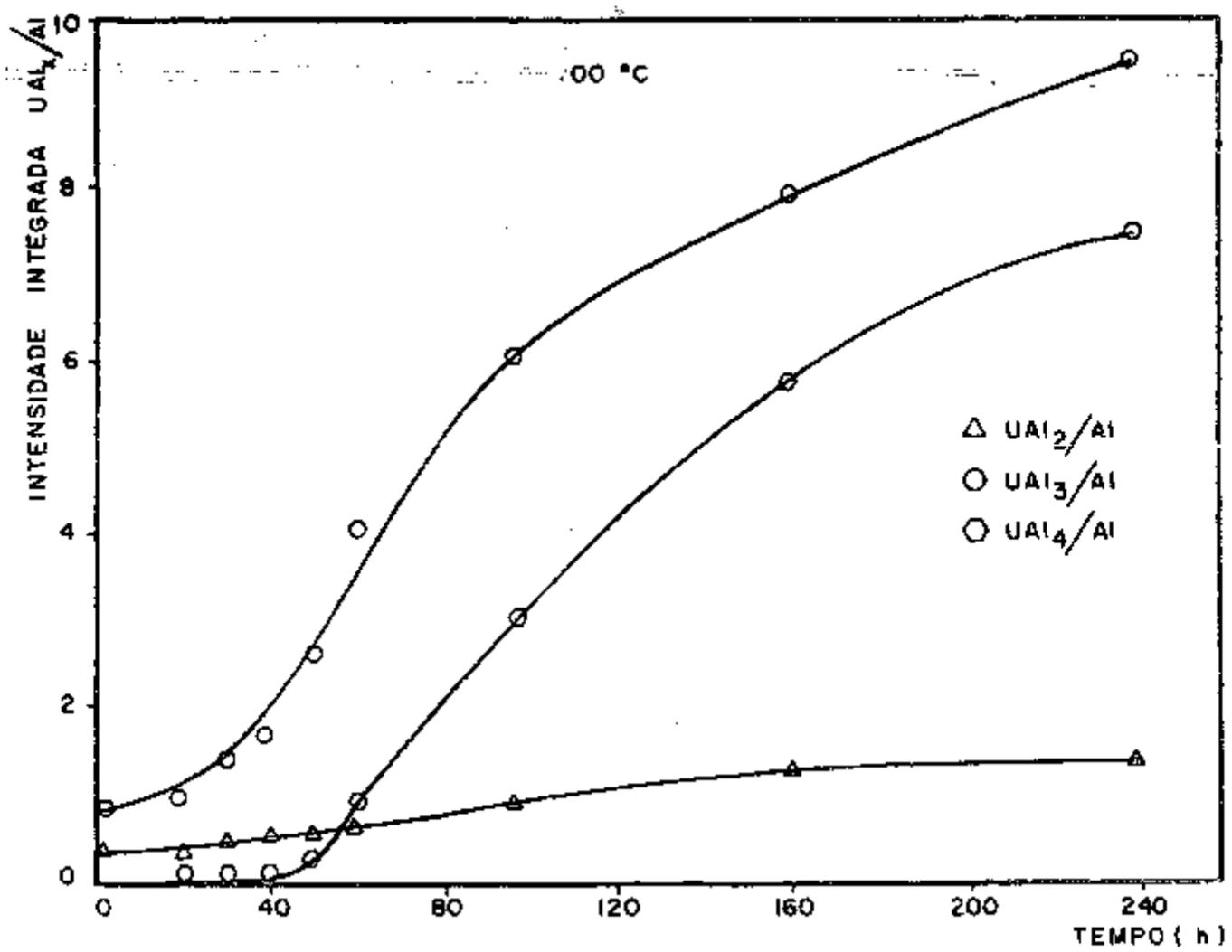


FIGURA 29 - Intensidade integrada relativa dos picos de difração de UA_x/Al , para dispersões de Al-U (45% em peso de U), em função do tempo de tratamento a $100^{\circ}C$ em atmosfera normal

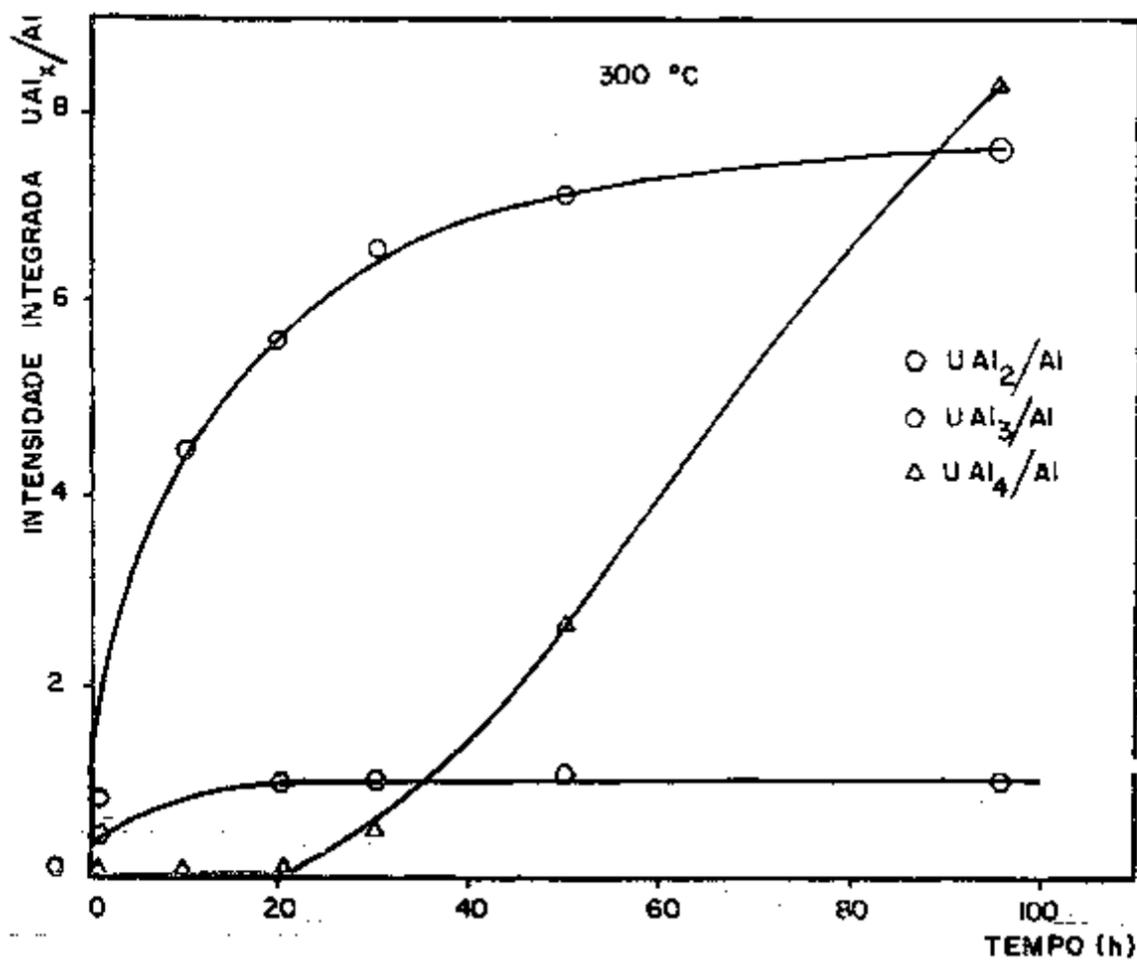


FIGURA 30 - Intensidade integrada relativa dos picos de difração de $UA1_x/Al$, para dispersões de Al-U (45% em peso de U), em função do tempo de tratamento a 300 °C em atmosfera normal.

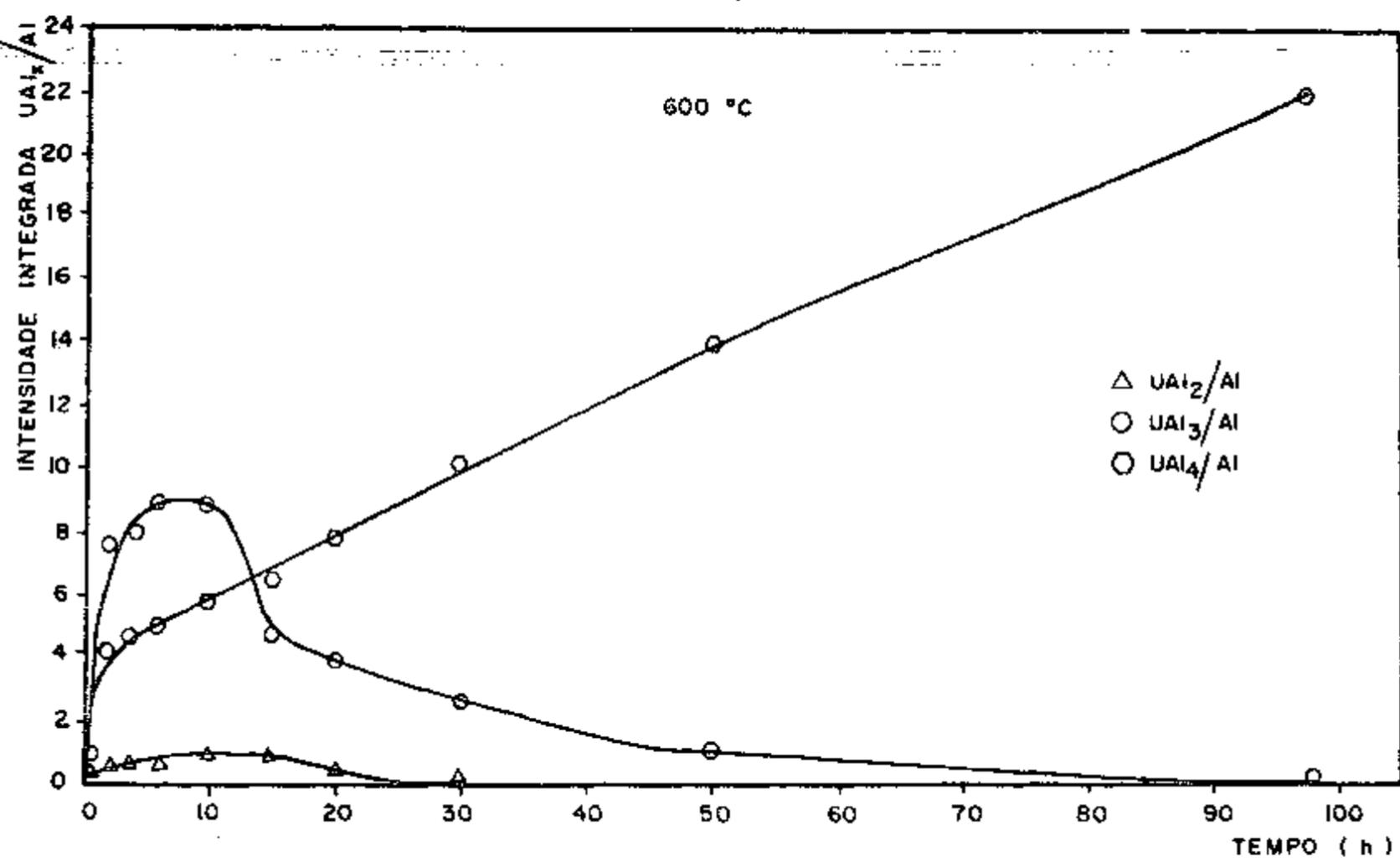


FIGURA 31 - Intensidade integrada relativa dos picos de difração de UAl_x/Al , para dispersões de Al-U (45% em peso de U), em função do tempo de tratamento a $600^{\circ}C$ em atmosfera normal.

Uma possível explicação para este fato pode ser a formação de um filme de óxido nas partículas de urânio durante a mistura e compactação das pastilhas. Esse filme de óxido serviria como camada protetora, dificultando a difusão do alumínio para o interior das partículas de urânio. No caso das placas, essa camada de óxido seria destruída durante a laminagem a quente e portanto as partículas de urânio ficariam em contato direto com o alumínio, facilitando a difusão, e conseqüentemente a reação. Além disso, uma pressão de 5×10^{-5} torr durante o tratamento pode não ser baixa o suficiente para evitar a oxidação das partículas de urânio.

O UAl_2 formado durante o tratamento térmico se transforma para UAl_3 rapidamente, pois como pode ser visto nas figuras 26 a 31, os valores da intensidade integrada referentes ao UAl_2 permanecem baixos durante todo o tempo de tratamento, até que todo o urânio seja transformado.

Por outro lado, a reação de UAl_3 para UAl_4 é relativamente mais lenta comparando-a com a reação de UAl_2 para UAl_3 , como pode também ser visto nas figuras abaixo.

Outro fato constatado é que a reação urânio-alumínio se completa, ou seja, todo produto de urânio e alumínio se encontra na forma de UAl_4 após 96 horas de tratamento a $600^\circ C$, quando foram utilizadas amostras provenientes de placas de elementos combustíveis.

IV.3.2. Metalografia

Após os tratamentos térmicos e a identificação dos produtos de reação formados, utilizando-se difração de raios-X, foi feito um estudo da evolução da reação através de metalografia das amostras provenientes das placas de elementos combustíveis.

Existe uma grande dificuldade em se obter amostras com bom polimento, pois é apreciável a diferença entre as durezas dos dois materiais. Assim sendo, há um desgaste maior do alumínio e conseqüentemente ocorrem desprendimentos das partículas de urânio e UAl_x .

Os resultados metalográficos são apresentados nas figuras 32 a 37, todas obtidas em microscópio ótico.

A figura 32 corresponde a uma amostra sem tratamento térmico posterior à laminação. Nessa figura, notam-se apenas alguns pequenos focos de reação (regiões claras nas partículas de urânio) ocorrida durante a laminação a quente das placas.

A figura 33 foi obtida de uma amostra tratada por 50 horas a $100^{\circ}C$. Observa-se neste caso uma quantidade considerável de produtos de reação que, por difração de raios-X, foram identificados como sendo UAl_2 , UAl_4 e UAl_3 , em ordem crescente de quantida-

de (ver figura 29).

Na figura 34 é mostrada a micrografia de uma amostra tratada por 96 horas a 500°C . Observa-se nessa micrografia que algumas partículas, inicialmente de urânio, estão totalmente transformadas.

A identificação por difração de raios-X, dos produtos de reação, mostrou a presença de $\text{UA}\ell_2$, $\text{UA}\ell_3$ e $\text{UA}\ell_4$, mas a quantidade de $\text{UA}\ell_4$ passou a ser maior do que a de $\text{UA}\ell_3$. (ver figura 30).

A figura 35 é uma micrografia de uma amostra tratada por 96 horas a 600°C . Com esse tratamento constatou-se que todo o urânio havia reagido com o alumínio.

Através de difração de raios-X identificou-se o produto formado como sendo somente $\text{UA}\ell_4$. O $\text{UA}\ell_4$, como foi dito anteriormente, é o produto de urânio e alumínio termodinamicamente mais estável e, portanto, a reação entre urânio e alumínio se completou com este tratamento térmico.

A reação entre urânio e alumínio inicia-se geralmente nas protuberâncias das partículas de urânio, desenvolvendo-se posteriormente para toda a superfície da mesma. A reação entre o urânio e o alumínio continua para o interior das partículas de urânio, indicando que ocorre difusão do alumínio, através dos produtos de reação, mais rapidamente do que a difusão do urânio nestes produtos. Conclusões essas a que já haviam chegado Kiessling (26) e Castleman (9). Nas micrografias das figuras 36 e 37 são mostrados os estágios inicial e intermediário da reação entre as partículas de urânio e a matriz de alumínio.



FIGURA 32 - Micrografia do núcleo de placa após a laminação, sem tratamento térmico posterior. Aumento 100 X.

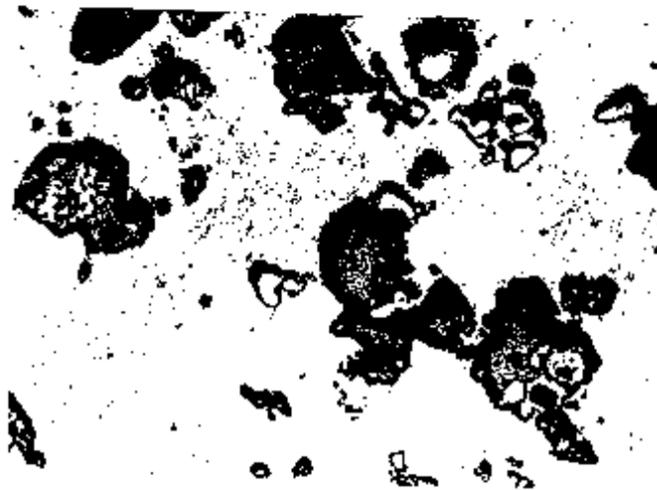


FIGURA 33 - Micrografia obtida do núcleo de placa após a laminação e subsequente tratamento térmico por 96 horas a 100°C. Nota-se o início da reação entre as partículas de urânio e a matriz de alumínio. Aumento 100 X.

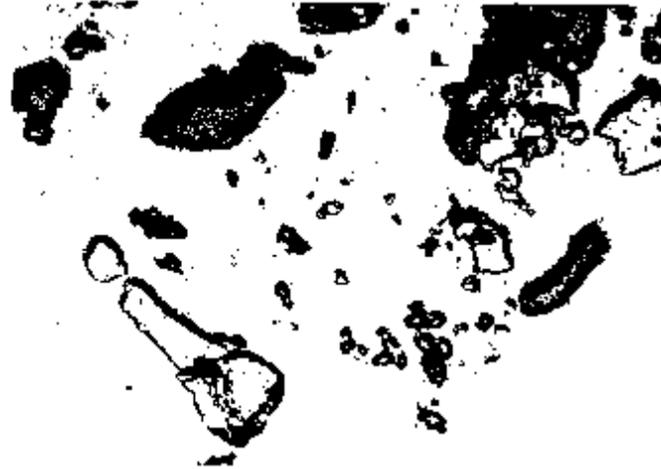


FIGURA 34 - Micrografia de placa de elemento combustível após laminação e subsequente tratamento térmico por 96 horas a 300°C . Neste caso algumas partículas se apresentam inteiramente reagidas. Aumento 100 X.



FIGURA 35 - Micrografia de placa de elemento combustível após laminação e subsequente tratamento térmico por 96 horas a 600°C . Observa-se a completa reação do urânio com o alumínio. Aumento 100 X.



FIGURA 36 - Nesta micrografia, é mostrado o início da reação entre o urânio e o alumínio, a qual se inicia geralmente nas protuberâncias das partículas de urânio. Tratamento térmico 96 horas a 100°C . Aumento 1000 X.



FIGURA 37 - Estágio intermediário de reação de uma partícula de urânio com alumínio, onde a reação se estende através de toda a superfície da mesma. Tratamento térmico - 96 horas a 300°C . Aumento 1000 X.

IV.8.3. Análise de penetração de urânio através de revestimento de alumínio

Esta análise é importante, pois caso haja uma penetração profunda de urânio através do revestimento de alumínio, este urânio poderia atingir a superfície das placas e reagir com o refrigerante, danificando a placa e contaminando o refrigerante.

O estudo da penetração de urânio através do revestimento de alumínio foi feito, por meio de análise por energia dispersiva de raios-X (EDAX), em amostras provenientes de pequenas placas combustíveis após tratamentos térmicos por 96 horas a 60, 100, 300 e 600°C.

A primeira contagem foi realizada na superfície externa das amostras. As contagens subsequentes foram realizadas após sucessivos desbastes por meio de polimentos, de aproximadamente 100µm, até atingir o centro do núcleo de placa combustível.

Os resultados obtidos para as quatro amostras são mostrados na figura 38, onde se tem as curvas obtidas, para cada amostra, da variação das relações das contagens de U/A_{Al} com a distância do centro da placa até a superfície externa. Verifica-se a presença de urânio após a interface núcleo-revestimento. Poderia se pensar que o urânio difundiu através do revestimento de alumínio, mas na realidade, a presença de urânio no revestimento deve-se à penetração de algumas partículas de urânio no revestimento durante a laminação, fato este que pode ser observado na micrografia da figura 20, e que também foi constatado durante o polimento das amostras utilizadas neste estudo. Outro fato que reforça esta análise é a de não haver coerência entre as distâncias onde se ob

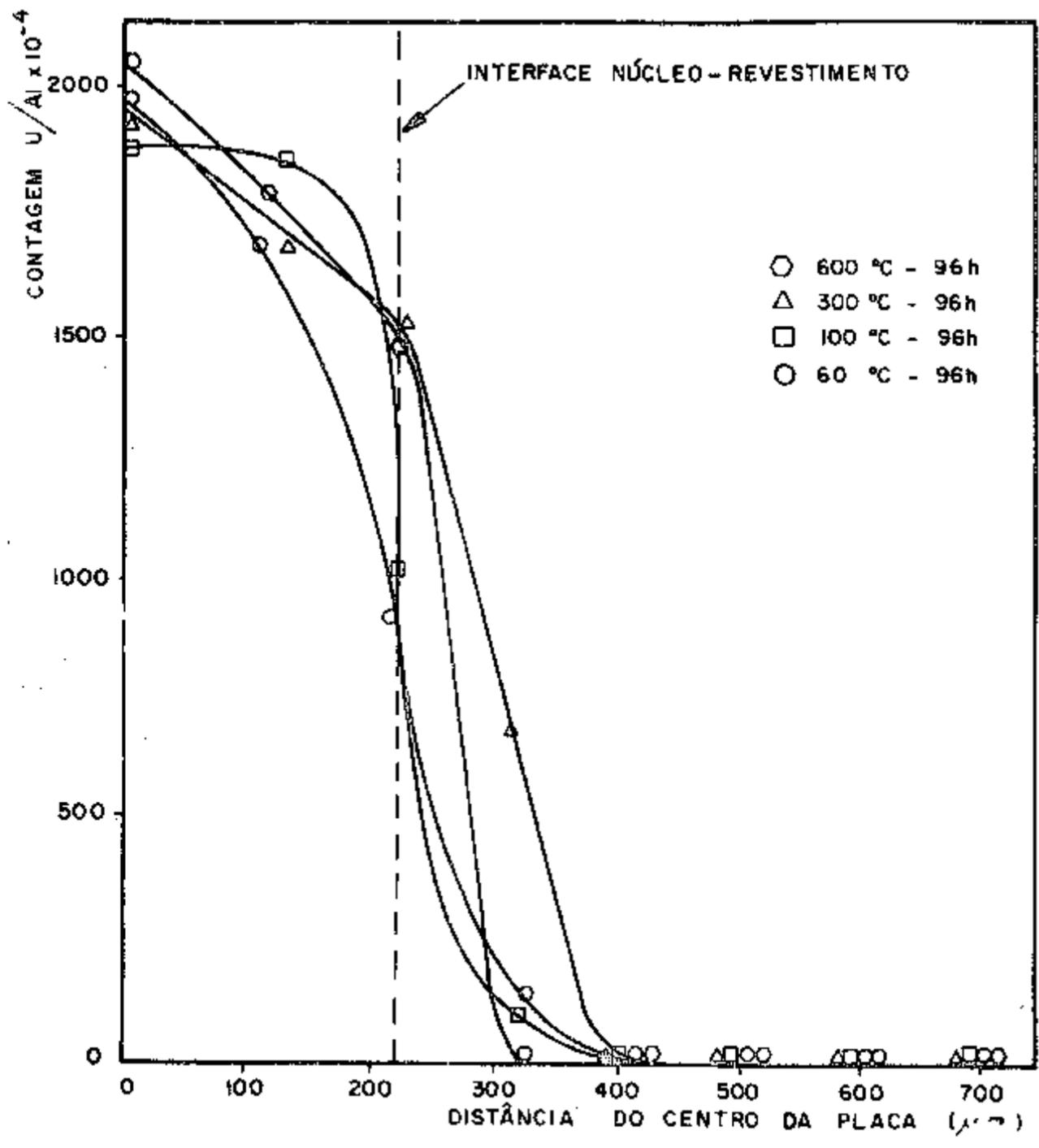


FIGURA 38 - Contagem relativa de U/A2, para quatro placas combustíveis tratadas a 60°C, 100°C, 300°C e 600°C por 96 horas, em função da distância do centro das placas.

serva urânio no revestimento, com a temperatura de tratamento, ou seja, a maior distância onde se notou a presença de urânio no revestimento deveria corresponder à maior temperatura de tratamento, e a menor distância corresponderia à menor temperatura de tratamento, isto se difusão fosse o mecanismo envolvido no transporte do urânio para o interior do revestimento.

Também foram feitas análises pontiformes por energia dispersivas de raios-X, em partículas de UAl_4 escolhidas aleatoriamente no interior da amostra tratada por 96 horas a $600^{\circ}C$. Essas contagens foram realizadas de 30 em $30\mu m$, partindo-se do interior das partículas e seguindo em linha reta até a matriz de alumínio. Invariavelmente não foi constatada a presença de urânio após $30\mu m$ de interface das partículas de UAl_4 , no interior da matriz de alumínio.

IV.8.4. Determinação da energia de ativação da reação urânio-alumínio

A energia de ativação da reação urânio-alumínio, na forma de dispersão, foi determinada por meio de ensaios dilatométricos, registrando-se a dilatação das amostras em função do tempo, nas temperaturas de 400, 450, 500 e $550^{\circ}C$, como mostrado na figura 39.

Para se calcular a energia de ativação da reação, é necessário fazer uma análise de regressão linear nas curvas da figura 39. O melhor ajuste destas curvas experimentais foi obtido através de curvas de potência representadas pela função

$$y = kt^n$$

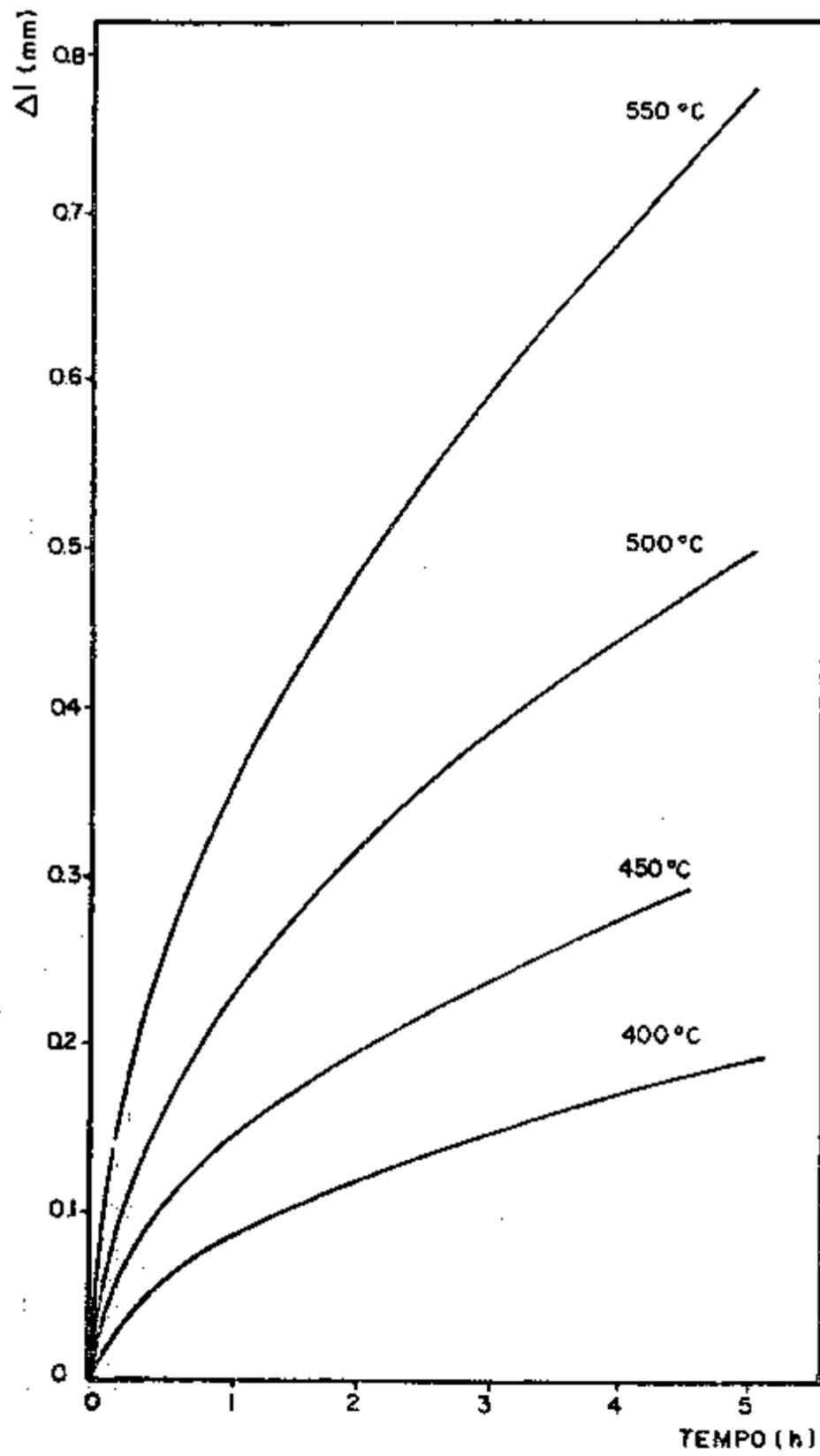


FIGURA 39 - Dilatação linear de pastilhas de alumínio com 45% em peso de urânio, em função do tempo para as temperaturas de 400°C, 450°C, 500°C e 550°C.

Os coeficientes k e n, bem como o coeficiente de correlação r^2 que mostra a qualidade do ajuste de cada curva, foram calculados com auxílio de uma calculadora HP-25, e são apresentados na tabela 13.

Temperatura °C	k	n	1/n	r^2
400	0,0861	0,5014	1,994	0,9991
450	0,1418	0,5010	1,996	0,9986
500	0,2246	0,4992	2,003	0,9997
550	0,3467	0,4995	2,002	0,9995

TABELA 13 - Ajuste das curvas da figura 39.

Fazendo-se a aproximação de $1/n$ igual a dois, a equação anterior pode ser transformada em:

$$Y^2 = K' t$$

onde, Y representa a dilatação da amostra devido a reação, K' é a constante de velocidade da reação parabólica e t é o tempo de aquecimento.

Pela equação de Arrhenius, tem-se que:

$$K' = K'' \exp \left(- \frac{Q}{RT} \right)$$

sendo:

- K'' - constante de probabilidade
- Q - energia de ativação
- R - constante dos gases ideais
- T - temperatura (K)

Tomando-se os logaritmos na equação acima, temos

$$\ln K' = \ln K'' - \frac{Q}{R} \cdot \left(\frac{1}{T} \right)$$

Portanto, construindo-se um gráfico do logaritmo de constante de velocidade K' em função de $1/T$, obtém-se uma reta cuja inclinação é igual a $-Q/R$ e que intercepta sobre o eixo das ordenadas um comprimento $\ln K''$ (figura 40).

O valor da energia de ativação Q , calculado a partir da figura 40 é igual a 20.200 cal/mol, valor este próximo aos calculados por outros pesquisadores, apesar destes últimos sempre terem utilizado pares de discos de urânio e alumínio em contato. Os resultados da energia de ativação para a reação urânio-alumínio, de diversos trabalhos são apresentadas na tabela 14.

Energia de ativação cal/mol	Intervalo de temperatura estudado, °C	Referência
20.200	400 a 550	Este trabalho
24.000	250 a 450	3
19.300	400 a 550	40
22.000	200 a 550	30
18.700	400 a 600	17
14.300	200 a 390	6

TABELA 14 - Comparação de valores de energia de ativação da reação urânio-alumínio para diferentes trabalhos.

IV.9. Variação linear na espessura das placas após tratamentos térmicos.

Foram feitas medidas da espessura de várias placas na região onde se encontrava o núcleo, antes e após tratamentos térmicos, calculando-se a dilatação linear das mesmas em termos percentuais.

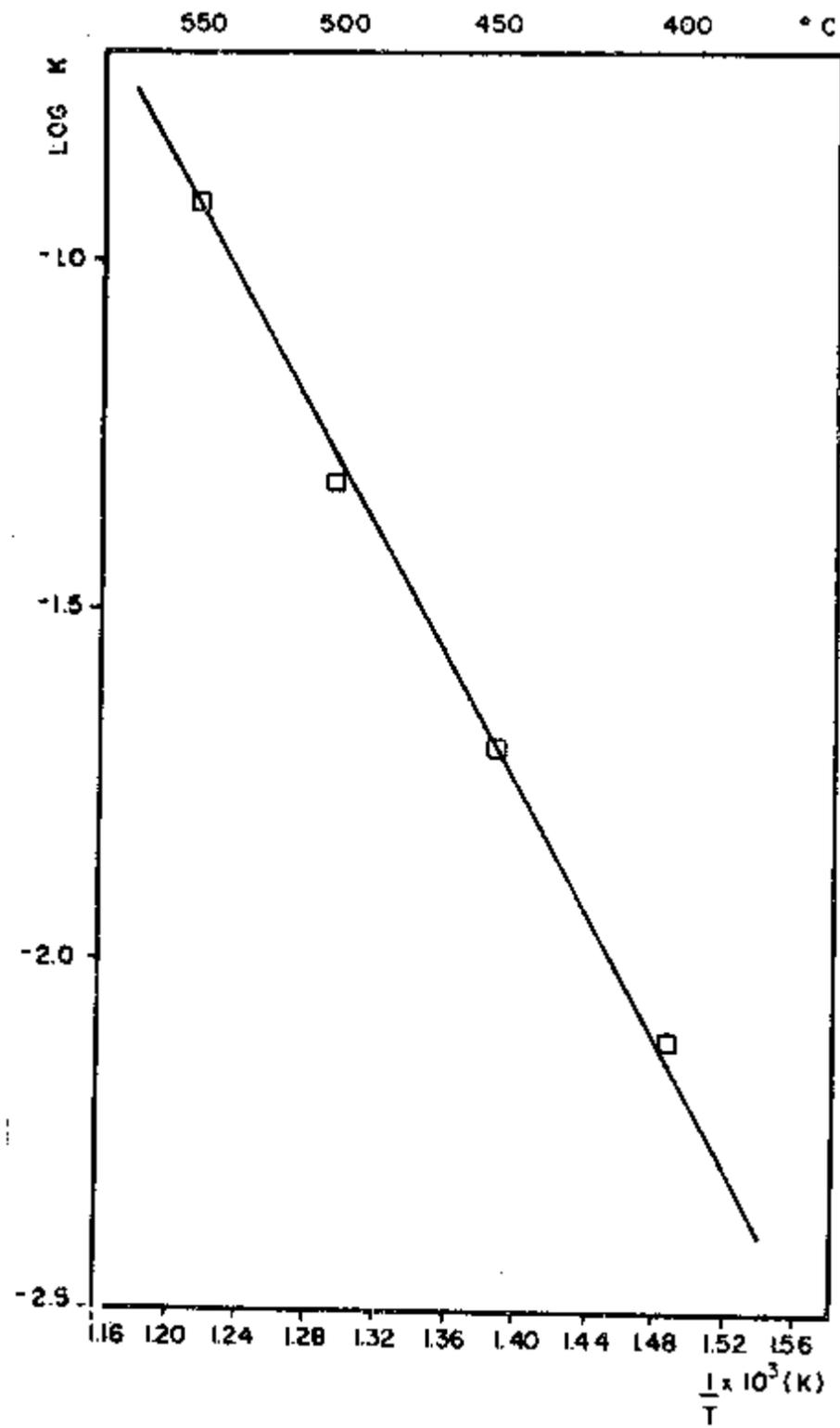


FIGURA 40 - Logarítmo da constante de velocidade de reação em função do inverso da temperatura.

Os tratamentos foram realizados nas temperaturas de 60°C, 100°C, 300°C e 600°C, e por um tempo de 96 horas. Os resultados obtidos são apresentados na figura 41.

O tempo de 96 horas foi escolhido após se ter conhecimento das análises de raio-X, que revelou uma completa reação do urânio para UAl_4 à 600°C, podendo-se desta forma afirmar que toda a expansão devida à reação havia ocorrido.

Esses aumentos de espessura, são perfeitamente aceitáveis do ponto de vista de projeto de elementos combustíveis para reatores de pesquisa, pois os espaçamentos entre placas é bem maior do que a expansão aqui determinada.

Para se obter placas combustíveis nas dimensões de projeto é necessário interromper a laminação das mesmas quando a espessura estiver um pouco maior do que a especificada (- 5%) e então realizar um tratamento térmico nessas placas a 600°C por um tempo não inferior a 96 horas. Desta forma, todo o urânio se transforma no produto termicamente mais estável, que é o UAl_4 . As placas podem então ser laminadas até atingir a espessura final já que para isto apenas uma pequena deformação se faz necessária, e portanto passível de ser absorvida pelo UAl_4 que é frágil.

IV.10. Ensaio de irradiação

Uma placa de elemento combustível em miniatura, contendo como núcleo dispersão de alumínio e urânio metálico natural no teor de 45% em peso, foi irradiada no reator IEA-R1, como descrito em III.11.

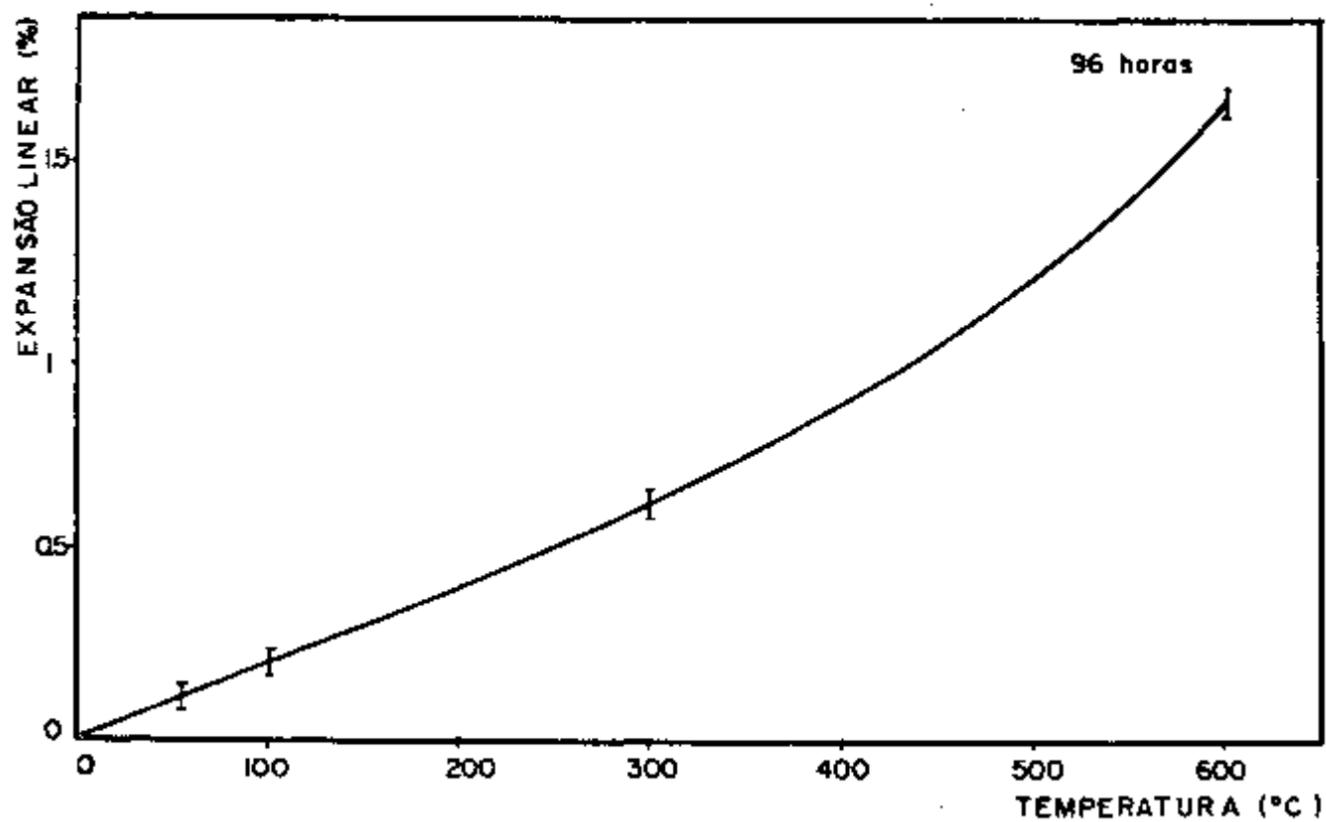


FIGURA 41 - Variação da espessura com a temperatura de tratamento térmico de placas combustíveis de dispersões de A&U (45% em peso de U), tratadas por 96 horas.

Esse teste teve duração de 1380 horas e 11 minutos de irradiação, atingindo um fluxo integrado de $8,663 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$.

A irradiação foi dividida em duas fases. Na primeira, a placa foi irradiada na posição 01, onde o fluxo de nêutrons é de $1,6 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ s.}$, na qual alcançou um fluxo integrado de $0,207 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$. Na segunda fase a placa foi irradiada na posição 21 onde o fluxo de nêutrons é mais alto ($2,3 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s.}$). A irradiação nesta posição só foi realizada devido aos bons resultados obtidos durante a irradiação na posição 01. Nesta nova posição o fluxo de nêutrons que atingiu a placa foi de $8,456 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$. A taxa de queima do U^{235} para o fluxo integrado total foi de 0,47%.

A temperatura da placa durante a irradiação foi medida por meio de um termopar colocado em contato com a superfície da mesma e indicou $32 \pm 1^\circ \text{C}$.

A cada 15 dias a placa foi inspecionada visualmente, com auxílio de lentes de aumento, a fim de se verificar possíveis danos provocados pela irradiação que pudessem ser visíveis na sua superfície. Nada de anormal foi constatado na placa após este tempo de irradiação, podendo-se dizer que a mesma suportou perfeitamente o ambiente de trabalho.

Este resultado no entanto apesar de ser muito importante, não pode ser considerado como definitivo, pois foi um único teste e em placa de dimensões reduzidas contendo urânio natural e o fluxo de nêutrons não atingiu níveis elevados. Portanto, outros testes deverão ser efetuados em placas com tamanho normal e urânio enriquecido a 20% em peso do isótopo 235, sendo que a irradiação deverá durar até que cerca de 30% do combustível seja queimado.

V - CONCLUSÕES

Com base nos resultados experimentais, a pesquisa realizada permitiu concluir que:

a) As dispersões de urânio metálico e alumínio são facilmente compactadas até para concentração de 80% em peso de urânio, as quais apresentam densidades acima de 90% da densidade teórica da mistura.

b) As dispersões de urânio metálico e alumínio possuem boa plasticidade sob as condições de laminação das placas até cerca de 70% em peso de urânio (24% de fração volumétrica de U).

c) As placas combustíveis podem ser produzidas sem dificuldades durante o processamento metalúrgico e com boa distribuição das partículas de urânio, bom caldeamento entre a moldura, revestimento e núcleo e sem os defeitos terminais comuns nos núcleos obtidos por outros procedimentos.

d) As reações entre urânio e alumínio nas dispersões ocorrem mesmo para temperaturas da ordem de 100°C e se completam quando prolongadas por 96 horas a 600°C. Essa reação inicia-se com a formação de UAl_2 posteriormente ocorrendo a passagem para UAl_3 e do UAl_3 para UAl_4 . A velocidade dessa reação é maior nas placas laminadas do que nas dispersões apenas compactadas.

e) Não ocorre difusão de urânio através do revestimento de alumínio mesmo para temperaturas de tratamento da ordem de 600°C. A reação ocorre com a difusão do alumínio através do urânio e posteriormente pelos produtos de reação.

f) A variação na espessura das placas combustíveis, provocada pela reação entre urânio e alumínio é perfeitamente aceitável do ponto de vista de projeto.

g) A placa combustível, com 45% de urânio natural no núcleo, suportou perfeitamente bem as condições de irradiação, com um fluxo integrado de $8,663 \times 10^{18}$ n.cm².

SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

Para melhorar as condições de processamento e para se ter maiores informações quanto ao funcionamento das placas, sugere-se:

a) Realizar estudos visando aprimorar as condições de obtenção de pó de urânio.

b) Verificar a possibilidade de se interromper a laminação das placas, quando as mesmas estiverem com espessura um pouco acima da desejada (<5%), tratá-las termicamente até ocorrer a completa reação do urânio com o alumínio, continuando em seguida a laminação. Desta forma, eliminar-se-ia, durante a laminação, o efeito da dilatação provocada pela reação.

c) Realizar ensaios de irradiação em placas combustíveis com tamanho normal e núcleo constituído por dispersão de 45% em peso de urânio, sendo este enriquecido a 20% do seu isótopo, U²³⁵, até se atingir cerca de 50% de queima deste isótopo.

Após estes ensaios, realizar um estudo detalhado dos efeitos do processamento sobre a microestrutura das placas.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ADAMSON, JR., G.M. Fabrication of research reactor fuel elements. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., Jun. 1968. (ORNL-TM-2197).
2. ANDREAS, J. Einige Ergebnisse über Strukturelle und Physikalische Eigenschaften von UAl_4 . J. nucl. Mater., 34:310-2, 1970.
3. BAREIS, D.W. Studies of the aluminum-uranium alloying reaction. Upton, N.Y., Brookhaven National Lab., 1949. (AECD-3795).
4. BATTELLE MEMORIAL INSTITUTE. Ceramic matrix fuels containing coated particles: proceedings of a symposium, November 5-6, 1962. sem local, data apud Holden, AN. Dispersion fuel elements. New York, N.Y., Gordon and Breach, 1967. p.32. (Monograph series on Metallurgy in Nuclear Technology).
5. BELLE, J. Uranium dioxide: properties and nuclear applications. Washington, D.C., U.S. Government Printing Office, 1961.
6. BIERLIN, T.K. & GREEN, D.R. The diffusion of uranium into aluminum. Richland, Wash., Hanford Atomic Products Operation, 1955. (HW-38982).
7. CAPOCCHI, J.D.T.; CINTRA, S.H.L.; GENTILE, E.F. Estudo de fabricação de elementos combustíveis planos com núcleos de cerments de 65% U_3O_8 - 35% Al, revestidos com liga de alumínio. Metalurgia (São Paulo), 24(133):913-9, 1968.
8. CAPOCCHI, J.D.T.; CINTRA, S.H.L.; GENTILE, E.F. Estudo experimental de fabricação de elementos combustíveis planos contendo núcleos de cerments. Metalurgia(São Paulo), 24(124):201-11, 1968.

9. CASTHEMAN, I.S. Layer growth during interdiffusion in the aluminum-uranium alloy systems. J. Nucl. Mater., 3(1): 1-15, 1961.
10. CHERUBINI, J.H. & PETERSON, S. A technique for the quantitative characterization of dispersions. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., Feb. 1963. (ORNL-TM-446).
- X 11. CHERUBINI, J.H.; BEAVER, R.J.; LEITEN JR., C.F. Fabrication development of UO₂ - stainless steel composite fuel plates for core B of Enrico Fermi fast Breeder Reactor. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab. 1961. (ORNL-3077).
- X 12. CHIOTTI, P. & ROGERS, B.A. The production of uranium and thorium in the power form. sem local, editor, 1950. (AECD-2974;ISC-31).
13. CINTRA S.H.L.; GENTILE, E.F.; HAYDT, H.M.; CAPOCCHI, J.D.T. Desenvolvimento de placas combustíveis contendo núcleos de liga Al-20% U e Al-20% U-O,8% Si. Metalurgia (São Paulo), 24(131):781-7, 1968.
14. CINTRA, S.H.L.; GENTILE, E.F.; NIOSHIOKA, I.; ABRÃO, M.A.S.; AMBROSIO, F.F. Análise de variáveis do processo de fabricação de placas combustíveis com núcleos de dispersões de Al-U₃O₈. Metalurgia (São Paulo), 26(146):31-4, 1970.
15. CUNNINGHAM, J.E. & BEAVER, R.J. APPR fuel technology. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the second international conference on... held in Geneva, 1 September - 13 September 1958, V.6: Basic metallurgy and fabrication of fuels. Geneva, 1958. p.521-30.
16. CUNNINGHAM, J.E. & BOYLE, E.J. MTR-tube fuel elements. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the international conference on... held in Geneva, 8 August-20 August 1955, V.9: Reactor technology and chemical processing. New York, N.Y., 1956. p.203-7.

17. DE LUCA, L.S. & SUMSION, H.T. Rate of growth of diffusion layers in U-Al and U-AlSi couples. Schenectady, N.Y., Knolls Atomic Power Lab., 1957. (KAPL-1747).
18. DIENST, W.; NAZARE, S.; THÜMLER, F. Irradiation behaviour of UAlx-Al dispersion fuels for thermal high flux reactors., J. nucl. Mater., 64:1-13, 1977.
19. GIBSON, G.W. The development of powdered uranium-aluminide compounds for use as nuclear reactor fuels. Idaho Falls, Idaho, Idaho Nuclear Corp., 1967. (IN-1135).
20. HAYDT, H.M. & CINTRA, S.H.L. Nota preliminar sobre a fabricação de elementos combustíveis planos contendo núcleo de ligas Al-U. Metalurgia (São Paulo)., 23(120):955-60, 1967.
21. HOLDEN, A.N. Dispersion fuel elements. New York, N.Y., Gordon and Breach, 1967.
22. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Fuel elements fabrication with special emphasis on cladding materials: proceedings of a symposium held in Vienna, May 10-13, 1960, V.1. New York, N.Y., Pergamon, 1961.
23. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Fuel element fabrication with special emphasis on cladding materials: proceedings of a symposium held in Vienna, May 10-13, 1960, V.2. New York, N.Y., Academic, 1961.
24. JACOB, C.W. & WARREN, B.E. The crystalline structure of uranium. J. Am. chem. Soc., 59:2588, 1937.
25. KAUFMAN, A.R. Nuclear reactor fuel elements, metallurgy and fabrication. New York, N.Y.; Interscience, 1962.
26. KIESSLING, R. The solid state reaction between uranium and aluminium. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the international conference on... held in Geneva 8 August-20 August 1955, V.9: Reactor technology and chemical processings New York, N.Y., 1956. p.69-73.

27. LECLAIRE, A.D. & BEAR, I.J. The interdiffusion behaviour of uranium and aluminum. Harwell, Engl., Atomic Energy Research Establishments, 1952. (AERE-M/R-878).
- X 28. LLOYD, H. Development of UO₂-stainless-steel fuel plates containing 50-5 U/O óxido. Harwell, Engl., Atomic Energy Research Establishment, 1962. (AERE-R-4324).
29. MATZ, G. Fabrication of fuel elements. Vienna, International Atomic Energy Agency, 1962. (Review series, 25).
- X 30. MURRAY, J.R. The rate of growth of UAt₃ layers of alpha uranium. Harwell, Engl., Atomic Energy Research Establishment, 1951. (AERE-M/R-799).
31. NAZARÉ, S.; ONDRACEK, G.; THÜMMER, F. Investigations on UAl_x M dispersion fuels for high-flux reactors. J. nucl. Mater., 56:251-9, 1975.
32. OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY. Nuclear reactor chemistry: second conference Gatlinburg, Tennessee, October 10-12, 1961. Oak Ridge, Tenn., Jul. 1962. (TID-7622).
33. ROBERTSHAU, F.C. Comprehensive summary report on 80 Nickel, 20 Chromium fuel elements. Oct. 1960. (PREDC-759) apud HOLLEN, A.N. Dispersion fuel elements. New York, N.Y., Gordon and Breach, 1967. p.32. (Monograph series on Metallurgy in Nuclear Technology).
- X 34. GALLER, H.A. Preparation, properties and cladding of aluminum-uranium alloys. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the international conference on... held in Geneva 8 August-20 August 1955, V.9: Reactor technology and chemical processing. New York, N.Y., 1956, p.214-20.
35. SAMOILOVI, A.G.; KASHTANOV, A.I.; VOLKOV, O.S. Dispersion fuel nuclear reactor elements. Jerusalem, Manson, 1968.

36. SOUZA SANTOS, T.D.; CAPOCCHI, J.D.T.; CINTRA, S.H.L. Estudo experimental de elementos combustíveis planos dotados de múltiplos cerments. Metalurgia (São Paulo), 24(125): 295-300, 1968.
37. SOUZA SANTOS, T.D.; HAYDT, H.M.; FREITAS, C.T. Development in fuel fabrication for research reactors in Brazil. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceeding of the third international conference on... held in Geneva 31 August-9 September 1964. V.10: Nuclear fuels, I. Fabrication and reprocessing. New York, N.Y., 1965. p.26-31.
38. SOUZA SANTOS, T.D.; HAYDT, H.M.; FREITAS, C.T. Fabricação elementos combustíveis para o reator Argonautas do Instituto de Engenharia Nuclear. Metalurgia (São Paulo), 21(90): 369-76, 1965.
39. SOUZA SANTOS, T.D.; HAYDT, H.M.; FREITAS, C.T.; GENTILE, E.F.; CINTRA, S.H.L. Característica de placas delgadas para elementos combustíveis contendo dispersões de U_3O_8-Al . Metalurgia (São Paulo), 22(120):955-60, 1967.
40. STORCHEIN, S. & ZAMBROW, J. Sylvania Electric Products Inc., 1952. (Unpublished) apud HOLDEN A.N. Physical metallurgy of uranium. Reading, Mass, Addison-Wesley, 1958. p.1952.
41. THURBER, W.C. & BEAVER, R.J. Segregation in uranium-aluminum alloys and its effect on the fuel loading of aluminum-base fuel elements. In: UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION. Reactor fuel measurements techniques symposium: papers presented at the... held at Kellogg Center, Michigan State University, East Lansing, Michigan, June 18-20, 1958. Oak Ridge, Tenn., 1958. p.9-29. (TID-7560).
42. UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION. Fuel elements conference, Paris, November 18-23, 1957, V.1. Oak Ridge, Tenn., Mar. 1958. (TID-7546).

43. UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION. Fuel elements conference Paris, November 18-23, 1957, V.2. Oak Ridge, Tenn., Mar. 1956. (TID-7546).
44. UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION. Research reactor fuel element conference, September 17-19, 1962, Gatlimburg, Tennessee, V.1. Oak Ridge Tenn., 1962. (TID-7642).
45. UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION. Research reactor fuel element conference, September 17-19, 1962, Gatlimburg, Tennessee, V.2. Oak Ridge, Tenn., 1962. (TID-7642).
46. WEBER, J.T.; CHIOTTI, P.; MINER, W.N., editors. International symposium on compounds of interest in nuclear reactor technology nuclear metallurgy, V.10. Boulder, Colo., Inst. of Metals Div., AIME, Aug. 1964. apud HOLDEN, A.N. Dispersion fuel elements. New York, N.Y., Gordon and Breach 1967. p.32. (Monograph series on metallurgy in nuclear technology).
47. WEBER, C.E. Progress on dispersion elements. Progr. nucl. Energy, Ser. 5. 2:295-379, 1959.
48. WEBER, C.E. & HIRSCH, H.H. Dispersion-types fuel elements. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of Atomic Energy: proceedings of the international conference on...held in Geneva, 8 August-20 August 1955, V.9: Reactor technology and chemical processing. New York, N.Y., 1956. p.196-202.
49. WHITE, D.W., BEARD, A.P.; WILLIS, A.H. Irradiation behaviour of dispersion fuels. In: UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION. Fuel elements conference, Paris November, 18-23, 1957, V.2. Washington, D.C., Mar. 1958. p.717-47. (TID-7546).
50. WICK, D.J.; NELSON, T.C.; FRESHLEY, M.D. Plutonium fuels development. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the second international conference on...held in Geneva 3 September-13 September 1958, V.6: Basic metallurgy and fabrication of fuels. Geneva, 1958. p.700-9.

51. WILKINSON, W.D. Uranium metallurgy. V.1: Uranium process metallurgy. New York, N.Y. Interscience, 1962.