

CONTRÔLE DIMENSIONAL DE PASTILHAS DE URÂNIA PARA O REATOR "RE-SUCO" ⁽¹⁾

PAULO SERGIO C. PEREIRA DA SILVA ⁽²⁾

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS ⁽³⁾

CLAUER TRENCH DE FREITAS ⁽⁴⁾

RESUMO

Os autores estudam os princípios de controle dimensional de pastilhas de UO_2 para elementos combustíveis de reatores, aplicando-os ao caso do reator sub-crítico "Re-Suco" em construção no Instituto de Energia Atômica, São Paulo. Com base na definição do "índice de sinterização", foram estabelecidas as expressões que relacionam as principais variáveis em jogo, cujos valores são obtidos experimentalmente. A aplicação do "índice de sinterização" permite escolher a sequência de operações mais conveniente do ponto de vista de investimento e de despesas de fabricação e facilitar o controle de qualidade durante a fabricação das pastilhas. Nas conclusões estão indicadas as faixas de variação permissíveis dos valores dos principais característicos geométricos e físicos para satisfazer aos dados de projeto do reator.

1. INTRODUÇÃO

É de conhecimento geral que os combustíveis nucleares cerâmicos apresentam particular interesse, principalmente por possibilitarem temperaturas elevadas de operação, o que concorre para o aumento do rendimento térmico do reator.

Uma das grandes dificuldades encontradas na produção dos elementos combustíveis cerâmicos para reatores reside na faixa de tolerâncias muito rígida das dimensões das peças constituintes.

-
- (1) Contribuição Técnica N.º 539. Apresentada ao XVIII Congresso Anual da ABM; Belo Horizonte, julho de 1963.
 - (2) Membro da ABM; Responsável pela Seção de Metalografia, Divisão de Metalurgia, Instituto de Pesquisas Tecnológicas; anteriormente na Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.
 - (3) Membro da ABM; Divisão de Metalurgia, Instituto de Pesquisas Tecnológicas, em comissão no Instituto de Energia Atômica, na chefia da Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.
 - (4) Membro da ABM; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo.

Na manufatura de precisão de peças cerâmicas em geral a tolerância de dimensões é de 1% no caso de dimensões de mais de 10 mm. Para reatores em que o elemento combustível seja constituído por pastilhas de material cerâmico encapsulado em revestimento metálico compatível, é desejável que as flutuações de dimensões sejam bastante inferiores a 1%¹. Convém lembrar que é em geral inconveniente serem as pastilhas esmerilhadas por "centerless grinder" para acerto das dimensões, porquanto assim seria removida a camada pelicular cujas propriedades são em geral superiores às do núcleo, além de que essa operação pode determinar o aparecimento de fissuras, as quais influenciarão desfavoravelmente o comportamento do material no reator.

No caso dos elementos combustíveis do reator sub-crítico "Re-Suco" as tolerâncias dimensionais são bastante mais amplas em virtude de serem quase as ambientes as temperaturas de funcionamento. Não obstante, foi julgado conveniente adotar um método rígido de controle dimensional para permitir reduzir os custos de fabricação, e, ao mesmo tempo, fornecer experiência para ulterior desenvolvimento de combustíveis cerâmicos para reatores de potência.

2. ÍNDICE DE SINTERIZAÇÃO

A sinterização de corpos compactados de UO_2 é fenómeno cujo mecanismo tem sido muito estudado. Supõe-se que a sinterização seja determinada principalmente pela difusão de átomos de oxigênio intersticiais em excesso sobre a quantidade estequiométrica². Diversos outros fatores intervêm, parecendo os principais serem a relação O/U do material e a superfície específica do pó³. Não existe, entretanto, ainda estudo sistemático da influência de tôdas as inúmeras variáveis que intervêm, sejam as relacionadas aos pós utilizados, sejam as que decorrem das etapas do processo de sinterização.

Entretanto, sem se preocupar com as causas microscópicas ou com o mecanismo da sinterização, preferem os autores considerar a sinterização como o processo de fechamento de poros do material compactado, em virtude da aplicação de temperatura, por tempo determinado, ao material. Assim entendida, a sinterdensidade da substância que o constitui. No caso do UO_2 a sinterização é encarada sob o ponto de vista "macroscópico", isto é, do efeito que resulta do processo de sinterização.

O limite teórico da sinterização é portanto a ausência de póros no material, isto é, o sólido sinterizado apresenta a mesma

ter-se-ia um sólido de densidade 10,97 g/cm³, conforme os melhores dados disponíveis.

O índice de sinterização I_s pode então ser definido como

$$I_s = \frac{v_c - v_s}{v_c}$$

onde v_c é a percentagem volumétrica de vasios no estado compactado e v_s é a percentagem volumétrica de vazios no estado sinterizado. É evidente que

$$v_c = 1 - \frac{d_c}{d_t}$$

$$v_s = 1 - \frac{d_s}{d_t}$$

onde d_s , d_c e d_t são respectivamente as densidades nos estados sinterizado e compactado e a densidade teórica.

Da definição resulta

$$I_s = \frac{d_s - d_c}{d_t - d_c} \tag{1}$$

ou

$$d_s = (1 - I_s) d_c + I_s d_t \tag{2}$$

Antes de qualquer verificação experimental, é necessário que o índice assim definido satisfaça às seguintes condições de contorno:

- a) $I_s = 1$ se d_c é qualquer $d_s = d_t$
- b) $I_s = 0$ se d_c é qualquer $d_s = d_c$
- c) $d_c = d_t$ se d_s é qualquer $d_s = d_t$

Constata-se assim que: a) é satisfeita a menos de $d_c = d_t$; b) é satisfeita a menos de $d_c = d_t$ e c) é satisfeita como se pode verificar na expressão (2); na expressão (1) ter-se-á uma indeterminação.

Com base na expressão (2) foram representados na fig. 1 os valores de d_s em função de d_c para vários valores de I_s . Essas retas, representativas dessa função, não são definidas nos pontos $d_c = 0$ e $d_c = d_t$.

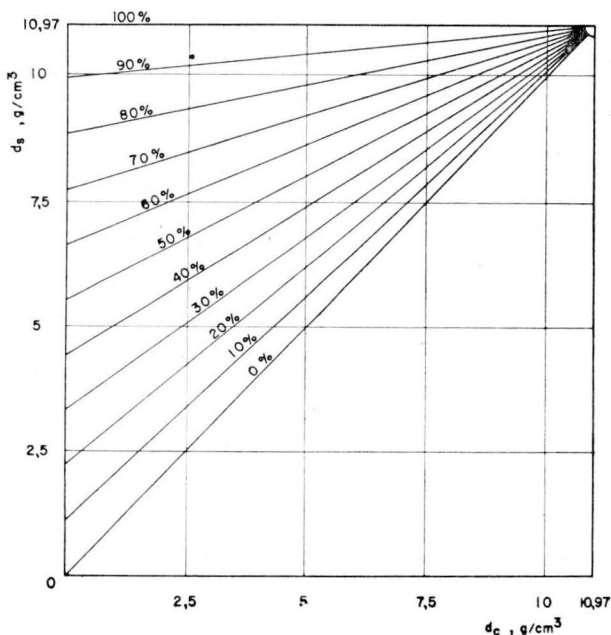


Fig. 1 — Variação dos valores de d_s em função de d_c para valores de I_s variáveis de 0 a 100%.

3. ANÁLISE DAS CONDIÇÕES DE GEOMETRIA PARA AS PASTILHAS DE UO_2 PARA O REATOR “RE-SUCO”

As tolerâncias dimensionais das pastilhas para o reator “Re-Suco” são bem mais amplas do ponto de vista de térmica do reator do que no caso de pastilhas destinadas a reatores de potência. Entretanto, ainda assim, devem as pastilhas a serem produzidas ter suas dimensões dentro de determinados limites rígidos após terem sido sinterizadas. O processo que se emprega para satisfazer a essas condições geométricas é o seguinte: após algumas experiências preliminares, dimensiona-se a matriz para a compactação de forma que a pastilha, depois de sinterizada em determinadas condições, se aproxime o mais possível da especificação. Muitas vezes se prevê excesso nas dimensões, o qual é corrigido por esmerilhamento superficial, o que entretanto é desaconselhado, conforme foi lembrado anteriormente.

Por êsses motivos não se cogitou de esmerilhamento final para a produção das pastilhas sinterizadas destinadas ao reator “Re-Suco”; além disso, e para ganhar precioso tempo, a matriz fôra encomendada enquanto ainda se achavam em curso os estudos referentes à contração na operação de sinterização.

Para solucionar o problema, raciocinaram os autores da seguinte maneira: entre a pastilha no estado compactado e a pastilha no estado sinterizado deve haver uma diferença de massa, resultante de dois fatores principais: volatilização de materiais incorporados à carga (aglomerantes e lubrificantes) e modificação da relação O/U no processo de sinterização, principalmente quando realizada sob atmosfera de hidrogênio.

Chamando-se

$$I_3 = \frac{m_c}{m_s} \quad (3)$$

onde m_c e m_s representam, respectivamente, as massas nos estados compactado e sinterizado, esse índice I_3 traduzirá essas variações de massa no processo. Supondo uma modificação quase extrema em que o valor da relação O/U passasse de 2,15 a 2,01 no processo de sinterização, e no caso usual de se utilizar 2% de aglomerante e 0,5% de lubrificante na carga de óxido $UO_{2,15}$ o valor de I_3 é de 1,34, isto é, a massa unitária de material compactado, nas condições indicadas, reduz-se a 0,96758 unidades de massa nas condições da sinterização.

É evidente que I_3 será tanto mais próximo da unidade quanto menor a quantidade de aglomerante e de lubrificante incorporada à carga e quanto mais próxima da estequiométrica fôr a relação O/U do pó tratado.

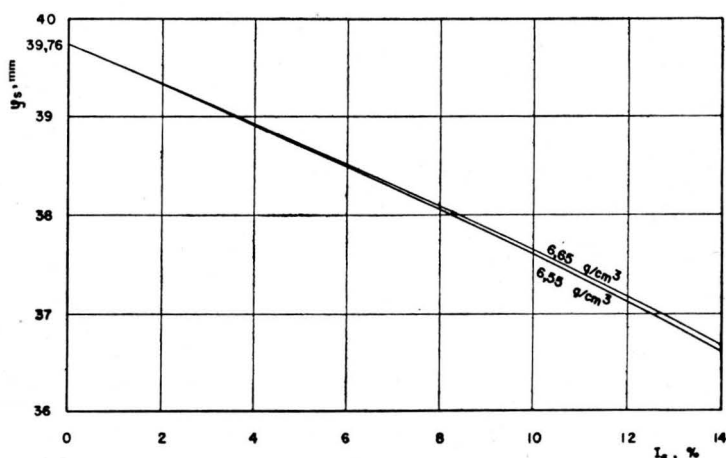


Fig. 2 — Variação de φ_s em função de I_3 para valores determinados de d_s , e supondo-se valores determinados para I_2 e I_3 .

Em seguida: pode-se esperar que durante a sinterização a pastilha sofra contração axial diferente da contração diametral. Pode-se assim definir

$$\frac{\varphi_c}{\varphi_s} = I_2 \frac{h_c}{h_s} \quad (4)$$

onde φ_c e φ_s representam os diâmetros nos estado compactado e sinterizado, respectivamente, e h_c e h_s as alturas correspondentes.

Resultam assim as equações:

$$m_c = I_3 m_s \quad (5)$$

$$\frac{\varphi_c}{\varphi_s} = I_2 \frac{h_c}{h_s} \quad (6)$$

$$d_c = \frac{4 m_c}{\pi \varphi_c^2 h_c} \quad (7)$$

$$d_s = \frac{4 m_s}{\pi \varphi_s^2 h_s} \quad (8)$$

$$I_s = \frac{d_s - d_c}{d_t - d_c} \quad (9)$$

Das quatro primeiras equações resulta

$$d_c = I_2 I_3 d_s \left(\frac{\varphi_s}{\varphi_c} \right)^3$$

que, substituída em (9) resulta

$$\varphi_s^3 = \frac{\varphi_c^3}{I_2 I_3} \frac{d_s - d_t I_s}{d_s (1 - I_s)}$$

Nessa equação d_s é dada pelas condições do reator, φ_c pela matriz e φ_s pela condição geométrica. Podem assim ser traçadas as curvas de φ_s em função de I_s para vários valores de d_s , supondo um certo valor de I_2 e de I_3 (fig. 2).

Verificando-se experimentalmente os valores mais prováveis de I_3 em um dado processamento, e de I_2 numa dada geometria, pode-se obter na fig. 2 o valor de I_s compatível com a condição de geometria. Para esse I_s a fig. 1 indica a densidade no estado compactado necessária para que seja satisfeita a condição de densidade. Ter-se-ão assim satisfeitas ambas as condições, a

densidade e a geometria. Convém observar que não é de se esperar grandes flutuações nos valores de I_3 e de I_2 , como decorre de suas próprias definições.

4. APLICAÇÃO DO “ÍNDICE DE SINTERIZAÇÃO”

A aplicação do “índice de sinterização” como anteriormente proposto, pode assumir dois aspectos de interesse:

- a) Escolha da sequência de operações mais conveniente do ponto de vista da economia e do investimento na instalação; e
- b) Contrôlo de qualidade durante a fabricação, uma vez fixada a sequência das operações.

No caso particular das pastilhas para o reator “Re-Suco”, o valor fixado pelo projeto para a densidade no estado sinterizado era $d_s = 6,60 \text{ g/cm}^3$, devendo $\varphi_s = 38,00 \text{ mm}$, a matriz especialmente construída para êsse fim fornecendo $\varphi_c = 40,15 \text{ mm}$ nas condições de compactação escolhidas para as cargas produzidas.

Na especificação da pastilha admitia-se uma certa variação de densidade bem como certa variação de diâmetro. Além disso, a matriz de compactação fornecia pastilhas que, mantidas constantes tôdas as condições de fabricação, apresentavam variação aleatória de diâmetro dentro de certos limites. Essas variações são, contudo, problema de contrôlo durante a fabricação, segundo aspecto da questão e que será tratado mais adiante.

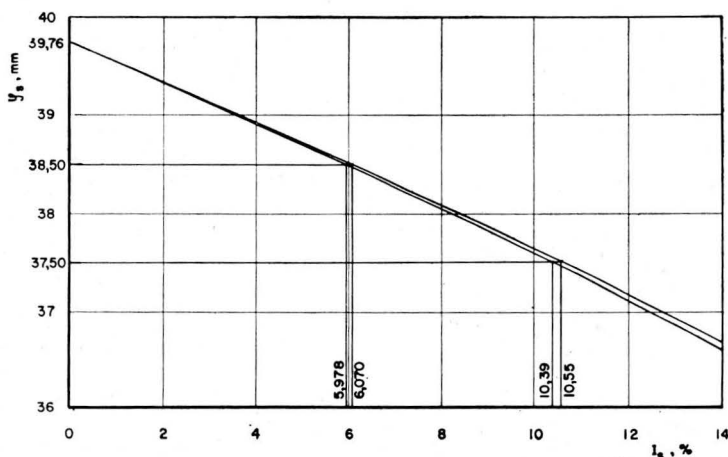


Fig. 3 — Aplicação no caso “Re-Suco” de determinação de I_s em função de φ_s .

O trabalho foi iniciado examinando-se várias seqüências de operação possíveis, tanto com base nos trabalhos anteriores à organização da Divisão de Metalurgia Nuclear como nos existentes na literatura. Com base nessas orientações, foram produzidas 94 pastilhas sinterizadas, obtidas em diferentes condições de redução de diuranato de amônio, diferentes aglomerantes, diferentes proporções de aglomerantes na carga, diferentes tempos de condicionamento, diferentes diâmetros, etc. Os índices I_2 e I_3 dessas pastilhas podem ser examinados como variáveis aleatórias de distribuição normal, pois “essa distribuição justifica-se teoricamente, toda vez que o atributo observado resulta da soma de numerosas variáveis ocasionais, independentes de variância pequena em comparação com a variância do atributo. Este esquema é, por exemplo, apresentado pelos produtos industriais, onde a qualidade final resulta da soma de efeitos de vários processos intermediários, cujos efeitos são independentes entre si”⁴.

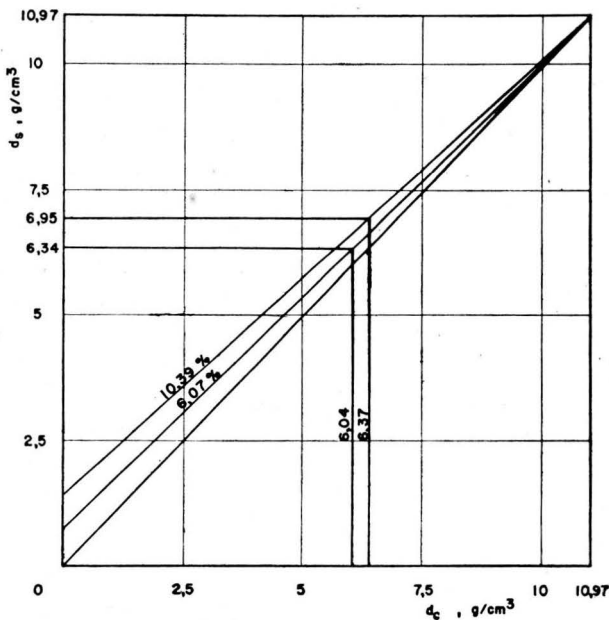


Fig. 4 — Aplicação no caso “Re-Suco”: para d_c compreendido entre 6,04 e 6,37 g/cm^3 e I_s compreendido entre 6,07 e 10,30% poder-se-á ter a certeza de d_s ficar compreendida entre 6,34 e 6,95 g/cm^3 .

É evidente que as médias \bar{I}_2 e \bar{I}_3 dessas 94 pastilhas não representam os valores mais prováveis de I_2 e I_3 numa determinada seqüência de operações, mas, desde que a variância apresentada por I_2 e por I_3 seja pequena, é razoável a adoção desses valores

médios como orientação para a escolha da seqüência das operações.

Na análise feita, os índices I_2 e I_3 obtidos para essas 94 pastilhas, com 10, 20 e 40 mm de diâmetro, em consequência da precisão dos aparelhos de medida empregados, foram os seguintes:

$$\bar{I}_2 = 1,00 \quad \text{com } s^2(I_2) = 0,000109 \text{ e } s(I_2) = 0,01$$

$$\bar{I}_3 = 1,0268 \quad \text{com } s^2(I_3) = 0,000276 \text{ e } s(I_3) = 0,0166$$

onde \bar{I}_2 e \bar{I}_3 são as médias aritméticas, $s^2(I_2)$ e $s^2(I_3)$ são as respectivas variâncias e $s(I_2)$ e $s(I_3)$ são os respectivos desvios-desvios-padrão.

5. CONCLUSÕES

1. *Escolha da seqüência de operações* — De acordo com os dados apresentados (fig. 2) para se obter pastilhas sinterizadas com $\varphi_s = 38,00$ mm e $d_s = 6,60$ g/cm³ a partir de pastilhas de $\varphi_c = 40,15$ mm, deve-se ter $I_s = 8,29\%$ e, pela fig. 1, as pastilhas devem ter $d_c = 6,20$ g/cm³. É evidente que este resultado auxilia o trabalho experimental pois dispensam-se a priori condições

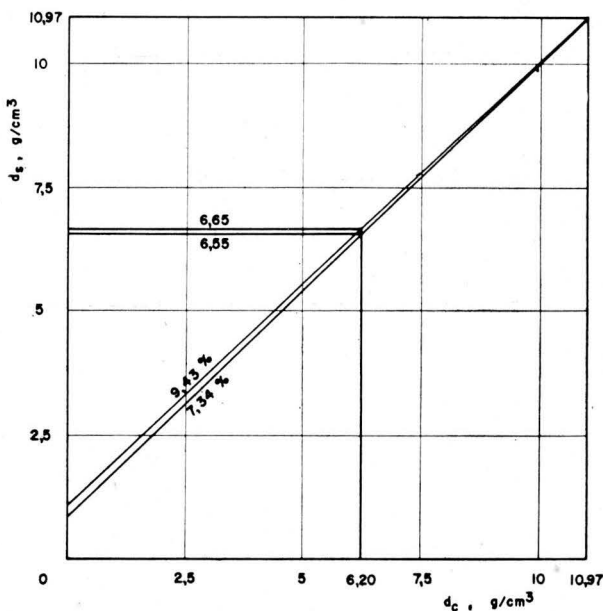


Fig. 5 — Aplicação no caso "Re-Suco": para $d_c = 6,20$ g/cm³ e para que d_s fique compreendida entre 6,55 e 6,65 g/cm³, o valor de I_s deverá ficar compreendido entre os limites de 7,34 e 9,43%.

de sinterização muito severas que dariam I_s muito elevado, bem como limita-se a procura de densidades no estado compactado a valores da ordem de $6,20 \text{ g/cm}^3$.

2. *Contrôle da qualidade durante a fabricação* — Os resultados anteriores podem ser encarados sob vários aspectos no que diz respeito ao contrôle de qualidade durante a fabricação. Examinam-se a seguir as conclusões que podem ser tiradas de interêsse direto para o trabalho em questão.

a) A fig. 2 dá o máximo valor de I_s para que a condição de geometria seja satisfeita; conseqüentemente, a fig. 1 forneceria o mínimo da densidade no estado compactado compatível com uma certa condição de geometria.

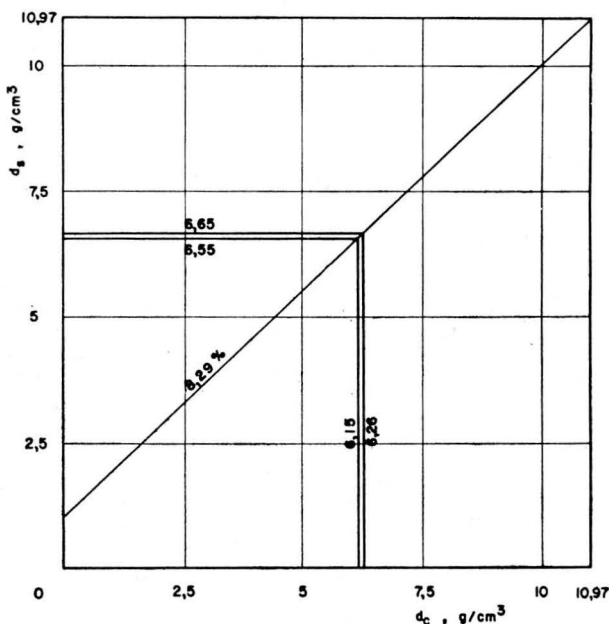


Fig. 6 — Aplicação no caso “Re-Suco”: para $I_s = 8,29\%$ para que d_s fique compreendida entre os valores $6,55$ e $6,65 \text{ g/cm}^3$, d_c terá de variar entre $6,15$ e $6,26 \text{ g/cm}^3$.

No caso do “Re-Suco” dever-se-ia ter $37,5 \text{ mm} \leq \varphi_s \leq 38,5 \text{ mm}$ e $6,55 \text{ g/cm}^3 \leq d_s \leq 6,65 \text{ g/cm}^3$, e, portanto, na fig. 3 ter-se-á $I_s \leq 10,39\%$ e na fig. 1 $d_c \geq 6,04 \text{ g/cm}^3$.

b) A fig. 2 dá o mínimo valor de I_s para que a condição de geometria seja sempre satisfeita; conseqüentemente, na fig. 1 ter-se-á o máximo valor da densidade no estado compactado compatível com uma certa condição de geometria.

No caso do "Re-Suco", por exemplo, dever-se-á ter, conforme a fig. 3: $I_s \geq 6,07\%$ e na fig. 1 $d_c \leq 6,370 \text{ g/cm}^3$.

c) Para pastilhas produzidas nas mesmas condições, é razoável que se espere uma certa variação aleatória de I_s para as mesmas condições de sinterização. A fig. 2 dá a variação máxima admissível para I_s para que a condição de geometria possa ser sempre satisfeita; no caso do "Re-Suco" é naturalmente necessário que o controle sobre as operações, principalmente as de sinterização, assegure um valor de I_s compreendido entre 6,07% e 10,39%.

d) Além da variação aleatória de I_s é de se esperar uma variação aleatória de d_c para pastilhas produzidas nas mesmas condições. Conhecendo-se estas variações que são características do processo de fabricação, pode-se determinar na fig. 1 qual a faixa de tolerância para d_s que com este processo vai ser possível satisfazer.

No caso do "Re-Suco" para d_c compreendido entre 6,04 e 6,37 g/cm^3 e I_s compreendido entre 6,07 e 10,39%, conforme indicado na fig. 4, poder-se-á no máximo ter a certeza de satisfazer a faixa de d_s entre os valores de 6,34 e 6,95 g/cm^3 .

e) Se no processo de fabricação se verificar d_c praticamente constante, pode-se determinar na fig. 1 qual a máxima variação de I_s admissível para que uma certa faixa de tolerância de d_s possa ser sempre obedecida. Ainda no caso do "Re-Suco" para $d_c = 6,20 \text{ g/cm}^3$ e para se satisfazer a condição de densidade indicada, isto é, que d_s fique compreendida entre 6,55 e 6,65 g/cm^3 , deve-se ter de acordo com a fig. 5 índice de sinterização I_s compreendido entre 7,34 e 9,43%.

f) Se no processo de fabricação se verificar que I_s é praticamente constante, pode-se determinar pelo gráfico da fig. 1 qual a máxima variação de d_c admissível para que uma certa faixa de tolerância de d_s possa ser sempre obedecida. Assim, no caso do "Re-Suco" para $I_s = 8,29\%$, e para que seja satisfeita a condição de densidade especificada, isto é que d_s fique compreendida entre 6,55 e 6,65 g/cm^3 , conforme mostra a fig. 6, o valor de d_c terá de ficar compreendido entre 6,15 e 6,26 g/cm^3 .

REFERÊNCIAS

1. HARTWIG, F. J. — *Dry Pressing Ceramic Fuel Elements to Close Tolerances*. Third Pacific Area Meeting Papers Material in Nuclear Applications, pg. 301, ASTM, 1960.

2. WILKINSON, W. D. — *Combustíveis Cerâmicos e Grafita*, pg. 53, CNEN-1-EN, Rio de Janeiro, 1961.
3. WILKINSON, W. D. — Id, pg. 56.
4. SILVA LEME, R. A. — *Curso de Estatística*. Escola Politécnica da Universidade de São Paulo, São Paulo, 1959.