

# ESTUDO DA FORMAÇÃO DE TRINCA TRANSVERSAL NA ÁREA DE SUPERFÍCIE DA CIRCUNFERÊNCIA DA PASTILHA DE $UO_2$ <sup>1</sup>

*Dionísia dos Santos Oliveira<sup>2</sup>  
Lélia Fernanda Pinto Custódio Paneto<sup>2</sup>  
Patrícia Oliveira de Souza<sup>2</sup>*

## Resumo

O dióxido de urânio ( $UO_2$ ) é usado em reatores nucleares resfriados à água, por apresentar características cerâmicas desejáveis ao combustível nuclear. O  $UO_2$  sendo usado na forma de pastilhas fabricadas por rota úmida pela INB, são carregados em varetas combustíveis compondo os elementos utilizados nos reatores nucleares à água pressurizada de Angra 1, Angra 2 e futuramente Angra 3, para geração de energia nuclear no Brasil. A integridade geométrica e estrutural destas pastilhas influencia no seu desempenho durante o ciclo de operação no núcleo do reator, logo pastilhas apresentando trincas superficiais conduzem ao fenômeno de interação com o tubo de revestimento, podendo ocasionar em falhas na vareta e subsequente liberação de produtos de fissão no refrigerante do reator. Trincas transversais na área de superfície da circunferência das pastilhas são detectadas através de inspeção visual durante o processo de fabricação. O presente trabalho apresenta o estudo da formação destas trincas através de análise do conteúdo realizada com o apoio da microscopia eletrônica. Os resultados aqui são analisados do ponto de vista da ciência dos materiais através da observação da microestrutura, e pelo processo de prensagem onde possivelmente foi gerado o defeito.

**Palavras-chave:** Pastilhas de  $UO_2$ ; Trincas transversais; Processo de fabricação.

## STUDY OF TRANSVERSE CRACK FORMATION ON SURFACE AREA OF PELLET $UO_2$ CIRCUMFERENCE

### Abstract

The uranium dioxide ( $UO_2$ ) is used in water-cooled nuclear reactors, due to its desirable ceramics characteristics as a nuclear fuel. The  $UO_2$  being used in the form of pellets manufactured by wet route by INB, where they are loaded into fuel rods to build the fuel assemblies used in pressurized water reactors of Angra 1, Angra 2 and future Angra 3 nuclear power plants, for nuclear power generation in Brazil. The geometric and structural integrity of these pellets influence on their performance during the operating cycle in the reactor core then pellets showing surface cracks leading to the phenomenon of pellet cladding interaction-PCI, resulting in failures in the fuel rod and subsequently release of fission products in the reactor coolant. Transverse cracks on surface area of pellet circumference are detected by visual inspection during the manufacturing process. This paper presents the study of the formation of these cracks through content analysis conducted with the support of electron microscopy. These results here are analyzed from the point of view of materials science through observation of the microstructure, and the pressing process where the defect was generated possibly.

**Keywords:**  $UO_2$  pellets; Transverse cracks; Manufacturing process.

<sup>1</sup> *Contribuição técnica ao 68º Congresso Anual da ABM - Internacional, 30 de julho a 2 de agosto de 2013, Belo Horizonte, MG, Brasil.*

<sup>2</sup> *Eng<sup>a</sup> Metalúrgica, Eng<sup>a</sup> Química e Eng<sup>a</sup> de Produção. ESEN. Gerência de Análise Técnica do Combustível Nuclear – GEACO.N, Indústrias Nucleares do Brasil S. A. Resende, RJ, Brasil.*

## 1 INTRODUÇÃO

As pastilhas combustíveis de dióxido de urânio são produzidas no Brasil através de uma sequência de etapas de fabricação com medidas de controle que visam assegurar a conformidade do produto com os requisitos de projeto.<sup>(1)</sup> No processo de fabricação, após homogeneização do pó de  $UO_2$  com  $U_3O_8$  oriundo de material reciclado e lubrificante, a mistura homogeneizada é transportada para a prensa rotativa automática onde através de uma matriz metálica por pressão aplicada pelo punção superior e inferior dão formas às pastilhas, denominadas pastilhas verdes, ainda não sinterizadas. As pastilhas verdes são então encaminhadas para um forno de sinterização e aquecidas a  $1.750^\circ C$  para ganhar rigidez e adquirir a resistência necessária às condições de operação a que são submetidas dentro do reator das usinas nucleares de Angra 1 e Angra 2.<sup>(2)</sup>

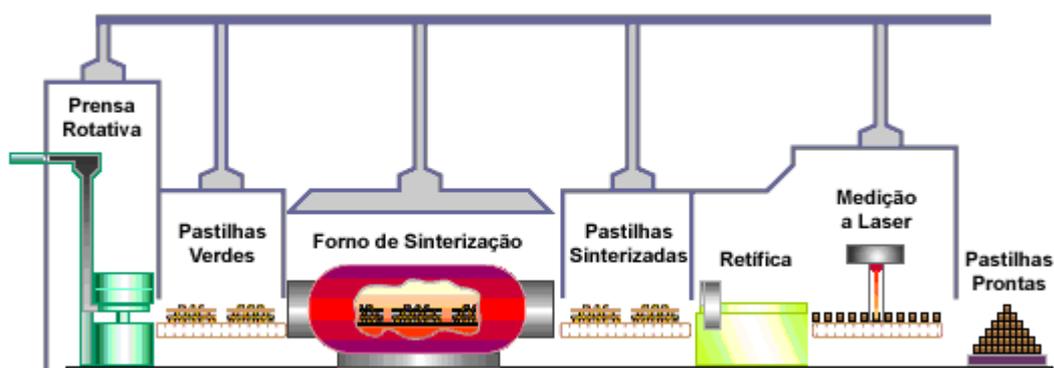


Figura 1: Processo de fabricação das pastilhas combustíveis  $UO_2$ .<sup>(2)</sup>

Após os processos de prensagem, sinterização e retífica (Figura 1), a etapa de inspeção visual permite verificar se ocorreram trincas na superfície das pastilhas combustível de  $UO_2$  como é mostrado na Figura 2, onde estão apresentadas duas pastilhas com trincas transversais na área de superfície de suas circunferências. O presente trabalho tem como objetivo estudar a formação dessas trincas através de exames em metalografia por microscopia ótica e de varredura e da análise dos parâmetros que influenciam o processo de prensagem.



Figura 2: Pastilhas tipo padrão apresentando trinca transversal na área de superfície de sua circunferência.

## 2 MATERIAL E MÉTODOS

Pastilha combustível de  $UO_2$  fabricada por rota úmida com densidade nominal  $10,40 \text{ g/cm}^3$  e enriquecimento de 4,25% de urânio 235 apresentando trinca

transversal na área de circunferência foi utilizada para análise de microscopia. A secção de corte da amostra da pastilha combustível de  $UO_2$  foi obtida de forma que se observasse com clareza a extensão da trinca; da superfície ao interior da pastilha, e então embutida em resina a frio com ataque térmico a  $1.400^\circ C$  durante 4 horas para análise em metalografia por microscopia ótica com aumento de 100X e microscopia de varredura com aumento de 400X.

Os parâmetros de processo de homogeneização e prensagem adequadas ao projeto da pastilha são apresentados na tabela 1 e então comparados com os parâmetros de processo de prensagem gerados na produção das pastilhas que apresentaram a trinca. As análises foram feitas através da consulta dos dados do programa de controle da prensa conforme demonstrado na Tabela 2: pressão inferior e pressão superior do punção, pressão de lubrificação, densidade da pastilha verde, profundidade de enchimento e velocidade de prensagem.

**Tabela 1:** Parâmetros do processo de homogeneização e prensagem

Valores nominais de operação		Faixa	Valor desejado (set-point)	Unidade
Tempo de homogeneização	mín	$\geq 120$	120	minutos
Faixa de densidade verde	valor	5,55 a 5,75	5,65	$g/cm^3$
Faixa de pressão de prensagem	faixa	1,5 a 5,0	-	$t/cm^2$
Velocidade de prensagem	faixa	101 a 152	101	pastilhas/minuto

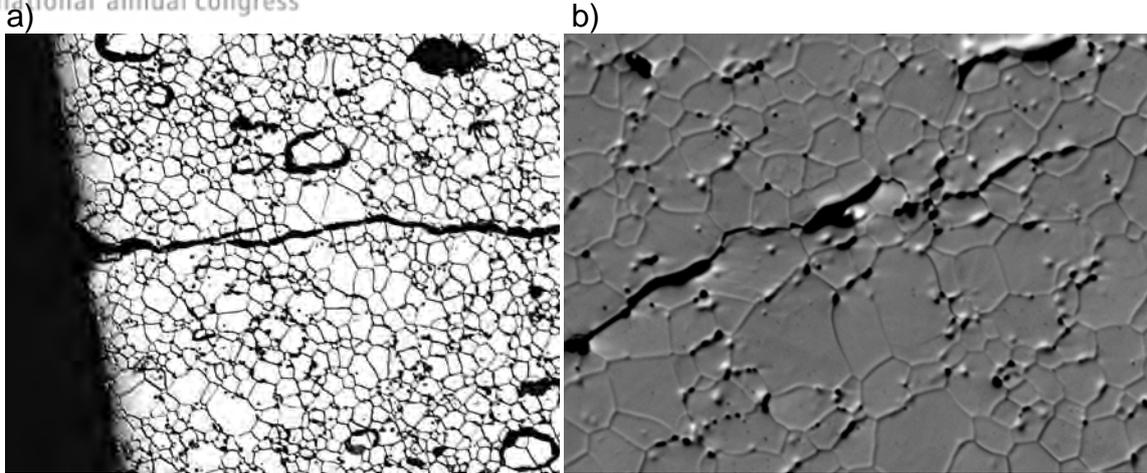
**Tabela 2:** Parâmetros de produção da prensa

Corridas	Pressão (bar)			Profundidade de enchimento	Altura da mesa	Para densidade alvo de $5,75 g/cm^3$ <sup>(1)</sup>	
	Superior	Inferior	Lubrificação			Número do punção cuja pastilha está acima da tolerância	Densidade da pastilha acima da tolerância
1	8,8	8,8	1,8	34,5	17,1	-	-
3	8,7	8,7	1,8	34,5	17,1	13	5,83
5	8,7	8,7	1,8	34,8	17,1	-	-
7	8,8	8,8	1,0	34,5	17,1	15	5,83
9	8,8	8,8	1,8	33,6	17,1	13	5,85
11	8,78	8,78	1,0	33,8	17,1	-	-
13	8,77	8,77	1,8	34,2	17,2	13 15	5,84 5,86
15	8,9	8,9	1,8	34,3	17,2	-	-

(1) Densidade verde de  $5,75 g/cm^3 \pm 0,05g/cm^3$ .

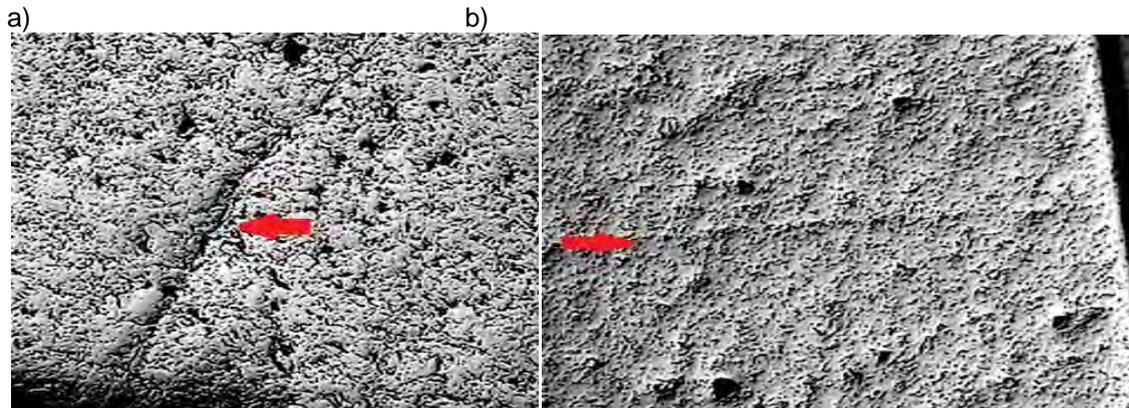
### 3 RESULTADOS

Em análise realizada para a mesma amostra utilizou-se metalografia das técnicas de microscopia ótica e de varredura. Em metalografia ótica com aumento de 100X (Figura 3a), os grãos demonstraram bordas retas e com superfície brilhante. Há a presença de uma trinca com aparência predominantemente intergranular, nos contornos dos grãos. E em metalografia de varredura com aumento de 400X (Figura 3b) é demonstrado microvazios localizados nos contornos de grãos e a presença de uma trinca com característica intergranular em determinadas regiões e transgranular, através dos grãos, em outras. Em nenhuma das duas metalografias percebe-se a presença de precipitados de segunda fase nos contornos de grãos.<sup>(3)</sup>



**Figura 3:** **a** - Metalografia ótica com aumento de 100X mostrando a propagação da trinca nos contornos de grãos; **b** - Metalografia de varredura com aumento de 400X mostrando a propagação da trinca e os poros.

Alinhamento de poros e linha de tensão na superfície da pastilha está demonstrado respectivamente nas Figuras 4a e 4b através de micrografias óticas com aumento de 50X. Provavelmente o agente causador do aparecimento da trinca.



**Figura 4.** **a:** Metalografia ótica com aumento de 50X mostrando um alinhamento de poros; **b:** Metalografia ótica com aumento de 50X mostrando uma linha de tensão;

A máquina da prensa foi programada de acordo com os parâmetros adequados para alcançar um produto dentro da conformidade (Tabela 1), porém em virtude do desgaste e da vida útil da máquina, ajustes foram realizados durante o processo para assegurar a obtenção da densidade nos valores desejados (Tabela 2). A densidade alvo do processo é de  $5,75\text{g/cm}^3$  com tolerância de  $\pm 0,05\text{g/cm}^3$ ; um valor acima do predito acarretaria em um desvio de cintura na pastilha (Figura 6) durante o processo de sinterização, fato este que também ocorre em densidades com valores abaixo da tolerância inferior. De acordo com a Tabela 2, pastilhas oriundas dos punções 13 e 15 apresentaram densidade acima da tolerância permitida, porém não foi constatado sua influencia na formação da trinca.

A deficiência da lubrificação no punção inferior foi detectada com a evidência de um brilho acentuado na superfície lateral da pastilha. A falta de lubrificação foi corrigida, com o ajuste das válvulas de regulação micrométricas e ajustando a pressão de lubrificação, regulando a quantidade de lubrificante para cada matriz.<sup>(4)</sup>

Levando em consideração que no processo de prensagem em questão, a informação do enriquecimento em urânio 235 fica gravada no topo da pastilha pela

Impressão do punção superior, foi constatado facilmente que a pastilha analisada apresentou trinca na parte superior ao centro da superfície da circunferência (Figura 2) conferindo sua proximidade com o punção superior.

#### 4 DISCUSSÃO

O diagrama de fase do sistema oxigênio-urânio (Figura 5) mostra que em condição de equilíbrio e estequiometria 2,01 para a relação oxigênio/urânio em temperaturas até aproximadamente 337°C, duas fases estão presente  $UO_{2+x}$  e  $U_4O_{9-y}$ , porém de acordo com a Figura 3a e 3b não se observa inclusões e precipitados ao longo dos contornos de grãos ou partículas de segunda fase retida na microestrutura como resultado do resfriamento rápido no processo de sinterização causando sua fragilização. Os grãos são coesos e não apresentam impurezas nos contornos de grãos.<sup>(5)</sup>

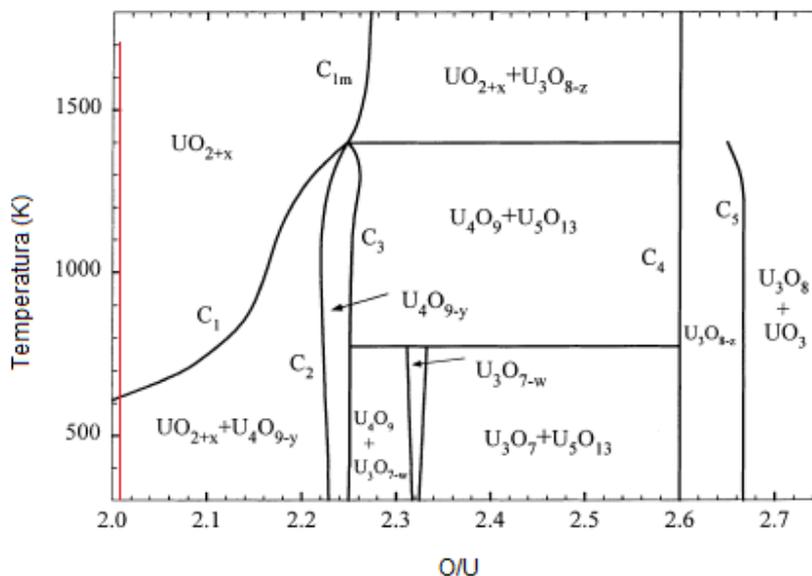


Figura 5: Diagrama de fase do sistema oxigênio-urânio.<sup>(6)</sup>

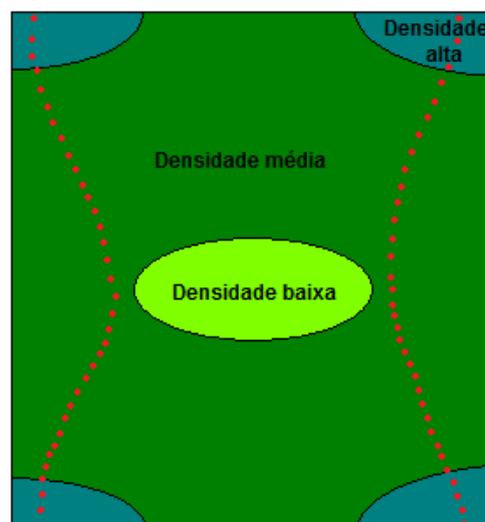
Em análise de microestrutura representado nas figuras 3a e 3b observa-se que a trinca originou-se no contorno de grão pela nucleação de microvazios e que a formação da cavidade (Figura 3b) ocorreu em condição de ruptura por tensão em alta temperatura. As Figuras 4a e 4b mostram respectivamente micrografias apresentando poros alinhados e linha tensão. A presença destes defeitos é oriunda, na maioria das ocasiões, de anomalias no processo de prensagem causando o aparecimento de trincas e conduzindo em muitos casos a fratura da pastilha.

Quanto ao tipo de trinca, algumas ponderações são feitas: a presença de trincas intergranular, nos contornos de grãos, é um indício que a trinca pode ter se propagado no início da sinterização como causa do gradiente de densidade e; pela presença de trincas transgranular, trincas que passam através dos grãos, sua propagação pode ter ocorrido na fase de resfriamento influenciada pelo gradiente de temperatura ou mudança de fase.

Na prensagem, etapa do processo de fabricação, a força de atrito entre as partículas do pó e a matriz pode impedir que a pressão aplicada seja uniforme provocando gradientes de densidades conforme a Figura 6,<sup>(7)</sup> logo o surgimento de trincas transversais na área da circunferência da pastilha pode acontecer por falta de

homogeneidade nas pastilhas verdes influenciado pela diferença na força de pressão do punção superior e o inferior muitas vezes oriundo da falta de lubrificação, cuja função é reduzir a força de atrito entre o pó e a parede da matriz durante o processo de compactação e evitar a força de retenção durante a saída da pastilha verde da matriz para a naveta.<sup>(8)</sup> A compactação ocorre por deslocamentos simultâneos dos punções superior e inferior, se houver diferença dessas forças pode ocorrer deslocamento da “zona neutra”, que é a região onde as partículas de pó sofrem menos influência do processo mecânico de compactação, isto é, menor força de compactação, que irá gerar uma pastilha final heterogênea, com zonas de propriedades distintas (Figura 6). Em torno da zona neutra existe um grau de compactação incompatível com as outras regiões da peça e podem ocorrer trincas na superfície da pastilha. Um aumento na pressão de prensagem influencia de forma positiva o aumento da densidade, mas de outra forma aparecem trincas nas extremidades das pastilhas.<sup>(9)</sup>

Contudo a máquina da prensa não emite relatório com os valores reais, não sendo possível evidenciar os valores reais de pressão inferior e superior dos punções, isto é, a diferença de compactação não foi mensurável. Em análise aos dados da máquina da prensa (Tabela 2) foi constatado que os valores dos parâmetros de pressão superior, inferior e de lubrificação foram introduzidos pelo operador e ajustado à medida que aconteciam desvios no valor alvo da densidade verde. A densidade nas pastilhas verdes é altamente heterogênea e depende dos parâmetros de prensagem: pressão aplicada, tempo de permanência, lubrificação da parede da matriz, tão bem como a geometria das pastilhas: diâmetro, razão comprimento/diâmetro. Se todos os parâmetros não estiverem especificados, há distribuição na densidade das pastilhas verdes diferente do esperado.



**Figura 6:** Distribuição da densidade na pastilha verde após o processo de prensagem.

## 5 CONCLUSÃO

Evidências de análises metalográficas apontam para a causa da formação da trinca a combinação do alinhamento de porosidades e o aparecimento de tensões internas em alta temperatura causadas pela falta de homogeneidade das pastilhas verdes pelo gradiente atípico da densidade na sinterização. Essas anormalidades foram consequências da diferença de força entre o punção inferior e o superior pela falta de lubrificação através do punção inferior na etapa de prensagem. A diferença de

força de compactação entre os punções deslocou a zona neutra imediatamente para acima do centro da pastilha causando uma distribuição de densidade da pastilha verde assimétrica e propiciando a abertura da trinca pela diferença de densidade entre as regiões.

## Agradecimentos

Agradecemos ao especialista em pastilha Georg Maier por nos ter compartilhado seu valioso conhecimento que muito contribuiu para este trabalho, nosso gerente Márcio Adriano Coelho da Silva pelo incentivo e orientação em nossas atividades e aos técnicos em laboratório Ticiane Aparecida Vieira Gomes e Arnaldo Luiz Rodrigues Olegário por seu talento e dedicação na preparação de amostras e processamento das imagens.

## REFERÊNCIAS

- 1 SANTOS, A. M. Fundamentos para especificação de pastilhas de  $UO_2$  – Parte 1: Considerações gerais. Nota Técnica DETS.CN-010 - DITCO.CN, Programa integrado NUCLEBRAS-NUCLEN na área do combustível nuclear, Resende, p. 1-17, ago.1988.
- 2 FCN Pastilhas. Disponível em: [http://www.inb.gov.br/pt-br/WebForms/interna2.aspx?secao\\_id=58](http://www.inb.gov.br/pt-br/WebForms/interna2.aspx?secao_id=58) Acesso em: 06 mar. 2013.
- 3 CALLISTER, D. W. Ciência e engenharia de materiais uma introdução. 5<sup>a</sup> edição. Editora LTC, Rio de Janeiro, 2002.
- 4 Yi, H.; PURI V. M. Stress gradient within powder en masse during hydrostatic compression. Elsevier: Powder technology 239, p. 47-55. 2013.
- 5 KIM, Y. S. A thermodynamic evaluation of the U-O system from  $UO_2$  to  $U_3O_8$ . Elsevier: Journal of nuclear materials 279, p. 173-180. 2000.
- 6 ALBERO, J. L. A. A operação de prensagem: Considerações técnicas e sua aplicação industrial. Instituto de tecnologia cerâmica, Universidade de Valência. Set./out. 2000.
- 7 YANAI, K.; ISHIMOTO, S.; KUBO T.; ITO, K.; ISHIKAWA T.; HAYASHI H. Characterization of ceramic powder compacts. Elsevier: Journal of nuclear materials 224. p. 79-84. 1995.
- 8 BAYLE, J. P.; DELETTE, F. J.; GOBIN, F.; MOYER P. Finite element modeling and experiments for shaping nuclear powder pellets, application in technological tool developments to minimize damage during ejection, and geometrical tolerances. Elsevier: Procedia chemistry 7, p. 444-455. 2012.
- 9 ANDREEV, E. I.; GLAVIN, K. V.; IVANOV, A. V.; et al. Some results uranium dioxide powder structure investigation. Russian Journal of Non-ferrous Metals, 2009, Vol.50, N° 3, pp. 281-285.