

NOTA PRELIMINAR SÓBRE A FABRICAÇÃO DE PASTILHAS DE BERILIA, DE TORIA E DE SOLUÇÕES SÓLIDAS TÓRIA-URANIA ⁽¹⁾

CLAUER TRENCH DE FREITAS ⁽²⁾

HELITON MOTTA HAYDT ⁽³⁾

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS ⁽⁴⁾

RESUMO

Descrevem-se nesta nota preliminar os principais dados experimentais obtidos na Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica, São Paulo, em estudos de produção de pastilhas de óxido de berílio, de óxido de tório e de soluções sólidas ThO_2 - UO_2 . As peças anulares produzidas de óxido de berílio destinaram-se à construção de fontes geradoras de neutrons. As pastilhas de óxido de tório, bem como as de soluções sólidas ThO_2 - UO_2 , destinam-se a estudos ulteriores, relacionados com a utilização de tório em reatores.

1. INTRODUÇÃO

O programa de pesquisas tecnológicas da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica inclui estudos experimentais relativos à produção de peças cerâmicas especiais, e, nesse programa, tiveram destaque os estudos referentes à produção de peças anulares de óxido de berílio e às pastilhas de óxido de tório e de soluções sólidas de óxido de tório com óxido de urânio, as quais servirão para estudos posteriores relacionados com reatores do ciclo de tório. A importância futura de utilização de tório como material fértil em reatores já tem sido ressaltada em diversos trabalhos nacionais recentes ^(1, 2, 3).

(1) Contribuição Técnica n.º 532. Apresentada ao XVIII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais, Belo Horizonte, M.G., julho de 1963.

(2) Membro ABM; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.

(3) Membro ABM; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.

(4) Membro ABM; Instituto de Pesquisas Tecnológicas em comissão como chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.

Descrevem os autores em primeiro lugar os estudos desenvolvidos relativamente à produção de peças de berília, inclusive os de produção de peças anulares destinadas à montagem de fonte de neutrons. Em seguida resumem os trabalhos experimentais referentes à produção de óxido de tório, a partir de sulfato de tório, produzido para a Comissão Nacional de Energia Nuclear pela Orquima S.A., por tratamento da monazita, bem como às principais variáveis relativas à produção de pastilhas desse óxido e de soluções sólidas $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$.

2. ESTUDOS EXPERIMENTAIS REFERENTES A PASTILHAS E A PEÇAS ANULARES DE OXIDO DE BERILIO

Os estudos experimentais realizados visaram a produção de peças anulares para a construção de fontes de neutrons com Sb-124, e a produção de pastilhas de densidade mais elevada, para estudos que interessam à Divisão de Física de Reatores do IEA. Em tôdas as experiências realizadas, utilizou-se sempre óxido de berílio atômicamente puro, obtido do Commissariat à l'Energie Atomique, da França.

Em virtude da elevada toxicidade do berílio e de seus compostos, indicada pela concentração máxima de 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ de ar, foram tomadas precauções especiais quanto à pesagem e às operações de mistura e de compactação das peças. Tôdas as operações que importavam em manipulação do material foram realizadas sempre em capela, dotada de filtro de feltro intercalado no circuito de exaustão de vazão regulável.

O condicionamento das cargas de óxido de berílio foi feito com 1% de Carbowax-4000, adicionado sob a forma de solução em álcool, preparada a cerca de 50°C, da relação de uma parte em peso de Carbowax para quatro partes em peso de álcool. A adição da solução foi feita a quente. O condicionamento foi realizado em moinho de polietileno com 12 bolas de aço de 10 mm de diâmetro, sob tempo de mistura de 3 horas.

Produção de peças anulares para as fontes de neutron — O projeto de execução de fontes de neutrons previa a fabricação de peças anulares de berília de 30 mm de diâmetro interno, 47,6 mm de diâmetro externo e 50 mm de altura, a massa devendo estar compreendida entre 99,9 e 100,1 g.

A densidade aparente solta da carga era de 0,50 g/cm^3 , a qual se elevou a 0,85 g/cm^3 após a operação de condicionamento. Para obtenção de peças anulares com 1,87 g/cm^3 , densidade especificada para as peças, preferiu-se pré-compactar o pó, a fim de evitar a retração radial das peças na sinterização. A pré-compactação foi feita em matriz cilíndrica de 10,2 mm de diâ-

metro, tendo sido os corpos desintegrados no próprio moinho de polietileno.

A fig. 1 reproduz os resultados da influência de pressão de compactação sôbre a densidade das peças anulares no estado compactado. Desses resultados experimentais puderam os autores escolher a pressão de compactação que permitia obter as peças com os característicos de densidade especificados no projeto para a execução das fontes.

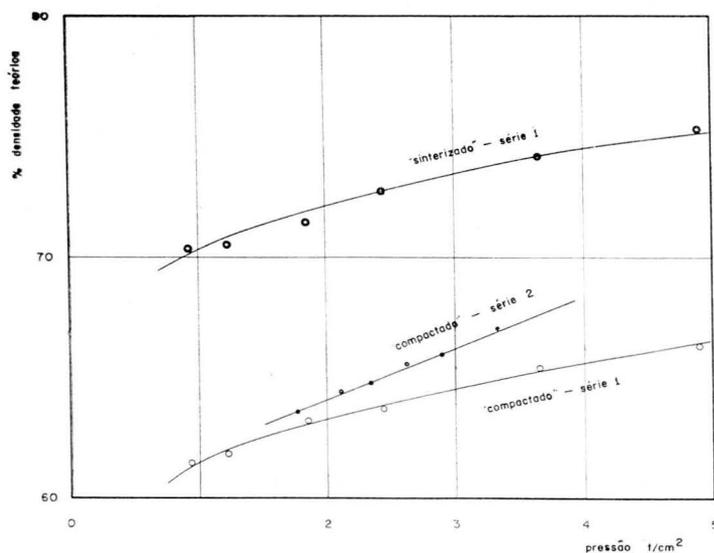


Fig. 1 — Valores da porcentagem da densidade teórica de pastilhas e peças anulares de BeO em função da pressão de compactação. Os resultados indicados com "série 1" se referem a pastilhas cilíndricas e os com "série 2" a peças anulares.

Embora não sinterizadas pela razão indicada, as peças obtidas apresentaram resistência mecânica compatível com o funcionamento da fonte, isto é, com a entrada e retirada periódica do núcleo, constituído por barra coaxial de antimônio, produzida pela Divisão de Metalurgia Nuclear, que fôra posteriormente irradiada no reator IEAR-1.

O comportamento dessas peças de berília nas duas fontes construídas, uma das quais foi enviada pela Comissão Nacional de Energia Nuclear para o Paraguay, em virtude do convênio de assistência técnica existente, foi plenamente satisfatório. O fluxo medido foi de $1,2 \cdot 10^6$ n/cm².s, logo após ter sido irradiada a barra de antimônio.

Convém lembrar aqui que, para fluxos da ordem de 10^6 n/cm².s, constitui êsse tipo de fonte provávelmente a solução mais econômica, nas atuais condições do país.

Produção de pastilhas de berília — As pastilhas foram compactadas em matriz flutuante de 10,2 mm de diâmetro, tendo sido adicionada à carga, depois de condicionada, 0,8% de estearato de zinco como lubrificante. As pressões de compactação variaram entre 0,92 e 4,9 t/cm². Na fig. 1 estão também reproduzidos os resultados experimentais obtidos.

A sinterização foi realizada ao ar, em mufla dotada de elementos de resistência de kanthal fundido, à temperatura de 1180°C, durante duas horas. A velocidade de aquecimento foi de 100°C/h e a de resfriamento de 125°C/h. Para evitar a possibilidade de escaldamento por gradientes térmicos acentuados, na fase de aquecimento, por precaução foram as pastilhas recobertas totalmente por alumina gama previamente calcinada a 650°C, dentro de cápsula de porcelana.

Ainda a fig. 1 reproduz os resultados experimentais obtidos. As densidades das pastilhas obtidas variaram com a pressão de compactação entre os extremos de 70,4% e 75,3%, para a faixa de pressões de compactação de 0,92 a 4,90 t/cm². As pastilhas não apresentaram trincas ou outros defeitos que resultassem da compactação ou da sinterização.

Cumpra observar que o índice de sinterização ⁽⁴⁾ obtido, igual a 13,8%, é ainda bastante baixo, em virtude de a temperatura de sinterização ter sido de apenas 1180°C, bastante baixa em relação à de fusão.

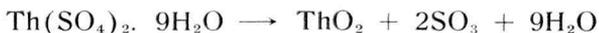
Note-se que as densidades consideradas nas experiências anteriores e nas que se seguem, decorreram das massas e dos volumes das peças, determinados estes últimos pela geometria das mesmas.

Tomou-se o valor 3,025 g/cm³ para densidade teórica da berília.

3. ESTUDOS EXPERIMENTAIS REFERENTES A PASTILHAS DE TÓRIA E DE TÓRIA-URÂNIA

Obtenção do óxido de tório — O óxido de tório utilizado nas experiências adiante relatadas, foi produzido pelos autores por calcinação a 990°C, durante duas horas, de sulfato de tório cristalizado, produzido pela Orquima S.A. para a Comissão Nacional de Energia Nuclear, a partir da monazita do Espírito

Santo. A calcinação do sulfato de tório cristalizado dá-se segundo a reação



compreendendo uma etapa de dissociação progressiva da água de cristalização, completada a cerca de 400°C. A dissociação ulterior do sulfato verifica-se a partir de 875°C. Análises químicas efetuadas pela Divisão de Radioquímica do IEA indicaram concentração residual de SO_4 inferior a 100 ppm, no calcinado a 990°C.

O exame do pó obtido por dissociação, sob microscópio, revelou ser constituído por grânulos de 120 microns de diâmetro, nos quais podiam ser individualizados cristais menores, de cerca de 10 microns de diâmetro.

Foi determinada a influência da temperatura da calcinação sobre a densidade aparente solta do pó de ThO_2 , tendo sido constatado que a elevação da temperatura acima de 990°C aumentava a densidade solta: a densidade obtida de 0,58 g/cm³ a 990°C elevou-se a 0,67 g/cm³ quando a calcinação foi efetuada a 1060°C. Ulteriormente será determinada a influência de temperaturas mais elevadas sobre êsse importante índice do pó, obtido para fins de cerâmica nuclear.

Programa dos estudos experimentais — O programa de estudos experimentais compreendeu as seguintes composições: 1) tória; 2) misturas tória — U_3O_8 com 5% de U_3O_8 ; 3) idem, com 10% de U_3O_8 ; 4) misturas tória UO_2 , com 5% de UO_2 . Êsse programa visava determinar as melhores condições de compactação para a obtenção de pastilhas de 10 mm de diâmetro e de discos de 22 mm de diâmetro.

Preparo das cargas — Para o preparo das cargas, os grumos de óxido de tório foram previamente desintegrados por meio de espátula em peneira de plástico, e posteriormente, em almofariz de porcelana. Quanto aos óxidos de urânio, foi somente utilizada a fração — 200 mesh.

O condicionamento das cargas foi feito em moinho de polietileno, sem bolas, durante uma hora. Não se utilizou qualquer agente aglomerante. As misturas tória — U_3O_8 apresentaram a tendência de formar rapidamente revestimento contínuo dentro do moinho, o que exigiu frequentes operações de remoção parcial das zonas adensadas. Essa dificuldade não foi constatada nem nas cargas de ThO_2 , nem nas de $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$.

Posteriormente ao condicionamento, foram em algumas cargas feitas adições de carbowax-4000 em solução de álcool, com

a mesma técnica já descrita anteriormente, ou de estearato de zinco, na proporção de 0,8%.

Resultados obtidos nas séries de ThO_2 — A fig. n.º 2 reproduz os resultados obtidos de porcentagem de densidade teórica em função da pressão de compactação, tanto de pastilhas de 10,2 mm de diâmetro como de discos de 22 mm de diâmetro. As pressões de compactação variaram de 0,92 a 3,68 t/cm². Constatou-se que as cargas sem carbowax-4000, bem como essas cargas contendo 0,8% de estearato de zinco, exigiam perfeita lubrificação da matriz, o que foi feito depositando-se uma película de estearato de zinco sobre as superfícies em contacto com a carga. Não houve necessidade dessa lubrificação nas cargas que continham carbowax-4000.

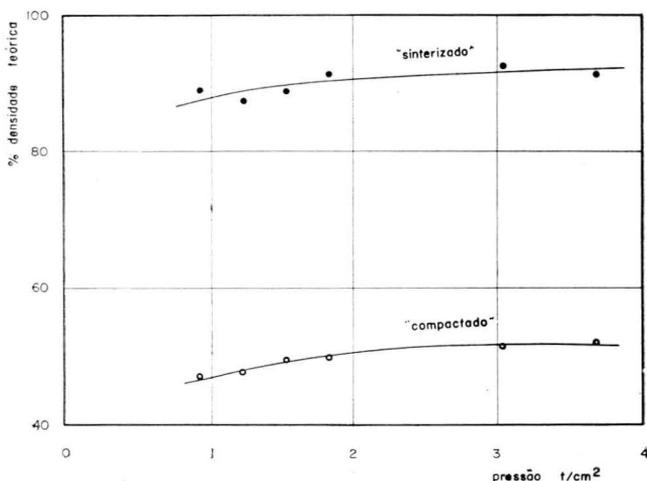


Fig. 2 — Valores da porcentagem da densidade teórica de pastilhas de ThO_2 nos estados compactado e sinterizado, em função da pressão de compactação.

As pastilhas obtidas não apresentaram trincas ou outros defeitos, tendo sido constatado que a superfície das pastilhas produzidas com carbowax era mais lisa e brilhante do que as obtidas nas outras condições. Essa diferença era exclusivamente de aspecto, uma vez que as densidades eram sensivelmente iguais, para pressões iguais de compactação.

Mostra ainda a fig. 2 os resultados experimentais obtidos após a sinterização, efetuada a 1180°C durante 2 horas, estando as pastilhas envolvidas completamente em alumina gama, dentro de cápsula de porcelana. O gradiente de elevação de temperatura

foi de 100°C/h e de 125°C/h o de resfriamento. As mesmas condições de sinterização foram adotadas nas séries de experiências de pastilhas de tória com 5% de U_3O_8 e de 10% U_3O_8 .

Os valores de porcentagem de densidade teórica (10,03 g/cm³) variaram entre 86 e 92%, para os limites de faixa de variação da pressão de compactação, entre 0,92 e 3,68 t/cm².

As pastilhas não apresentaram quaisquer defeitos visíveis.

Resultados obtidos nas séries de ThO₂ — 5% U₃O₈ — Os resultados experimentais obtidos encontram-se reproduzidos na fig. 3. As porcentagens de densidade teórica variaram de 49,0% para a pressão de compactação de 0,92 t/cm², a 53% para 4,90 t/cm². A sinterização ao ar, nas condições já anteriormente especificadas, permitiu obter pastilhas densas, isentas de quaisquer defeitos, variando pouco as porcentagens de densidade teórica (10,07 g/cm³). Os limites dessas porcentagens de densidade foram 90,1% e 90,8%.

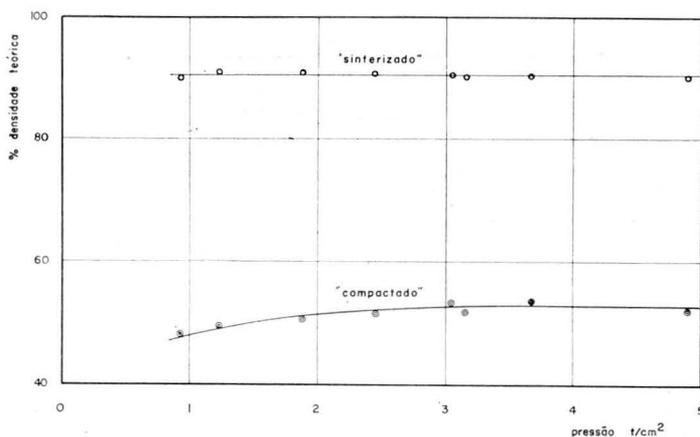


Fig. 3 — Valores da porcentagem da densidade teórica de pastilhas produzidas a partir de cargas de 95% ThO₂ e 5% U₃O₈, nos estados compactado e sinterizado, em função da pressão de compactação.

É de se notar a influência muito limitada da pressão de compactação sobre a porcentagem da densidade teórica, no estado compactado, e a quase nenhuma influência daquela variável sobre a densidade no estado sinterizado.

Conforme é sabido ⁽⁵⁾, nas condições em que foi efetuada a sinterização, as pastilhas são constituídas por soluções sólidas. Não dispuzeram ainda os autores dos dados referentes a composição final das pastilhas obtidas.

Tomou-se nesta série, bem como nas duas seguintes, as densidades das soluções sólidas $\text{ThO}_2 - \text{UO}_2$ correspondentes, admitindo-se válida a lei de Vegard ⁽⁶⁾.

Resultados obtidos nas séries de $\text{ThO}_2 - 10\% \text{U}_3\text{O}_8$ — Mostra a fig. 4 os resultados experimentais obtidos nas pastilhas e discos produzidos com as misturas constituídas por tória com 10% de U_3O_8 . As porcentagens de densidade teórica (10.12 g/cm^3) pouco variaram para a faixa de pressões de compactação: subiram de 49,7% para 0,72 t/cm^2 até 54,4% para 3,72 t/cm^2 .

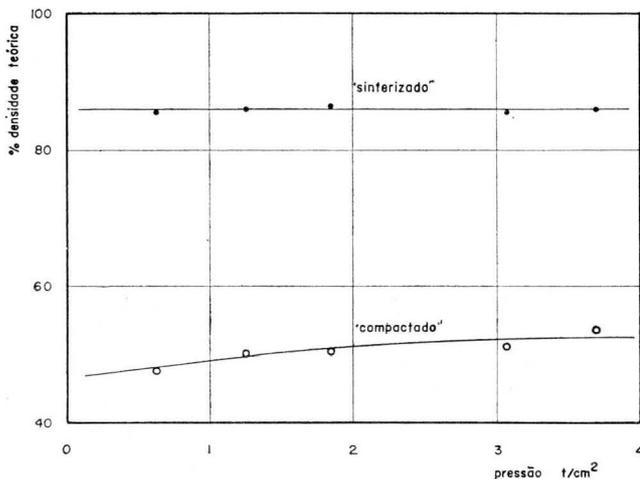


Fig. 4 — Valores da porcentagem da densidade teórica de pastilhas produzidas a partir de cargas de 90% ThO_2 e 10% U_3O_8 , nos estados compactado e sinterizado, em função da pressão de compactação.

As densidades obtidas após a sinterização, realizada nas condições anteriormente especificadas, variaram de 85,7% a 86,3% para a mesma faixa de pressões de compactação.

Provavelmente as menores porcentagens de densidade teórica obtidas nas séries de 10% de U_3O_8 comparadas com as da série com 5% de U_3O_8 , indicam difusão incompleta. Esse particular será ulteriormente esclarecido por meio dos exames metalográficos de secções polidas das pastilhas obtidas.

Resultados obtidos nas séries de $\text{ThO}_2 - 5\% \text{UO}_2$ — Como é sabido, a produção de soluções sólidas de tória com UO_2 exige a utilização de atmosfera redutora ou neutra, para que se evite a rápida oxidação de UO_2 a U_3O_8 em temperaturas muito inferiores as da ulterior dissociação deste óxido a UO_2 .

Para estudar o comportamento das pastilhas produzidas a partir de misturas de tória com UO_2 , compactadas nas condições já descritas anteriormente, foram as mesmas submetidas a sinterização no forno contínuo de atmosfera de argônio da Divisão de Metalurgia Nuclear, sob velocidade de alimentação dos botes de grafita de 38 cm/h. Os botes permaneceram na zona mais quente do forno duas horas, à temperatura de 1040°C.

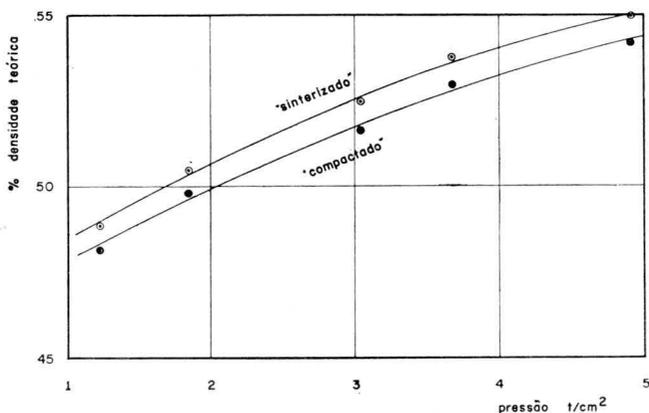


Fig. 5 — Valores da porcentagem da densidade teórica de pastilhas produzidas a partir de cargas de 95% ThO_2 e 5% UO_2 , nos estados compactado e sinterizado, em função da pressão de compactação.

A fig. 5 reproduz os valores experimentais obtidos, estando representados os valores das porcentagens de densidade teórica (10,08 g/cm³) em função da pressão de compactação, tanto no estado compactado como no estado sinterizado. Mostram os valores obtidos a maior sensibilidade da carga ao efeito de pressões crescentes de compactação, tendo variado a porcentagem de densidade teórica entre 48,2% e 54,4% para a faixa de pressões de compactação entre 1,22 e 4,92 t/cm². As densidades no estado sinterizado variaram, para a mesma faixa de pressões de compactação, entre 48,9 e 55,0%.

4. CONCLUSÕES

1. Os resultados experimentais mostraram que, nas condições utilizadas pelos autores no desenvolvimento do programa descrito, as pastilhas de berília obtidas por sinterização ao ar a 1180°C, durante duas horas, têm densidades que variaram quase linearmente com as pressões de compactação, entre os extremos de 70,4% e 75,3%, para a faixa de pressões compreendida entre 0,92 e 4,90 t/cm².

2. Para a produção de peças anulares de berília, destinadas a construção de fonte de neutrons de fluxo inicial de $1,2 \cdot 10^6$ n/cm².s, foi desenvolvida uma técnica que dispensou, em face dos característicos físicos e geométricos especificados no projeto dessas fontes, a operação de sinterização.

3. A produção de pastilhas de tória por sinterização ao ar forneceu resultados muito favoráveis, tendo sido obtidas porcentagens de densidade teórica entre 86 e 92%, para pressões de compactação compreendidas entre os extremos de 0,92 e 3,68 t/cm². As pastilhas produzidas, como as demais de soluções sólidas obtidas a partir de tória — UO₂ e tória — U₃O₈, não apresentaram defeitos visíveis.

4. Foram apresentados os resultados experimentais de porcentagem de densidade teórica em função da pressão de compactação, para séries de pastilhas formadas a partir de cargas de tória com 5 e 10% respectivamente de U₃O₈. Os valores obtidos para as soluções sólidas indicaram índices de sinterização muito elevados, principalmente tendo em vista a temperatura relativamente baixa empregada, bem como o curto tempo para essa operação.

5. Os resultados experimentais obtidos na série sinterizada sob argônio, de pastilhas produzidas a partir de misturas ThO₂ — UO₂, foram substancialmente inferiores aos obtidos a partir das misturas de ThO₂ com U₃O₈.

REFERÊNCIAS

1. BRITO, S.S. — “O ciclo U²³³-Tório em reatores térmicos de uma região — Discussão paramétrica”. 3.º Simpósio Inter-Americano sobre as Aplicações Pacíficas da Energia Nuclear. Industrial Applications of Nuclear Energy, pags. 89-107. União Pan-Americana, Organização dos Estados Americanos, Washington, 1961.
2. AMARAL, R. e NEVARES DE CARVALHO, L. F. — “Utilização do tório em reator de potência de urânio natural moderado a grafita”. Contribuição Técnica apresentada pelo Grupo de Trabalho de Reatores de Potência da Comissão Nacional de Energia Nuclear, 1962 (a ser publicado).
3. BIDWELL, R. M. — “Considerações metalúrgicas sobre um reator de conversão com liga líquida de tório”. ABM-Boletim da Associação Brasileira de Metais, v. 19, n.º 77, pags. 557-569, São Paulo, 1963.
4. PEREIRA DA SILVA, P. S. C., SOUZA SANTOS, T. D. e TRENCH de FREITAS, C. — “Contrôle dimensional de pastilhas de urânio para o reator “RE — SUCO”. Contribuição Técnica apresentada ao XVIII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais; Belo Horizonte, julho de 1963 (a ser publicado).
5. HANDWERK, J. H., HOENIG, C. L. e LIED, R. C. — “Manufacture of the ThO₂ — UO₂ Ceramic Fuel Pellets for Borax-IV”. ANL 5678; agosto de 1957.
6. “Uranium Dioxide: Properties and Nuclear Applications”, editado por J. Belle, United States Atomic Energy Commission, 1962.

NOTA PRELIMINAR SÔBRE PROPRIEDADES E ESTRUTURAS DE DISPERSÕES U_3O_8 -AL ⁽¹⁾

RICHARD M. BIDWELL ⁽²⁾

HELINTON M. HAYDT ⁽³⁾

CLAUER TRENCH DE FREITAS ⁽³⁾

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS ⁽⁴⁾

RESUMO

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

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

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

1. INTRODUÇÃO

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

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

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

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

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

Convém lembrar preliminarmente que os estudos realizados por Waugh^(1, 2) demonstraram a superioridade do comportamento

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

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

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

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

Estudaram-se as condições de compactação de cargas constituídas por misturas de 60% U_3O_8 e 40% Al, 50% de cada e 40% U_3O_8 e 60% Al, bem como de cargas constituídas exclusivamente por U_3O_8 ou por Al. As pressões de compactação variaram de 0,2 a 5 t/cm². Constataram os autores que as densidades dos corpos compactados produzidos a partir dessas cargas eram praticamente independentes das dimensões e da forma das matrizes empregadas, as quais forneceram peças cilíndricas de 10 mm de diâmetro e paralelepédicas de 60 mm × 10 mm e altura variável, ou de 64 mm × 32 mm e também de altura variável. Constatou-se que a adição de estearato de zinco, até 1% em pêso, não alterava sensivelmente a densidade no estado compactado, facilitando contudo e de maneira acentuada a operação de compactação e permitindo a obtenção de peças perfeitas, sem trincas mesmo depois de efetuado o tratamento de pre-sinterização. A pre-sinterização, realizada sempre sob atmosfera de argônio, em forno contínuo, e à temperatura de 600°C, visou não só facilitar a deformabilidade ulterior do núcleo como eliminar o estearato de zinco e a umidade adsorvida, o que causaria má contiguidade fí-

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

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

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

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

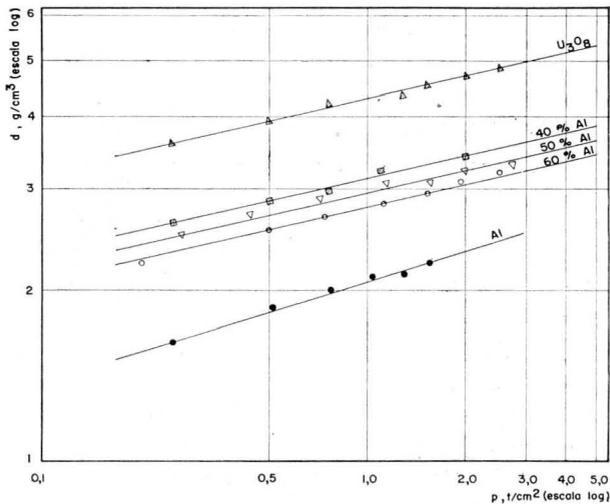


Fig. 1 — Valores experimentais da densidade no estado compactado em função da pressão de compactação de peças prismáticas de U_3O_8 , de alumínio e de misturas U_3O_8 -Al.

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

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

3. ESTRUTURA MICROGRÁFICA DOS NÚCLEOS

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

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

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

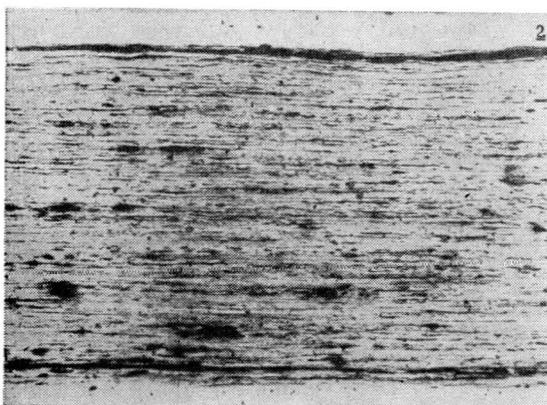


Fig. 2 — Micrografia da secção longitudinal de placa obtida pela técnica de moldura, contendo núcleo de "cermet" de 40% U_3O_8 e 60% Al (30 \times).

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

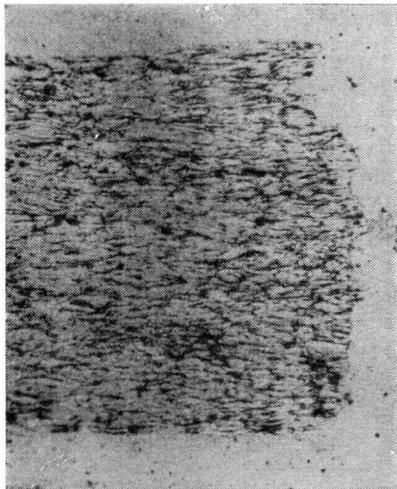


Fig. 3 — Micrografia de secção transversal na mesma placa da micrografia da fig. 2 (25 ×)

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

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

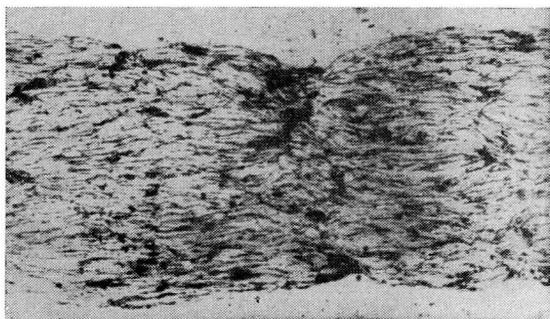


Fig. 4 — Micrografia da secção longitudinal de placa obtida por co-lingotagem com núcleo de 40% U_3O_8 e 60% Al (25 \times).

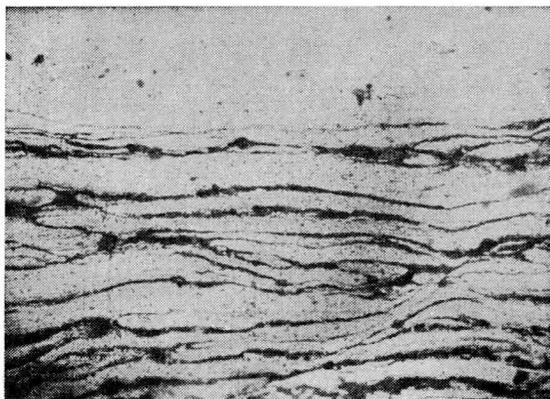


Fig. 5 — Micrografia da secção longitudinal da mesma placa da fig. 4 (250 \times).

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

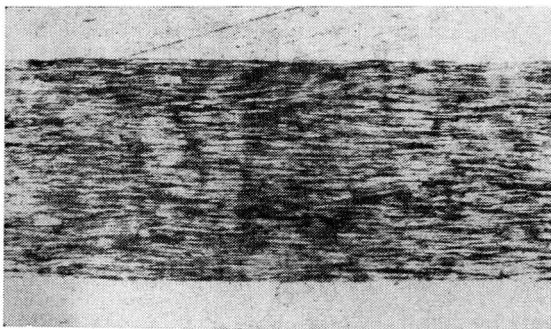


Fig. 6 — Micrografia de secção longitudinal de placa obtida por co-lingotagem com "cermet" de 50% U_3O_8 e 50% Al (25 \times).

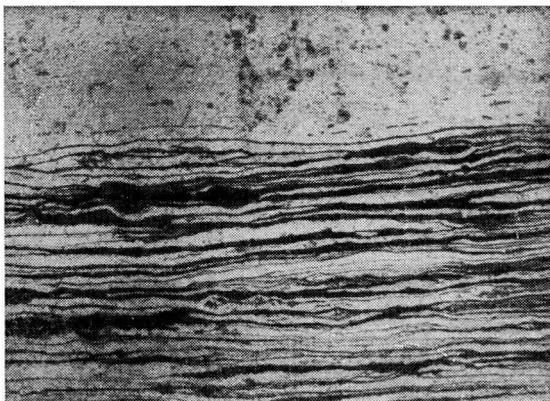


Fig. 7 — Micrografia da secção longitudinal da mesma placa da fig. 6 (250 \times).

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

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

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

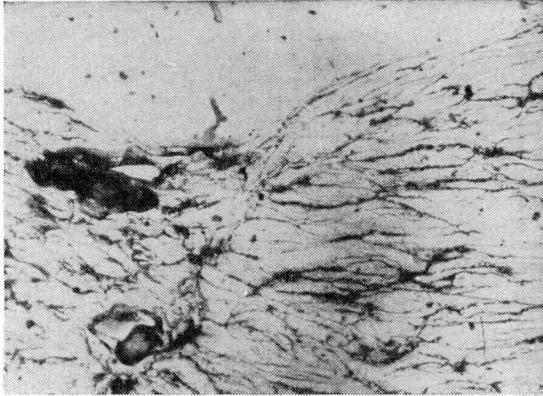


Fig. 8 — Micrografia da secção longitudinal da mesma placa da fig. 6 em região de arrançamento, no polimento, de grão de U_3O_8 . (250 \times).

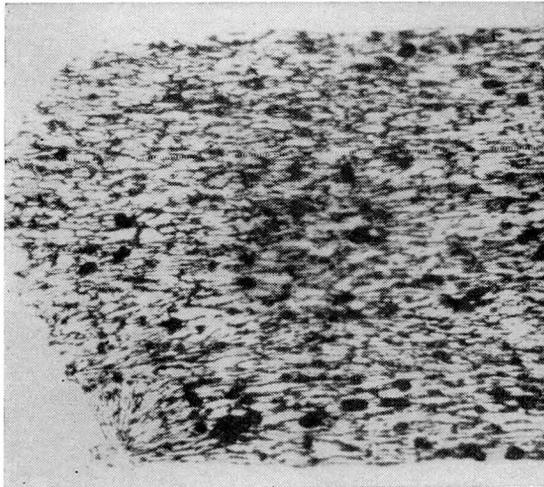


Fig. 9 — Micrografia de secção transversal de placa com núcleo de 60% U_3O_8 e 40% Al, evidenciando a uniformidade da distribuição dos constituintes (30 \times)

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

4. CONCLUSÕES

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

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

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

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

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

REFERÊNCIAS

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