Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares
Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**PROCEDIMENTOS DE FABRICAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS A BASE DE
DISPERSÕES COM ALTA CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO**

Jose Antonio Batista de Souza

Dissertação apresentada como parte dos
requisitos para a obtenção do Grau de Mestre em
Ciências na Área de Tecnologia Nuclear -
Materiais

Orientador:

Prof. Dr. Michelangelo Durazzo

São Paulo

2011

*“À minha esposa Stela e aos meus pais António e Patrocínia pela
compreensão e amor para finalização deste trabalho”*

AGRADECIMENTOS

À Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN-SP) que disponibilizaram as instalações, equipamentos e insumos para realização do trabalho proposto.

Ao Dr. Michelangelo Durazzo pela orientação, pelas sugestões e incentivo durante a execução deste trabalho.

A Gerente do Centro de Combustíveis Nucleares (CCN), Dra Elita Fontenelle Urano de Carvalho, pela disponibilização dos laboratórios do Centro e pelas sugestões para a redação final da dissertação.

Aos amigos do CCN, Adônis Marcelo Saliba Silva, Ari Pereira Junior, Aristeu Florêncio da Silva, Cristina Oscrovani Leandro, Edeval Vieira, Edvaldo Dal-Vechio, Eliezer Silas Bertellini, Eneas Tavares de Oliveira, Felipe B. J. Ferrufino, Fernando Fornarolo, Giovanni de Lima Cabral Conturbia, Glaucia Regina T. Santos, Ilson Carlos Martins, Ivo Oliveira de Jesus, João Batista da Silva Neto, João Lopes de Araújo, Jose Marcos Felix da Silva, Jose Maria Fidelis, Jose Vicente Pereira, Jose Carlos de Carvalho, Lauro Roberto do Santos, Marinete Nobrega da Silva Moraes, Olair dos Santos, Paulo Alves Costa, Sebastião Macedo, Sergio Rabello, Rafael Henrique Lazzari Garcia, Raimundo Rodrigues da Silva, pelo incentivo e colaboração no desenvolvimento deste trabalho.

Ao MSc. Gilberto Hage Marcondes, Reinaldo Aparecido da Costa e Jorge Clementino dos Santos, pela colaboração na realização das análises metalografica e analise imagens da parte experimental deste trabalho.

Ao Celso V. Moraes e Glauson Aparecido F. Machado pela paciência durante os estudos realizados por microscopia eletrônica de varredura.

Ao Davilson Gomes da Silva, pelas sugestões na criação e confecção das artes gráficas.

À Mery Piedad Zamudio Igami da biblioteca do IPEN pela ajuda na pesquisa e revisão bibliográfica.

Aos Amigos Amanda Abatti Aguiar, Everton Bonturim, Francisco Jose Breda, Mara Cristina de Oliveira, Maria Teresa I. Crewe, Nelson Batista de Lima, Olandir Vercino Correa, Raquel de Moraes Lobo, Renato Altobelli Antunes, Teresinha de Moraes da Silva, Walter Pereira, pela paciência e incentivo no decorrer deste trabalho.

A todos que direta ou indiretamente colaboraram para a execução deste trabalho

PROCEDIMENTOS DE FABRICAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS A BASE DE DISPERSÕES COM ALTA CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO

Jose Antonio Batista de Souza

RESUMO

O IPEN-CNEN/SP desenvolveu e disponibilizou para produção rotineira a tecnologia de fabricação de elementos combustíveis tipo dispersão, para uso em reatores nucleares de pesquisas. O combustível fabricado no IPEN-CNEN/SP está limitado à concentração de urânio de $3,0\text{gU/cm}^3$, para dispersões a base de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$, e de $2,3\text{gU/cm}^3$, para dispersões a base de $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$. O aumento da concentração de urânio nas placas combustíveis possibilita aumentar a reatividade do núcleo do reator e a vida útil do combustível. É possível aumentar-se a concentração de urânio no combustível até o limite tecnológico de $4,8\text{gU/cm}^3$ para a dispersão $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$, e de $3,2\text{gU/cm}^3$ para a dispersão $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$, as quais estão bem qualificadas ao redor do mundo. Este trabalho tem como objetivo desenvolver o processo de fabricação de ambos os combustíveis com alta concentração de urânio, redefinindo-se os procedimentos de fabricação atualmente adotados no Centro do Combustível Nuclear do IPEN-CNEN/SP. Com base nos resultados obtidos conclui-se que para atingir a concentração desejada devem ser feitas algumas alterações nos procedimentos já estabelecidos, tais como mudança no tamanho de partícula dos pós e mudança no processo de alimentação da matriz de compactação. Os estudos realizados mostraram que as placas combustíveis com alta concentração de urânio a base da dispersão $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com $4,8\text{ gU/cm}^3$ fabricadas atenderam às especificações vigentes. Contudo, apesar da subjetividade da análise, a aparência da microestrutura obtida no núcleo das placas combustíveis a base da dispersão $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ com $3,2\text{ gU/cm}^3$ não foi considerada satisfatória devido à aparência da distribuição de vazios. O novo procedimento de fabricação foi aplicado na produção de placas combustíveis de dispersão $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com $4,8\text{ gU/cm}^3$ com urânio enriquecido, as quais foram utilizadas na montagem do elemento combustível parcial IEA-228 para ser testado quanto ao desempenho sob irradiação no reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP. Esses novos combustíveis têm potencial para serem utilizados no novo Reator Multipropósito Brasileiro – RMB.

Palavras-chave: combustível nuclear, dispersões, placas combustíveis, fabricação, $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$, $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$

FABRICATION PROCEDURES FOR MANUFACTURING HIGH URANIUM CONCENTRATION DISPERSION FUEL ELEMENTS

Jose Antonio Batista de Souza

ABSTRACT

IPEN-CNEN/SP developed the technology to produce the dispersion type fuel elements for research reactors and made it available for routine production. Today, the fuel produced in IPEN-CNEN/SP is limited to the uranium concentration of 3.0 gU/cm^3 for U_3Si_2 -Al dispersion-based and 2.3 gU/cm^3 for U_3O_8 -Al dispersion. The increase of uranium concentration in fuel plates enables the reactivity of the reactor core reactivity to be higher and extends the fuel life. Concerning technology, it is possible to increase the uranium concentration in the fuel meat up to the limit of 4.8 gU/cm^3 in U_3Si_2 -Al dispersion and 3.2 gU/cm^3 U_3O_8 -Al dispersion. These dispersions are well qualified worldwide. This work aims to develop the manufacturing process of both fuel meats with high uranium concentrations, by redefining the manufacturing procedures currently adopted in the Nuclear Fuel Center of IPEN-CNEN/SP. Based on the results, it was concluded that to achieve the desired concentration, it is necessary to make some changes in the established procedures, such as in the particle size of the fuel powder and in the feeding process inside the matrix, before briquette pressing. These studies have also shown that the fuel plates, with a high concentration of U_3Si_2 -Al, met the used specifications. On the other hand, the appearance of the microstructure obtained from U_3O_8 -Al dispersion fuel plates with 3.2 gU/cm^3 showed to be unsatisfactory, due to the considerably significant porosity observed. The developed fabrication procedure was applied to U_3Si_2 production at 4.8 gU/cm^3 , with enriched uranium. The produced plates were used to assemble the fuel element IEA-228, which was irradiated in order to check its performance in the IEA-R1 reactor at IPEN-CNEN/SP. These new fuels have potential to be used in the new Brazilian Multipurpose Reactor - RMB.

Keywords: nuclear fuel, dispersions, fuel plates, nuclear fuel manufacturing,
 U_3O_8 -Al, U_3Si_2 -Al

SUMÁRIO

	Página
1 INTRODUÇÃO.....	1
1.1 Estado da Arte em combustível de dispersão.....	4
1.2 Desenvolvimento do combustível de dispersão no IPEN-CNEN/SP.....	11
1.3. Contextualização.....	14
2 OBJETIVO.....	16
2.1 Objetivo específico.....	16
3 PROCESSO DE FABRICAÇÃO DO COMBUSTÍVEL DE DISPERSÃO.....	17
4 METODOLOGIA.....	31
4.1 Matérias primas U_3Si_2 e U_3O_8	33
4.2 Obtenção dos pós de U_3Si_2 e U_3O_8	34
4.3 Pó de alumínio.....	38
4.4 Fabricação dos briquetes de U_3Si_2-Al e U_3O_8-Al	39
4.5 Fabricação das placas combustíveis de U_3Si_2-Al e U_3O_8-Al	41
5 RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	46
5.1 Resultados da primeira fase.....	46
5.2 Resultados da segunda fase.....	62
5.3 Resultados da fabricação de placas combustíveis enriquecidas com $4,8gU/cm^3$ a base da dispersão U_3Si_2-Al	83
6 CONCLUSÕES.....	93
7 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS.....	95
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	96

LISTA DE FIGURAS

Página

FIGURA 1.1.1 – Densidade de urânio na dispersão em função da concentração da fase físsil dispersa para diferentes compostos de urânio.....	6
FIGURA 3.1 – Processo de fabricação de elementos combustíveis do IPEN/CNEN-SP.....	19
FIGURA 3.2 – Esquema ilustrativo da montagem do conjunto núcleo-moldura-revestimentos.....	25
FIGURA 3.3 – Esquema ilustrativo da placa combustível laminada.....	27
FIGURA 3.4 – Esquema ilustrativo do elemento combustível fabricado no IPEN-CNEN/SP.....	30
FIGURA 4.1 – Diagrama de blocos do processo de fabricação de placas combustíveis adotado no CCN do IPEN-CNEN/SP.....	32
FIGURA 4.1.1 – Diagrama de blocos do processo de obtenção do DUA.....	33
FIGURA 4.2.1 – Micrografia eletrônica de varredura do pó de U_3Si_2 obtido. Elétrons secundários.....	34
FIGURA 4.2.2 – Micrografia eletrônica de varredura do pó de U_3O_8 obtido. Elétrons secundários.....	38
FIGURA 4.3.1 – Micrografia eletrônica de varredura do pó de alumínio utilizado. Elétrons secundários.....	38
FIGURA 4.5.1 – Plano de corte de uma placa combustível para avaliação da microestrutura e dimensões do núcleo de dispersão.....	45
FIGURA 5.1.1 – Fotografias ilustrando segregação de U_3O_8 (A) e de U_3Si_2 (B) na face inferior do briquete.....	47
Figura 5.1.2 – Macrografias ilustrando segregação de U_3O_8 (A) e de U_3Si_2 (B) na face inferior do briquete.....	48
FIGURA 5.1.3 – Micrografias ópticas ilustrando falha de caldeamento entre núcleo e revestimento, causada pelo acúmulo de partículas de U_3O_8 numa das faces do briquete U_3O_8 -Al.....	52
FIGURA 5.1.4 – Micrografias ópticas ilustrando partículas de U_3Si_2 penetrando o revestimento, diminuindo sua espessura efetiva.....	55

FIGURA 5.1.5 – Radiografias ilustrando a homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo de placas combustíveis. A - alta concentração U_3Si_2 -Al. B - alta concentração U_3O_8 -Al. C - padrão mínimo de aceitabilidade.....	56
FIGURA 5.1.6 – Micrografias ópticas ilustrando a microestrutura do núcleo de placas combustíveis de U_3Si_2 -Al com $4,8gU/cm^3$. A – corte transversal. B – corte longitudinal.....	58
FIGURA 5.1.7 – Micrografias ópticas ilustrando a microestrutura do núcleo de placas combustíveis de U_3O_8 -Al com $3,2gU/cm^3$. A – corte longitudinal. B – corte transversal.....	60
FIGURA 5.1.8 – Micrografias ópticas ilustrando defeitos típicos de final de núcleo nas placas combustíveis com alta concentração de urânio. A - U_3O_8 -Al com $3,2gU/cm^3$. B – U_3Si_2 -Al com $4,8gU/cm^3$	61
FIGURA 5.2.1 – Distribuição granulométrica dos pós de alumínio utilizados: na fase 1 (preto, produção rotineira), e na fase 2 (vermelho, modificado).....	65
FIGURA 5.2.2 – Micrografias eletrônicas de varredura dos pós de alumínio utilizados: A) na fase 1, e B) na fase 2 deste trabalho.....	66
FIGURA 5.2.3 – Fotografias ilustrando as faces dos briquetes de U_3O_8 (A) e de U_3Si_2 (B).....	70
FIGURA 5.2.4 – Macrografias ilustrando boa homogeneidade na distribuição de U_3O_8 (A) e de U_3Si_2 (B) em ambas as faces do briquete.....	71
FIGURA 5.2.5 – Radiografias ilustrando a homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo de placas combustíveis fabricadas na segunda fase do trabalho. A - alta concentração U_3Si_2 -Al. B - alta concentração U_3O_8 -Al. C - padrão mínimo de aceitabilidade.....	73
FIGURA 5.2.6 – Micrografias ilustrando bom caldeamento entre núcleo e revestimento na placa combustível de alta concentração de U_3O_8 -Al fabricada na segunda fase (U_3O_8 de tamanho máximo de partícula de $125\mu m$).....	74
FIGURA 5.2.7 – Micrografias ópticas ilustrando pouca penetração de partículas de U_3Si_2 no revestimento em placas combustíveis fabricadas na segunda fase do trabalho, com partículas de U_3Si_2 com tamanho máximo de $125\mu m$	75
FIGURA 5.2.8 – Micrografias comparando a microestrutura dos núcleos U_3Si_2 -Al fabricados com pó de granulometria $150\mu m$ (esquerda) e $125\mu m$ (direita).....	76
FIGURA 5.2.9 – Micrografias ópticas ilustrando a microestrutura de placas combustíveis a base de U_3O_8 com tamanho máximo de partículas de: A) $125\mu m$ e B) $87\mu m$	78

FIGURA 5.2.10 – Micrografias eletrônicas de varredura ilustrando a morfologia das partículas de U_3O_8 fabricadas segundo o atual método de sinterização de grânulos (elétrons secundários).....	79
FIGURA 5.2.11– Micrografias eletrônicas de varredura ilustrando a morfologia das partículas de U_3O_8 fabricadas segundo o método de trituração de pastilhas sinterizadas. Elétrons secundários.....	80
FIGURA 5.2.12 – Microestrutura de dispersões de U_3O_8 – Al com alta concentração de U_3O_8 obtidas neste trabalho (A) e obtida por Copeland e Martin (B).....	82
FIGURA 5.3.1 – Micrografia eletrônica de varredura do pó de U_3Si_2 enriquecido. Elétrons secundários.....	85
FIGURA 5.3.2 – Radiografias ilustrando a homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo de placas combustíveis fabricadas com alta concentração de U_3Si_2 com urânio enriquecido.....	87
FIGURA 5.3.3 – Micrografia ilustrando a microestrutura das secções utilizadas para elaboração do laudo formal da “análise dimensional interna de placas combustíveis” emitido pelo CCN do IPEN-CNEN/SP.....	89
FIGURA 5.3.4 – Micrografias ópticas ilustrando a microestrutura do núcleo de placas combustíveis de U_3Si_2 -Al com $4,8gU/cm^3$ fabricadas com urânio enriquecido.A – corte transversal. B – corte longitudinal.....	90
FIGURA 5.3.5 – Micrografias ópticas ilustrando os defeitos típicos de final de núcleo nas placas combustíveis com alta concentração de U_3Si_2 -Al ($4,8gU/cm^3$) fabricadas com urânio enriquecido.....	91
FIGURA 5.3.6 – Fotografia das placas combustíveis com alta concentração de U_3Si_2 -Al ($4,8gU/cm^3$) fabricadas com urânio enriquecido, qualificadas para montagem no elemento combustível parcial para teste de irradiação.....	92

LISTA DE TABELAS

Página

TABELA 4.2.1 – Características do pó de U_3Si_2 utilizado neste trabalho.....	35
TABELA 4.2.2 – Características do pó de U_3O_8 utilizado neste trabalho.....	37
TABELA 4.3.1 – Características do pó de alumínio utilizado neste trabalho.....	39
TABELA 4.5.1 – Projeto típico de passes de laminação adotados na fabricação de placas combustíveis para o reator IEA-R1.....	42
TABELA 4.5.2 – Condições de exposição para obtenção das radiografias das placas combustíveis com alta concentração de urânio. Utilizadas no desenvolvimento deste trabalho.....	44
TABELA 5.1.1 - Características dos briquetes de alta concentração de urânio fabricados na primeira fase.....	49
TABELA 5.1.2 - Características dimensionais dos núcleos das placas combustíveis de alta concentração de urânio fabricadas na primeira fase.....	50
TABELA 5.1.3 - Valores das espessuras dos revestimentos e do núcleo, obtidos na primeira fase do trabalho.....	53
TABELA 5.2.1 – Características do pó de alumínio utilizado nesta segunda fase do trabalho.....	64
TABELA 5.2.2 - Características dimensionais dos briquetes fabricados na segunda fase.....	68
TABELA 5.2.3 - Características dimensionais dos núcleos fabricados na segunda fase.....	72
TABELA 5.2.4 - Valores das espessuras dos revestimentos e do núcleo das placas combustíveis fabricadas na segunda fase, obtidos por metalografia.....	74
TABELA 5.3.1 – Características do pó de U_3Si_2 enriquecido utilizado neste trabalho.....	84
TABELA 5.3.2 - Características dos briquetes de alta concentração de U_3Si_2 fabricados com urânio enriquecido.....	86
TABELA 5.3.3 - Características dimensionais dos núcleos das placas combustíveis de alta concentração de U_3Si_2 fabricadas com urânio enriquecido.....	86

TABELA 5.3.4 - Valores das espessuras dos revestimentos e do núcleo da placa combustível com alta concentração de U_3Si_2 fabricada com urânio enriquecido..87

TABELA 5.3.5 – Resultado formal da “Análise Dimensional Interna de Placas Combustíveis” emitido pelo CCN do IPEN-CNEN/SP para a placa combustível com alta concentração de U_3Si_2 fabricada com urânio enriquecido.....88

1 INTRODUÇÃO

Muitos estudos na área de combustíveis nucleares para aplicação em reatores de pesquisas têm sido realizados. Os estudos com objetivo de aumentar cada vez mais a concentração de urânio no combustível tiveram início em 1978 com o lançamento do programa Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR) devido à preocupação com a proliferação de armas nucleares [1].

Inicialmente, os combustíveis para reatores de pesquisas utilizavam urânio com alto enriquecimento (High Enrichment Uranium- HEU), com 93% em peso do isótopo físsil ^{235}U . Esse nível de enriquecimento permite o uso do urânio para armas nucleares, o que representa um risco associado ao desvio desses combustíveis durante a fabricação, transporte e estocagem [1].

A missão do programa RERTR é a minimização e, na medida do possível, a eliminação do uso de urânio altamente enriquecido em aplicações nucleares civis, trabalhando para converter reatores de pesquisas e processos de produção de radioisótopos para o uso de urânio com baixo enriquecimento (Low Enrichment Uranium - LEU) em todo o mundo. O objetivo do programa é desenvolver a tecnologia necessária para permitir essa conversão [1].

O Programa RERTR foi iniciado pelo Department of Energy dos Estados Unidos (DOE) em 1978 e apoiado pela Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA). Durante a existência do programa, mais de 40 reatores de pesquisa foram convertidos de urânio altamente enriquecido ($\geq 20\%$ ^{235}U) para urânio com baixo enriquecimento ($< 20\%$ de ^{235}U). Além disso, processos têm sido desenvolvidos para a produção de radioisótopos com metas LEU, como por exemplo a fabricação de alvos de irradiação para a produção de ^{99}Mo .

O programa para redução do enriquecimento em reatores de pesquisa e teste de materiais teve como premissa a manutenção da capacidade operacional do reator e a manutenção da vida útil do caroço do reator, sem a necessidade de modificações significativas no reator, incluindo requisitos de segurança. A maioria dos reatores de pesquisa utilizava (e ainda utiliza) combustível tipo placa e foi nesse tipo de combustível que os esforços do programa RERTR se concentraram

buscando aumentar a concentração de urânio no núcleo da placa combustível. Alguns reatores de pesquisas que utilizam varetas combustíveis com a liga UZrH_x também foram contemplados no programa. Muitos laboratórios participaram da preparação do programa, entre eles o Argonne National Laboratory (ANL) e o Oak Ridge National Laboratory (ORNL), os quais tiveram papel importante no desenvolvimento de elementos combustíveis com alta concentração de urânio [1 – 9].

Três principais combustíveis a base de urânio altamente enriquecido (HEU) estavam em uso quando o Programa RERTR começou em 1978. O combustível de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$ com densidades de urânio até $1,7\text{gU/cm}^3$, o combustível de dispersão $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ com densidades de urânio até $1,3\text{gU/cm}^3$ e o combustível a base da liga UZrH_x com $0,5\text{gU/cm}^3$ (8,5% em peso U). O combustível $\text{UAl}_x\text{-Al}$ (ou alumineto) havia sido desenvolvido no Laboratório Nacional de Engenharia de Idaho (Idaho National Engineering Laboratory) em 1960 para uso no reator Advanced Test Reactor (ATR) de potência 250 MW. O combustível $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ (ou óxido) foi desenvolvido no Laboratório Nacional de Oak Ridge (ORNL) em 1960 para uso no reator High Flux Isotope Reactor (HFIR) de potência 100 MW. O combustível de UZrH_x (ou TRIGA) havia sido desenvolvido pela Training, Research, Isotope Production, General Atomics e usado em reatores TRIGA com níveis de potência até 14 MW.

Os esforços de desenvolvimento de combustível do programa RERTR foram no sentido de estender as densidades de urânio destes combustíveis já existentes até os seus limites práticos, utilizando urânio de baixo enriquecimento, e de desenvolver novos tipos de combustível LEU com maiores densidades de urânio. Para os combustíveis existentes, as densidades de urânio LEU foram qualificadas até $2,3\text{gU/cm}^3$ para o combustível de $\text{UAl}_x\text{-Al}$, até $3,2\text{gU/cm}^3$ para o combustível de $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$, e até $3,7\text{gU/cm}^3$ para o combustível de UZrH_x . Cada combustível foi testado extensivamente até esses níveis de densidades de urânio e, em alguns casos, além deles.

Quanto aos novos combustíveis, o combustível de dispersão $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ foi qualificado para densidades de urânio até $4,8\text{gU/cm}^3$. A United State Nuclear Regulatory Commission (U. S. NRC) emitiu uma aprovação formal para o uso deste combustível com densidades de urânio até $4,8\text{gU/cm}^3$ em reatores de pesquisa americanos. Uma demonstração utilizando este combustível no núcleo

do Oak Ridge Research Reactor (ORR) foi concluída com êxito em 1987. Muitos outros testes utilizando o combustível U_3Si_2 -Al foram concluídos com êxito em reatores de pesquisas ao redor do mundo [10].

Outros combustíveis, como o combustível de dispersão U_3Si -Al, também foram testados. Como o U_3Si é mais denso do que o U_3Si_2 , o núcleo da placa combustível de dispersão U_3Si -Al tem capacidade de conter uma maior densidade de urânio do que a placa combustível de U_3Si_2 -Al para a mesma fração volumétrica da fase dispersa. Miniplacas do combustível U_3Si -Al com até $6,1gU/cm^3$ foram fabricados em meados de 1980 pelo ANL e pela Comissão Nacional de Energia Atômica da Argentina (CNEA). Estas miniplacas foram irradiadas no reator ORR até queima de 84-96% do ^{235}U inicial. Exames pós-irradiação destas miniplacas revelaram bons resultados, mas mostraram que limitações na queima precisariam ser impostas. Quatro placas de tamanho normal foram fabricadas pela Compagnie pour L'Etude et La Realisation de Combustibles Atomiques (CERCA) na França, com até $6,0g U/cm^3$ e foram irradiadas com sucesso no reator Siloé até queima de 53-54% do ^{235}U inicial. Um elemento combustível completo com U_3Si -Al de $6,0gU/cm^3$ também foi fabricado pela CERCA e irradiado no reator Siloé até 55% de queima do ^{235}U . No entanto, evidências conclusivas indicando que o U_3Si se torna amorfo sob irradiação convenceu o programa RERTR que este material não poderia ser usado com segurança em placas combustíveis para queima além dos limites estabelecidos pelos testes de irradiação no reator Siloé [1,3,10].

O desenvolvimento dos combustíveis acima descritos foi encerrado pelo DOE em 1989. O esforço para desenvolver novos combustíveis avançados LEU foi reiniciado em 1995, após uma pausa de cerca de seis anos. Atualmente os esforços estão centralizados no desenvolvimento do combustível de dispersão da liga U-Mo em alumínio e do combustível U-Mo monolítico. Informações técnicas sobre os avanços tecnológicos obtidos com esses novos combustíveis avançados podem ser obtidos nos anais dos encontros anuais do programa RERTR, disponíveis na internet, na página do RERTR (<http://www.rertr.anl.gov/>). A seguir, nos próximos itens, estão apresentados um histórico mais detalhado do desenvolvimento tecnológico do combustível usado em reatores de pesquisas e um histórico do desenvolvimento desse tipo de combustível no Brasil.

1.1 Estado da Arte em combustível de dispersão

Em 31 de março de 1952 iniciaram-se as atividades do primeiro reator Materials Testing Reactor (MTR), construído em parceria pelo ORNL e ANL. Os reatores de pesquisa tipo MTR são moderados e refrigerados a água leve e possuem elementos combustíveis tipo placa [4,11].

Este tipo de combustível utilizava como material do núcleo, ligas de urânio-alumínio (U-Al) contendo 18% em peso de urânio altamente enriquecido (93% em peso de ^{235}U) [4,11]. Ainda na década de 50, tendo em vista a preocupação com a não proliferação de armamentos nucleares, começaram a ser utilizados combustíveis contendo urânio com baixo enriquecimento (20% em peso de ^{235}U) em reatores de pesquisas de baixa potência. Com a redução do enriquecimento, para que não fosse diminuída a reatividade e a vida útil dos caroços dos reatores, tornou-se necessário o aumento da quantidade de urânio em cada placa combustível [5,12].

Placas combustíveis contendo núcleos a base da liga U-Al com 18% em peso de urânio altamente enriquecido eram facilmente fabricadas. Entretanto, surgiram dificuldades na fabricação de placas combustíveis com núcleos de liga U-Al contendo 45% em peso de urânio com baixo enriquecimento, devido à fragilidade e propensão à segregação desta liga [5,13,14]. Uma alternativa para contornar este problema foi a utilização de núcleos fabricados por metalurgia do pó, que utilizavam dispersões de compostos de urânio em alumínio, proporcionando a incorporação de maiores quantidades de urânio. Em 1956 teve início a operação do reator Argonauta (10kW), desenvolvido pelo ANL, que utilizava placas combustíveis com núcleos à base da dispersão U_3O_8 -Al contendo 39% em peso de U_3O_8 com urânio de baixo enriquecimento LEU [15]. Pesquisas foram realizadas no sentido de aumentar a concentração de urânio neste tipo de dispersão, obtendo-se até o final da década de 70, uma concentração máxima de 65% em peso de U_3O_8 no combustível para o reator de pesquisa Puerto Rico (Puerto Rico Research Reator) do Puerto Rico Nuclear Center [16].

Com a necessidade de potências mais elevadas para obtenção de altos fluxos de nêutrons em reatores de pesquisas tornou-se necessária a continuação da produção de combustíveis que utilizavam urânio altamente enriquecido HEU (93% em peso de ^{235}U), obtendo-se maior reatividade específica e viabilidade

econômica, uma vez que estes combustíveis podiam permanecer mais tempo no núcleo do reator (maior vida útil). O HFIR, com potência de 100 MW, utilizava dispersão $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ com 40% em peso de U_3O_8 e o ATR, com 250 MW, utilizava o mesmo tipo de dispersão com 34% em peso de U_3O_8 . Além das dispersões $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$, eram frequentemente utilizadas dispersões $\text{UAl}_x\text{-Al}$ (com o valor de x aproximadamente 3) e as ligas U-Al , todos os sistemas utilizando urânio altamente enriquecido HEU. Nesta época, final da década de 70, a máxima densidade de urânio obtida foi de $1,7\text{gU/cm}^3$ [17,18].

Na década de 70 o urânio altamente enriquecido era de fácil obtenção comercial. Reatores que utilizavam urânio LEU com baixo enriquecimento foram gradualmente convertendo seus núcleos para combustíveis altamente enriquecidos HEU. Assim, chegou-se nesta década a um total de aproximadamente 156 reatores de pesquisas em 34 países utilizando urânio altamente enriquecido, resultando numa circulação anual de aproximadamente 5000kg deste material [3]. Em 1977 ressurgiu a preocupação com o risco de proliferação nuclear associada ao extravio deste combustível durante a fabricação, transporte e armazenamento; resultando na restrição pelo governo americano para a comercialização de urânio HEU com alto grau de enriquecimento (acima de 90% em peso de ^{235}U), produzindo um impacto na disponibilidade e utilização deste combustível para reatores de pesquisas. Foi, então, criado o programa RERTR, como mencionado anteriormente [3].

A partir de 1978 foram estabelecidos programas de redução de enriquecimento, que visavam o desenvolvimento da base tecnológica para substituição, nos reatores de pesquisas, do urânio altamente enriquecido por urânio LEU com baixo enriquecimento (abaixo de 20% em peso de ^{235}U). O principal programa, ainda ativo nos dias de hoje, é o Programa RERTR. Durante a existência desse programa mais de 40 reatores de pesquisas foram convertidos, entre eles o reator IEA-R1 do Instituto de Pesquisa Energéticas Nuclear da Comissão Nacional de Energia Nuclear (IPEN-CNEN/SP). Desta vez, a redução de enriquecimento exigiu um esforço superior ao verificado anteriormente, pois em reatores de maior potência e projetados para operar em condições limites, esta substituição implica no desenvolvimento e qualificação de combustíveis com a máxima concentração de urânio possível, cujos limites são impostos pela fabricabilidade e desempenho sob irradiação severa e prolongada [10].

Muitos reatores de pesquisa e teste de materiais operavam em todo o mundo com elementos combustíveis de dispersão tipo placa, que consistem de um revestimento com dispersão de UAl_x (geralmente UAl_3) ou U_3O_8 , com urânio de elevado enriquecimento (HEU ~93% ^{235}U). No programa RERTR, os desenvolvimentos inicialmente basearam-se no aumento da concentração de urânio nos combustíveis utilizados na época do início do Programa até o limite prático de $2,3gU/cm^3$ no caso do UAl_x-Al e $3,2gU/cm^3$ no caso do U_3O_8-Al , e também no desenvolvimento de novos combustíveis que permitissem a obtenção de densidades de urânio de 6 a $7gU/cm^3$, bem acima das possíveis de obter-se com os combustíveis UAl_x-Al e U_3O_8-Al . O desenvolvimento destes novos combustíveis possibilitariam a conversão para baixo enriquecimento de praticamente todos os reatores de pesquisas existentes.

Altas densidades de urânio na dispersão somente podem ser conseguidas através da utilização na dispersão de compostos físeis com alto teor de urânio. A figura 1.1.1 apresenta o potencial de vários compostos de urânio.

FIGURA 1.1.1 – Densidade de urânio na dispersão em função da concentração da fase físsil dispersa para diferentes compostos de urânio [19].

O limite tecnológico para utilização de dispersões é de 45% em volume de material físsil disperso, uma vez que deve ser mantida uma matriz contínua de dispersante, no caso alumínio. Os silicetos de urânio e o U_6Fe foram inicialmente os compostos considerados promissores [19].

O problema encontrado na utilização destes intermetálicos com alto teor de urânio como material físsil na forma de dispersões em alumínio está relacionado à instabilidade dimensional durante a operação, causada por sua reação com a matriz de alumínio, conduzindo a um inchamento das placas combustíveis e, por conseguinte, a problemas termohidráulicos que comprometem a segurança do reator. Em meados de 1988, com base em resultados de testes de irradiação [20,21], o combustível a base da dispersão U_3Si_2-Al foi qualificado pelo United States Nuclear Regulatory Commission e liberado para comercialização para densidades de urânio de até $4,8gU/cm^3$ [10].

Estudos realizados pelo ORNL e o ANL em experimentos de combustíveis sob irradiação revelaram que há limites para uso do $U_3Si_2 - Al$ [19]. Dessa forma, pesquisas continuaram a ser desenvolvidas visando à utilização de intermetálicos com ainda maiores concentrações de urânio, tais como U_3Si , U_3SiAl e U_6Fe como material físsil na forma de dispersões em alumínio. Contudo, resultados de testes de irradiação demonstraram uma inaceitável instabilidade dimensional nestes novos combustíveis. O U_6Fe , devido à sua alta concentração de urânio (96% em peso) foi particularmente estudado [22], sendo as pesquisas praticamente abandonadas a partir de 1986, devido ao alto inchamento observado em testes de irradiação aliado aos resultados promissores obtidos com a dispersão U_3Si_2-Al , sendo considerada uma alternativa inviável [23].

Com a utilização do U_3Si_2 como material físsil nas dispersões em alumínio, não foi possível a conversão de todos os reatores de pesquisa e os reatores de alto desempenho aguardam uma solução tecnológica definitiva, necessitando de uma densidade de urânio de 6 a $9gU/cm^3$. Outros combustíveis de alta densidade têm sido estudados, incluindo dispersões a base de UMo , U_3SiCu , $U_3Si_{1,5}$, $U_3Si_{1,6}$, $U_{75}Ga_{15}Ge_{10}$, $U_{75}Ga_{10}Si_{15}$ e nitretos de urânio, para conversão destes reatores [18].

Inovadoras técnicas de fabricação foram investigadas baseadas em compactação isostática a quente, Hot Isostatic Pressing (HIP), seja aumentando-se a fração volumétrica do U_3Si_2 para além de 50% (o limite tecnológico aceito

atualmente é de 45%) ou utilizando-se arames de U_3Si e/ou $U_{75}Ga_{10}Si_{15}$ e/ou $U_{75}Ga_{15}Ge_{10}$ caldeados em alumínio numa geometria tal que gere placas com densidade próxima a 9 gU/cm^3 no núcleo combustível [18].

Em 1994, foram estudados núcleos de dispersão U_3Si_2 -Al com pó mais fino e com pó obtido por atomização, o que permitiu fabricar combustível com uma fração volumétrica de 55%, obtendo-se densidades de urânio de 6 gU/cm^3 . Isso foi obtido por meio da redução ou eliminação da porosidade do núcleo da placa combustível durante a fabricação. Os resultados mostraram que uma porosidade mínima é obtida com a redução no tamanho da partícula e o uso de uma fração elevada (40 – 50%) de finos menores do que $44\mu\text{m}$. A substituição do alumínio comercialmente puro pela liga Al6061 favoreceu a redução da porosidade [23]. Contudo, esse combustível a base de U_3Si_2 -Al não foi qualificado para uso comercial [24].

Assim, atualmente, a mais avançada tecnologia de fabricação de placas combustíveis tipo MTR disponível comercialmente está baseada na dispersão U_3Si_2 -Al, com concentração de U_3Si_2 que resulta numa densidade de urânio no núcleo da placa combustível de $4,8\text{ gU/cm}^3$.

Quando se fala em combustíveis com alta concentração de urânio, a primeira idéia seria utilizar o urânio metálico puro, o que resulta na maior concentração de urânio possível. Contudo, o urânio puro sofre transformações de fase. A fase estável à temperatura ambiente é a alfa, de estrutura cristalina tetragonal, e densidade de $18,1\text{ gU/cm}^3$. Sob irradiação, mesmo em baixas temperaturas, o nível de inchamento do urânio alfa é inaceitável. Por outro lado, a experiência anterior com irradiação de ligas de urânio demonstrou que a fase gama do urânio, estável em temperaturas de 550°C a 1000°C , apresenta um inchamento aceitável devido a gases de fissão e interação com o alumínio durante a fabricação e irradiação, que ocorrem em baixa temperatura, na faixa de equilíbrio da fase alfa. Por esse motivo, as atenções se voltaram ao uso da fase gama do urânio como combustível. Porém, como a fase do urânio estável à baixa temperatura é a fase alfa, os estudos se concentraram na estabilização da fase gama do urânio a baixas temperaturas.

Iniciou-se, então, a busca por elementos de liga que apresentassem alto poder de estabilização da fase gama do urânio nas condições usuais de operação dos reatores de pesquisas, da ordem de 100 a 200°C , e nas temperaturas de

fabricação do combustível da ordem de 450°C. Outro requisito importante é que o elemento de liga, além de alto poder de estabilização da fase gama do urânio, apresenta baixa seção de choque de absorção de nêutrons e promove estabilidade da liga formada sob irradiação. Hofman, Meyer e Ray apresentam um estudo buscando identificar possíveis elementos de liga candidatos a estabilizadores da fase gama do urânio. Esses autores selecionaram e testaram ligas com o mais alto teor possível de urânio que apresentaram boa estabilidade da fase gama em baixas temperaturas e bom desempenho neutrônico [25].

Alguns elementos com baixa seção de choque para absorção de nêutrons, como Zr, Nb, Ti, e Mo, podem estabilizar a fase gama do urânio em baixas temperaturas. Combinações de Zr-Nb e Mo mostraram-se efetivas, mas a tendência é a de se trabalhar com ligas binárias. A liga U-5%Mo é equivalente em densidade de urânio ao U₆Fe mencionado anteriormente. Ligas nessa faixa de densidade de urânio, correspondendo a concentrações de urânio na dispersão de mais de 7,5gU/cm³, são as próximas metas do programa RERTR, possibilitando a conversão para baixo enriquecimento na maioria dos reatores de pesquisas ao redor do mundo. Contudo, o desafio ainda é produzir placas combustíveis a partir dessas ligas que demonstrem, em testes de irradiação, bom desempenho sob altos fluxos neutrônicos e até altos níveis de queima.

O molibdênio é o elemento que apresenta a maior solubilidade em urânio (aproximadamente 35%) e um bom compromisso entre a quantidade necessária para estabilizar a fase gama e a concentração de urânio que se espera em termos de exigências do programa RERTR. Trabalhos anteriores já haviam demonstrado a capacidade do molibdênio de reter a fase gama a 575°C com adições de apenas 25% em átomos ou 12% em peso. Além disso, nos diagramas de Tempo, Temperatura, Transformação, (TTT), observa-se que nas temperaturas utilizadas na laminação e durante a operação no reator, a decomposição gama-alfa é muito lenta. Em geral, os diagramas TTT das ligas U-Mo apresentam mínima decomposição gama mesmo em altas temperaturas, especialmente para 10% de adição de molibdênio. O desafio é desenvolver um procedimento de fabricação de placas combustíveis que não promova a reação da liga U-Mo com a matriz de alumínio da dispersão, além de resultar num combustível que apresente um bom desempenho em altos ciclos de queima sob os testes de irradiação [26].

Um esforço internacional tem sido despendido no sentido de desenvolver, qualificar e licenciar o combustível tipo placa a base de dispersão UMo-Al. Os resultados obtidos são divulgados e discutidos anualmente em dois encontros internacionais organizados especificamente para esse fim, no International Reduced Enrichment for Research and Test Reactors Meeting (RERTR Meeting), organizado pelo ANL, e no International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM), organizado pela European Nuclear Society (ENS). Os principais programas de pesquisa para o desenvolvimento do combustível de dispersão UMo-Al são o RERTR, do ANL, conduzido desde março de 1996 [27]; o programa do grupo francês, que reúne o Commissariat à l'énergie Atomique (CEA), CERCA, Compagnie Générale des Matières Nucléaires (COGEMA), Framatome Advanced Nuclear Power (FANP) e Technicatome, conduzido desde 1999 [28]; e o programa argentino da CNEA, conduzido desde 2000 [29]. Nos estágios iniciais dos esforços para desenvolver o combustível UMo-Al, o programa RERTR teve a colaboração do KAERI (Korea Atomic Energy Research Institute) na utilização de pó de UMo produzido por atomização. Em 2003, Australian Nuclear Science and Technology Organization (ANSTO) na Austrália e o grupo francês também iniciaram um programa de cooperação. Na Rússia, o programa RERTR iniciou-se em 1999 com um acordo entre a Russian Ministry of Atomic Energy (MINATOM) e o RERTR americano, buscando o desenvolvimento e qualificação do combustível UMo-Al para uso nos reatores de pesquisa de projeto russo espalhados pelo mundo, com combustível tipo tubular produzido por extrusão [30].

Apesar dos resultados promissores dos primeiros testes de irradiação, ao final do ano de 2003 tornou-se claro que as dispersões UMo-Al tinham limitações sob condições mais severas de irradiação, apresentando um inchamento instável que foi verificado em testes de irradiação realizados em diversos países. Nessa época o desenvolvimento do combustível a base de dispersão UMo-Al ficou focado na concentração máxima de $6\text{gU}/\text{cm}^3$, como uma possibilidade de substituição do combustível $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ em uso ao redor do mundo.

Atualmente, os estudos para controlar o inchamento das dispersões UMo-Al sob condições severas de irradiação focam-se na alteração da liga UMo por meio da adição de elementos de liga como o Ti e o Zr [31,32,33], na modificação da matriz de alumínio por meio do uso de aditivos [32-38] ou mesmo

a substituição do alumínio [39], e por meio de barreira de difusão aplicada nas partículas de UMo [40].

Poucas informações estão disponíveis na literatura sobre técnicas e procedimentos de fabricação do combustível de dispersão UMo-Al. Contudo, os procedimentos básicos de fabricação são os mesmos adotados na fabricação dos combustíveis a base de dispersão, os quais estão descritos no capítulo 3. O trabalho de Trybus e colaboradores [41] apresenta alguns parâmetros de fabricação, como temperatura de laminação, redução por passe na laminação e temperatura para o teste de bolhas. Radiografias e a microestrutura da dispersão também são apresentadas.

1.2 Desenvolvimento do combustível de dispersão no IPEN-CNEN/SP

O reator do IPEN-CNEN/SP é utilizado para a produção de fontes radioativas seladas de aplicação industrial e, também, para produção de radioisótopos primários, dos quais se destaca o ^{131}I , sendo o principal responsável por suprir a demanda nacional deste radioisótopo. O reator IEA-R1 é um reator de pesquisa tipo piscina aberta [42,43], que entrou em funcionamento em 1957 e operou até 1997 a 2 MW de potência. A partir de 1995 foram efetuadas reformas substanciais no reator nuclear de pesquisas IEA-R1, o que viabilizou, com a conclusão das reformas em 1998, o aumento da potência do reator para 5 MW e a possibilidade de seu funcionamento durante 100 horas contínuas por semana.

Na primeira metade da década de 60 o IPEN-CNEN/SP, na época Instituto de Energia Atômica (IEA), iniciou o estudo do combustível a base de dispersão, com aplicação em reatores de pesquisas tipo piscina. Entre 1964 e 1965 foram fabricados os elementos combustíveis para o Reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear (IEN). Esse combustível usou uma dispersão de U_3O_8 em alumínio. O pó de U_3O_8 utilizado, enriquecido a 20% em peso de ^{235}U , foi obtido dos Estados Unidos, por intermédio da Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA), dentro do programa Átomos para a Paz. Apesar da baixa exigência tecnológica do combustível do reator Argonauta, o qual desenvolve baixíssima potência, da ordem de kW, o grupo responsável por esse feito plantou, nessa época, uma semente que viria a germinar 20 anos depois, na década de 80, e

florescer definitivamente na década de 90, quando o IPEN-CNEN/SP dominou essa tecnologia de fabricação. Nessa época, foi iniciada a produção rotineira do combustível para o reator de pesquisas IEA-R1, de potência 2 MW, o que exigiu um significativo avanço tecnológico nas técnicas de fabricação, buscando adequar a tecnologia para fabricar combustíveis de nova geração, substancialmente superior ao antigo combustível utilizado no reator Argonauta.

No início da década de 80, o IPEN-CNEN/SP não pôde adquirir elementos combustíveis no mercado internacional para o suprimento do seu reator de pesquisas IEA-R1, combustível anteriormente proveniente dos EUA, sendo a interrupção no fornecimento atribuída ao fato do Brasil não ter assinado o tratado de não proliferação de armas nucleares (TNP). Essa crescente dificuldade de aquisição de elementos combustíveis no mercado internacional funcionou como um impulso inicial para que o IPEN-CNEN/SP, a partir de 1980, intensificasse seus esforços no sentido de desenvolver a tecnologia de fabricação desse tipo de combustível. A tecnologia de fabricação, anteriormente desenvolvida na década de 60, foi atualizada a partir de 1985, com base nos últimos avanços tecnológicos na área. Aproveitando-se a experiência anteriormente adquirida [44,45,46] e, em virtude da fabricação deste tipo de combustível para o reator Argonauta [47,48], o U_3O_8 foi, inicialmente, a opção escolhida para utilização na dispersão. Entre 1985 e 1988 o IPEN trabalhou na montagem de uma unidade de fabricação de elementos combustíveis a um nível de demonstração, com capacidade de fabricação de 6 elementos combustíveis por ano, quantidade suficiente para suprir o reator IEA-R1 operando a 2 MW em regime de 40 horas semanais.

Em 31 de agosto de 1988, durante as comemorações do seu 32º aniversário, o IPEN abasteceu o reator IEA-R1 com o primeiro elemento combustível de fabricação nacional, a apenas quinze dias do prazo de esgotamento do combustível do reator IEA-R1. O material físsil usado foi o pó de U_3O_8 , usando um estoque de cerca de 30 kg desse pó. Após a produção desse primeiro elemento combustível, a partir de 1988, na época, Projeto Combustível Nuclear do IPEN-CNEN/SP, hoje Centro do Combustível Nuclear (CCN), iniciou uma produção seriada, a qual continua até os dias de hoje.

Antecipando o esgotamento da matéria-prima, foram desenvolvidos e implantados em 1994 os processos de reconversão do UF_6 enriquecido a 20% a U_3O_8 (LEU) e o processo de recuperação do urânio contido em placas

combustíveis rejeitadas pelo controle de qualidade. O pó de U_3O_8 que existia em estoque terminou em 1996, possibilitando a fabricação e o fornecimento de 26 elementos combustíveis para o reator IEA-R1. Em 1996 realizou-se a reconversão de cerca de 20kg de UF_6 enriquecido importado, estando o IPEN-CNEN/SP preparado para a produção rotineira de elementos combustíveis desde o UF_6 como matéria-prima até o elemento combustível acabado. Durante o ano de 1997 elevou-se a capacidade de produção de 6 elementos combustíveis anuais até o limite de 10, tendo sido produzidos 10 elementos combustíveis nesse ano.

Por força da necessidade de aumento da potência do reator IEA-R1, de 2 para 5 MW, e do aumento do seu fluxo de nêutrons, em 1998 foi implantada a tecnologia de fabricação do combustível a base de U_3Si_2 , permitindo a elevação da densidade de urânio no combustível de 1,9 (no caso do U_3O_8) para $3,0gU/cm^3$, mantendo-se inalterada a fração volumétrica de material físsil no núcleo das placas, ao redor de 27%, a qual já estava qualificada para o U_3O_8 . O pó de U_3Si_2 inicialmente foi importado da empresa francesa CERCA e um total de 14 elementos combustíveis a base de U_3Si_2 foi fabricado entre 1999 e 2000. O novo combustível U_3Si_2 -Al foi qualificado em 2005, quando 5 elementos combustíveis atingiram os requisitos de projeto, com níveis de queima superiores a 30%, sem apresentar problemas relacionados ao desempenho sob irradiação [49]. Até o presente momento, foram produzidos 92 elementos combustíveis, dos quais 48 são do tipo padrão a base de U_3O_8 , 14 são do tipo controle a base de U_3O_8 , 02 são do tipo controle a base de U_3Si_2 e 28 são do tipo padrão a base de U_3Si_2 .

A partir de 1998 iniciou-se o desenvolvimento da tecnologia de produção do pó de U_3Si_2 , visando à nacionalização de todo o processo de fabricação, desde o UF_6 enriquecido, passando pela reconversão para UF_4 , pela sua redução magnesiotérmica para urânio metálico, pela fusão da liga U_3Si_2 e, finalmente, pela fabricação das placas combustíveis, até a montagem e qualificação do elemento combustível. Já em 1998 obteve-se a tecnologia de produção do UF_4 pela rota de redução via cloreto estano [50].

Em 2002 o processo de obtenção do urânio metálico foi dominado, possibilitando o desenvolvimento da tecnologia de obtenção do intermetálico U_3Si_2 , que é a matéria-prima para a fabricação do elemento combustível, material anteriormente importado [51-55]. Em 2005 o IPEN obteve o primeiro lote de pó de

U_3Si_2 fabricado com tecnologia nacional, dominando o que se denominou “ciclo do siliceto de urânio”. Em 2006, o IPEN consolidou a tecnologia de fabricação do combustível à base de siliceto de urânio com $3\text{gU}/\text{cm}^3$, tendo fabricado o primeiro elemento combustível com matéria-prima (UF_6 enriquecido a 20% em ^{235}U) e tecnologia totalmente nacionais. Este elemento combustível, com densidade de urânio de $3,0\text{gU}/\text{cm}^3$, foi utilizado no reator de pesquisas IEA-R1 a partir de 2007.

A partir de 2008, os esforços no desenvolvimento do combustível tipo dispersão foram direcionados para o aumento da densidade de urânio nos combustíveis de dispersão $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ e $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ até o limite tecnológico para essas dispersões, ambas comerciais, de 4,8 e $3,2\text{gU}/\text{cm}^3$, respectivamente. Esse é o objetivo deste trabalho.

Também a partir de 2008, iniciou-se o estudo do combustível a base da dispersão UMo-Al . Devido às características dúcteis da liga UMo , a produção do pó é a etapa mais desafiadora de todo o processo de fabricação desse tipo de combustível. Os estudos relacionados à fabricação do pó de UMo iniciaram-se em 2007 [56] e foram concluídos com sucesso recentemente [57]. A obtenção de 400g desse pó possibilitou a fabricação de um primeiro protótipo desse novo combustível, ou seja, uma miniplaca com núcleo de dispersão UMo-Al usando a liga UMo com 10% em peso de molibdênio e urânio natural, resultando numa densidade de urânio de $6,7\text{gU}/\text{cm}^3$. A próxima etapa é concluir o desenvolvimento desse combustível e produzir miniplacas e placas combustíveis de tamanho normal com urânio enriquecido a 20 % em ^{235}U (LEU).

1.3 Contextualização

Com a crise mundial de 2008 no fornecimento de ^{99}Mo , o IPEN-CNEN/SP decidiu, como estratégia de longo prazo, nacionalizar a produção desse importante radioisótopo utilizando a rota de fissão nuclear [58] e a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) realizou em 3 de setembro de 2008 a reunião de abertura para o Projeto Reator Multipropósito Brasileiro (RMB). O RMB será um reator tipo piscina aberta com potência prevista de 30 MW, com circuito de refrigeração forçada no primário. O núcleo será refrigerado e moderado com água leve, utilizando berílio e água pesada como refletores. O núcleo será

compacto para atingir um fluxo de nêutrons superior a $2 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2$. Será construído em Iperó, cidade próxima à cidade de São Paulo. O RMB está orçado em R\$ 850 milhões, dos quais R\$ 50 milhões foram liberados em maio de 2010 para o projeto básico. O projeto para a construção do Reator Multipropósito Brasileiro (RMB) foi aprovado pela Comissão de Monitoramento e Avaliação (CMA) do Plano Plurianual do Governo, conforme publicação no Diário Oficial da União publicado em 1 de março de 2011. A CMA aprovou o parecer da Câmara Técnica de Projetos de Grande Vulto (CTPGV) que foi favorável ao projeto pela importância técnica e socioeconômica. Uma recente análise de sustentabilidade do Projeto RMB demonstrou que a infraestrutura do país atende a 74% dos requisitos analisados, favorecendo a implantação do Projeto [59].

O combustível a ser utilizado no primeiro núcleo do Reator RMB, também a base de dispersão, será de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com 3 gU/cm^3 . Esse combustível é o mesmo utilizado pelo reator IEA-R1 do IPEN, já fabricado rotineiramente. Contudo, posteriormente, o núcleo de equilíbrio do Reator RMB irá utilizar o combustível de dispersão $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com $4,8 \text{ gU/cm}^3$, que é o combustível comercial mais moderno da atualidade.

2 OBJETIVO

O objetivo deste projeto é desenvolver e implantar no IPEN-CNEN/SP a tecnologia de fabricação de um combustível nuclear, contendo uma maior quantidade de urânio na placa combustível, portanto mais eficiente do que o atualmente fabricado no IPEN-CNEN/SP.

2.1 Objetivos específicos

- a) Fabricação de placas combustíveis de alta concentração de urânio, a base de U_3Si_2-Al , com $4,8 \text{ gU/cm}^3$, e a base de U_3O_8-Al , com $3,2 \text{ gU/cm}^3$. Esses combustíveis serão utilizados no novo reator de pesquisas, o Reator Multipropósito Brasileiro – RMB – 30MW.;
- b) Realização dos ajustes necessários nos atuais procedimentos de fabricação e sua implantação na rotina de produção do Centro do Combustível Nuclear do IPEN-CNEN/SP;
- c) Fabricação e montagem de um elemento combustível parcial contendo 2 placas de U_3Si_2-Al com $4,8 \text{ gU/cm}^3$, e de um elemento combustível parcial contendo 2 placas de U_3O_8-Al com $3,2 \text{ gU/cm}^3$, a serem irradiados no reator IEA-R1 para qualificação quanto ao desempenho.

3 PROCESSO DE FABRICAÇÃO DO COMBUSTÍVEL DE DISPERSÃO

Os elementos combustíveis tipo MTR são formados pela montagem de um conjunto de placas combustíveis espaçadas entre si, permitindo a passagem de um fluxo de água que serve como refrigerante e moderador. As placas combustíveis consistem de um núcleo, contendo o material físsil, que é totalmente revestido com alumínio, são fabricadas adotando-se a tradicional técnica de montagem núcleo, moldura e revestimentos e posterior laminação, técnica conhecida internacionalmente com o nome de “Picture Frame Technique” [4,11]. Técnicas de metalurgia do pó são utilizadas na fabricação dos núcleos das placas combustíveis, compostos de cermets ou briquetes, compósitos cerâmico-metálicos, utilizando pó de U_3Si_2 ou U_3O_8 enriquecido a 20% no isótopo ^{235}U (material combustível nuclear), em conjunto com pó de alumínio (material estrutural da matriz do núcleo).

As placas combustíveis são as peças mais importantes do elemento combustível tipo MTR, que é um conjunto de 18 placas combustíveis paralelas entre si, montadas formando o conjunto denominado elemento combustível. A tecnologia de fabricação das placas combustíveis e a geometria do elemento combustível é basicamente a mesma para todos os reatores desse tipo, diferindo apenas nas dimensões da placa combustível, principalmente na espessura, e nas dimensões do elemento combustível.

Muito pouca literatura descrevendo o processo de fabricação de combustível tipo placa de dispersão está disponível na literatura. As informações publicadas são antigas, pouco detalhadas e específicas para o combustível de um determinado reator [16,17,18,60]. De modo geral, o processo de fabricação de elementos combustíveis, sejam do tipo siliceto de urânio (U_3Si_2) ou óxido de urânio (U_3O_8), pode ser dividido nas seguintes etapas principais:

- a) Produção de elementos combustíveis, a base de siliceto de urânio (U_3Si_2)
 - Produção de tetrafluoreto de urânio (UF_4) a partir de uma solução hidrolisada de UF_6 enriquecido a 20% em peso de ^{235}U , obtido em mercado internacional;
 - Produção de urânio metálico (U^0) a partir do pó de UF_4 ;

- Produção de U_3Si_2 a partir de urânio metálico;
- Produção de núcleos combustíveis a partir de pós de U_3Si_2 e alumínio;
- Produção de placas combustíveis com núcleos de U_3Si_2 -Al;
- Montagem de elementos combustíveis;
- Recuperação do urânio contido em refugos da produção.
- Tratamento dos efluentes gerados na linha de fabricação.

b) Produção de elementos combustíveis, a base de óxido de urânio (U_3O_8)

- Produção de Diuranato de Urânio (DUA) a partir de uma solução hidrolisada de UF_6 enriquecido a 20% em peso de ^{235}U ;
- Produção de pó de U_3O_8 a partir de DUA;
- Produção de núcleos combustíveis a partir de pós de U_3O_8 e alumínio;
- Produção de placas combustíveis com núcleos de U_3O_8 - Al;
- Montagem de elementos combustíveis;
- Recuperação do urânio contido em refugos da produção.
- Tratamento dos efluentes gerados na linha de fabricação.

O diagrama de blocos simplificado do processo de fabricação de elementos combustíveis adotado pelo IPEN-CNEN/SP está apresentado na figura 3.1. As etapas do processo que se referem à fabricação dos briquetes e das placas combustíveis serão os objetos centrais de estudo deste trabalho. A rota que adota o U_3Si_2 como matéria-prima para a dispersão é a mais moderna, recentemente implantada. Os processos de fabricação de combustíveis, seja do tipo siliceto de urânio (U_3Si_2) ou óxido de urânio (U_3O_8), inicia-se com o processamento do UF_6 . O UF_6 enriquecido é atualmente obtido do Centro Tecnológico da Marinha, na sua unidade de Aramar (CTM-Aramar), São Paulo-SP, em cilindros tipo 5A, com peso líquido máximo 25kg.

O UF_6 é transformado em uma solução de fluoreto de urânio (UO_2F_2) obtida por meio de hidrólise, sendo o UF_6 transferido para o interior do reator de hidrólise, onde reage com água, hidrolizando-se instantaneamente, formando-se a solução de fluoreto de urânio. O UF_6 liberado do cilindro é introduzido no reator de hidrólise por meio de um bico tipo venturi acionado pela recirculação da

solução aquosa de fluoreto de uranilo formada. Inicialmente, o reator de hidrólise é preenchido com 25 litros de água deionizada, a qual reage com o UF_6 formando a solução de UO_2F_2 . O UF_6 é injetado na base do reator onde é borbulhado na solução, reagindo imediatamente para a formação do fluoreto de uranilo. Ao final da operação, obtém-se 50 litros de uma solução de UO_2F_2 com concentração de aproximadamente 40g de urânio/litro.

FIGURA 3.1 – Processo de fabricação de elementos combustíveis do IPEN-CNEN/SP [19].

A solução de fluoreto de urânio oriunda do reator de hidrólise é transferida para o reator de precipitação de UF_4 e, neste reator, o urânio contido em solução é reduzido a U^{4+} utilizando-se como agente redutor o cloreto de estanho II, sendo o urânio precipitado na forma de UF_4 mediante a adição de HF.

A suspensão obtida é transferida do reator de precipitação para o sistema de filtração. O UF_4 precipitado contido no filtro é recolhido manualmente, acondicionado em bandejas e introduzido em estufa para retirada da umidade. Posteriormente o UF_4 seco é enviado ao sistema de secagem para retirada da água de cristalização. O material é acondicionado no interior de uma retorta, a qual é posteriormente inertizada com um fluxo de argônio e inserida em uma mufla elétrica para aquecimento. O ciclo de secagem é de 1 hora a uma temperatura de 400°C . Após a operação de secagem, o UF_4 é retirado manualmente da retorta e acondicionado em recipiente hermético. O UF_4 obtido é a matéria-prima para a fabricação do urânio metálico e, posteriormente, do U_3Si_2 .

O pó de UF_4 é utilizado para a obtenção de urânio metálico por meio de uma reação magnesiotérmica em um vaso cilíndrico construído em aço inoxidável 316 resistente à temperatura, denominado Bomba de Redução. Este urânio metálico é, posteriormente, processado para obtenção do intermetálico U_3Si_2 por fusão em forno de indução, dando origem a um lingote de U_3Si_2 , devidamente qualificado. O pó de UF_4 é pesado e inserido em um misturador (tipo V), instalado no interior de uma caixa de luvas e homogeneizado, garantindo homogeneidade nas suas características físico-químicas. Após essa homogeneização, o magnésio metálico previamente pesado é adicionado ao pó de UF_4 contido no misturador, formando-se a carga de redução.

A bomba de redução consiste em um vaso cilíndrico que permite o acoplamento, por meio de engate rápido (flange), de uma tampa que pode ser refrigerada com ar comprimido. O cadinho, confeccionado em grafite pirolítico, é inserido no interior do corpo da bomba já preenchido com a carga de redução. A mistura homogeneizada obtida de UF_4 e Mg^0 é colocada no interior do cadinho de grafite que, por sua vez, é carregado na bomba de redução. A bomba carregada é inserida no interior do forno de redução, o qual é tipo poço. Inicia-se o processo de aquecimento do forno até um patamar em torno de 600°C . Sob esta temperatura, a bomba é evacuada várias vezes e purgada com argônio, mantendo-se uma pressão interna de 0,4 bar. A carga é, então, ignitada e a

reação de redução ocorre espontaneamente:

Como resultado da vigorosa reação exotérmica, o urânio metálico formado na reação do UF_4 com o Mg^0 funde (ponto de fusão de $1130^\circ C$) e escorre, favorecido pela sua alta densidade, para o fundo do cadinho de grafite. A escória de MgF_2 separa-se, deslocando-se para a superfície. O processo todo ocorre em poucos segundos. Finalmente, a bomba de redução é retirada do forno por meio da talha e é resfriada. Após o resfriamento, a tampa da bomba é retirada e o cadinho de grafite contendo o lingote de urânio metálico e a escória de MgF_2 é, então, desmontado, retirando-se os produtos obtidos. A superfície do lingote é limpa mecanicamente por meio de uma escova vibratória, retirando-se escória aderida superficialmente. Após esta limpeza mecânica, o lingote é decapado em uma solução de ácido nítrico a 10%, sendo, posteriormente, lavado com água corrente e seco ao ar.

Para a preparação da carga de fusão as massas de grânulos de Si^0 e pedaços de U^0 são pesados na proporção 92,5% em peso de U^0 e 7,5% em peso de Si^0 . A fusão é realizada num forno de indução equipado com um sistema de vácuo e controle de atmosfera. A carga é preparada colocando-se os pedaços de U^0 num cadinho de zirconia. O Si^0 é acondicionado entre os pedaços de U^0 . Quando o cadinho é preenchido, o forno é fechado e evacuado e, posteriormente, preenchido com argônio até que seja atingida a pressão de 500 mbar. Depois que a carga é fundida, o forno é desligado e o banho é solidificado no próprio cadinho. O lingote obtido na fusão é retirado do cadinho e separado da escória.

O lingote de U_3Si_2 é transferido para uma caixa de luvas com atmosfera inerte, de argônio, já que o U_3Si_2 é pirofórico. No interior da caixa de luvas, o lingote é submetido à moagem preliminar, obtendo-se grânulos menores de 4 mm com a menor fração de finos ($< 44\mu m$) possível. Esta operação é realizada com o auxílio de um triturador. Uma vez realizada a moagem preliminar, o material é colocado diretamente sobre um conjunto de peneiras, sendo, em seguida, peneirado manualmente. O conjunto de peneiras compreende uma peneira grosseira de abertura 4mm, uma peneira fina de abertura $150\mu m$ e um fundo. Os

grânulos de diâmetro superior a 4mm são novamente triturados. Os grânulos entre 4mm e 150 μ m são coletados para a moagem fina e as partículas menores do que 150 μ m são coletadas separadamente para posterior classificação granulométrica.

A moagem do U_3Si_2 posterior à moagem preliminar é realizada manualmente. O material coletado durante a moagem preliminar (entre 4mm e 150 μ m) e o superior a 150 μ m proveniente do peneiramento (descrito a seguir) é processado nesta etapa. A moagem é realizada cuidadosamente, com peneiramentos intermediários, para classificação do pó na faixa 150-44 μ m. É permitida uma fração de finos, abaixo de 44 μ m, máxima de 20% em peso. A fração acima da especificação é recolhida num recipiente, sendo enviada novamente para o sistema de moagem final. A fração na faixa especificada (entre 150 μ m e 44 μ m) é recolhida e armazenada e a fração fina (<44 μ m) é recolhida e armazenada separadamente. A caixa de luvas contém no seu interior uma máquina de peneiramento vibratório, a qual efetua a separação de três frações granulométricas, maior do que 150 μ m, entre 150 e 44 μ m e menor do que 44 μ m. A composição do lote de pó de U_3Si_2 é ajustada para um máximo de teor de finos de 20% em peso, que é o máximo especificado.

A próxima etapa do processo é a fabricação dos núcleos das placas combustíveis, o qual contém o material físsil, atualmente sendo adotado o siliceto de urânio U_3Si_2 . Esse núcleo é obtido por meio de técnicas de metalurgia do pó e é denominado briquete. Inicialmente, a massa e composição do briquete são calculadas com base nos valores analisados de urânio total e enriquecimento isotópico do pó de U_3Si_2 . O critério para o cálculo da massa do briquete é a quantidade do isótopo ^{235}U especificada para a placa combustível e as dimensões do briquete. Com base na massa calculada do briquete, as massas de pó combustível e pó de Al são determinadas separadamente e homogeneizadas na proporção que garanta a quantidade de ^{235}U especificada, distribuída uniformemente. Estas cargas de mistura são compactadas a frio e os briquetes são medidos e pesados. As dimensões finais do núcleo da placa combustível acabada são obtidas através da especificação e o volume do núcleo é calculado a partir destes dados pela multiplicação dos valores da espessura, largura e comprimento do núcleo. Isto corresponde ao volume do briquete a ser produzido.

A espessura do briquete é obtida pela multiplicação da espessura especificada do núcleo da placa combustível pelo alongamento, assumindo alargamento zero. O conteúdo de vazios do núcleo depende apenas da fração volumétrica de pó combustível presente. Os dados de porosidade contra a concentração de urânio no núcleo são obtidos através de cálculos teóricos. Para otimização da geometria final do núcleo laminado, o briquete possui cantos arredondados, sendo o volume dos cantos considerado no cálculo do volume e, portanto, da espessura do briquete.

A diferença entre o volume do briquete, obtido como descrito acima, e o volume do pó combustível, determinado pela divisão entre a massa de pó e a sua densidade, determina o volume de pó de alumínio que deve ser adicionado à massa do briquete. Como a densidade teórica do sistema não pode ser atingida durante a compactação do briquete, o volume de alumínio é reduzido pelo volume de poros que permanecem após a compactação. No caso do combustível $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com $3,0\text{gU/cm}^3$, a massa de U_3Si_2 no briquete é de $84,4 \pm 0,3\text{g}$. A massa total do briquete é dada pela massa calculada de pó de material físsil somada à massa calculada de pó de alumínio.

De acordo com o cálculo das massas de U_3Si_2 e de alumínio, os pós são pesados separadamente, preparando-se apenas uma carga por pesagem. A pesagem é realizada em frascos de vidro especialmente projetados para sua instalação no homogeneizador. Uma vez pesados os pós, a carga é homogeneizada no interior de uma caixa de luvas com atmosfera inerte. Esta homogeneização garante que a quantidade especificada de ^{235}U esteja distribuída homogeneamente no briquete a ser compactado. A operação de pesagem é executada com cuidado e, após a homogeneização, o cuidado no manuseio da carga é crítico para evitar-se segregação.

A homogeneização das cargas é realizada utilizando-se um homogeneizador especial com capacidade para homogeneização simultânea de 8 cargas. No caso do U_3Si_2 , a duração da homogeneização é de 120 minutos sob rotação de 36rpm e ângulo de 45° . As cargas já homogeneizadas são compactadas sob temperatura ambiente para obtenção de briquetes, utilizando-se uma prensa hidráulica com capacidade de 700 ton, e que se encontra confinada em caixa de luvas. A pressão de compactação é ajustada para a obtenção da espessura desejada, mantendo-se a porosidade entre 5 e 7% em volume. O

frasco contendo a carga homogeneizada é transferido da caixa de luvas de homogeneização para a caixa de luvas de compactação. Dentro desta, a carga de um briquete é esvaziada sobre a cavidade da matriz, mantendo-se o punção inferior inicialmente levantado. O pó é colocado em camadas com o auxílio de um aplainador especial para evitar segregação e minimizar a amplitude da espessura do briquete, abaixando-se o punção inferior gradualmente até que toda a carga esteja carregada, quando o punção é totalmente abaixado até a sua posição normal durante a compactação. Em seguida, o punção superior é introduzido e a pressão é aplicada, sendo mantida por 15 segundos. O conjunto da matriz é, então, aberto ejetando-se o punção superior e o briquete, o qual é retirado manualmente. A espessura do briquete é definida com base nas especificações finais válidas para o núcleo da placa combustível. Essa espessura é calculada teoricamente e depois ajustada por meio de testes de fabricação.

Imediatamente antes da sua transferência para ser utilizado na fabricação de placas combustíveis, os briquetes são desgaseificados a vácuo dinâmico de 2×10^{-3} torr numa retorta. A temperatura é de 250°C por 1 hora, no caso de briquetes U_3Si_2-Al . Após a permanência na retorta de desgaseificação pelo tempo e na temperatura especificada, o mesmo é retirado para resfriamento, mantendo-se o sistema de vácuo operando até que a temperatura ambiente seja atingida. Assim, os briquetes que irão compor o núcleo das placas combustíveis são utilizados na nova fase de processamento, ou seja, a montagem dos conjuntos para laminação.

A tecnologia de fabricação de placas combustíveis adota a tecnologia de montagem e laminação de um conjunto composto pelo núcleo (briquete), uma placa de moldura e duas de revestimento. Obtém-se, assim, após a laminação, uma placa contendo no seu interior o núcleo combustível totalmente isolado do meio ambiente, por meio do perfeito caldeamento entre o núcleo e a moldura com as placas de revestimento. As placas de moldura e revestimento são fabricadas a partir de placas de alumínio comerciais, da liga Al 6061.

Na montagem dos conjuntos, a placa de moldura é aquecida no forno de montagem à temperatura de 440°C e é encaixada no briquete frio apoiado numa placa de revestimento. Após o resfriamento da moldura, o briquete é fixado na cavidade da moldura por interferência. A outra placa de revestimento é posicionada por cima. Este conjunto montado é preso numa morsa giratória na

bancada de soldagem e é soldado em sua borda, fixando-se todos os componentes do conjunto. A soldagem é do tipo Tungsten Inert Gas (TIG) com argônio. Deposita-se um cordão contínuo de solda nas 4 arestas do conjunto, deixando-se livre as extremidades para escape do ar nos primeiros passes de laminação. A figura 3.2 ilustra o procedimento de montagem dos conjuntos para laminação.

FIGURA 3.2 – Esquema ilustrativo da montagem do conjunto núcleo-moldura-revestimentos [19].

Os conjuntos soldados, devidamente identificados, são inseridos no forno de aquecimento de placas por 60 minutos sob temperatura de 440°C. Cada lote de laminação contém 8 conjuntos. A laminação a quente é realizada em vários passes conforme programa bem estabelecido. Cada tipo de combustível adota temperaturas e esquema de redução por passe especificamente definido, de modo a controlar os defeitos terminais e as dimensões finais do núcleo. O projeto de passes é determinado através de cálculos teóricos e de dados empíricos obtidos a partir de testes de fabricação. Não é variado além do limite de 0,1 mm, para garantia do caldeamento e do controle e reprodutibilidade da deformação do núcleo. O projeto de passes adotado no caso do U_3Si_2 com $3gU/cm^3$, basicamente prevê uma redução a quente total de 81,3% em espessura, em

9 passes, e um passe a frio, com redução de 10% em espessura, totalizando uma redução de 83,3%, a quente e a frio. O laminador utilizado tem precisão de 0,025mm, equipado com cilindros de laminação revestidos com cromo, com diâmetro de 127mm.

Entre cada passe a quente, os conjuntos são reaquecidos por 15 minutos. Após o último passe a quente, as placas são novamente identificadas na mesma posição da identificação inicial, na área fora do núcleo, utilizando-se um marcador mecânico. É importante a perfeita lubrificação dos cilindros. A velocidade de laminação é constante, de aproximadamente 10 metros/minuto.

Após a laminação a quente, para testar a qualidade do caldeamento, é realizado o teste de bolhas (blister test). Este teste é realizado no mesmo forno utilizado na laminação a quente, sob temperatura de 440°C por 1 hora. Após a retirada do forno, as placas combustíveis são inspecionadas visualmente para observação e registro de bolhas. Placas combustíveis que apresentarem bolhas são registradas como rejeito, sendo processadas quimicamente para a recuperação do urânio contido.

A laminação a frio é realizada no mesmo laminador adotado na laminação a quente. Nesta operação a espessura especificada é atingida com precisão. A redução a frio é de aproximadamente 10% em espessura, aplicada em um ou dois passes. Durante a laminação a frio, o comprimento do núcleo da placa combustível é verificado, garantindo-se o atendimento da especificação de comprimento mínimo do núcleo e a espessura máxima da placa.

Após a laminação a frio, as placas combustíveis são pré-cortadas para facilitação do manuseio durante as operações subseqüentes de aplainamento, radiografias, traçagem e corte final. As placas obtidas na laminação a frio apresentam suas superfícies bastante onduladas, sendo necessária uma operação de aplainamento. Esta operação é realizada utilizando-se um aplainador de rolos, que consiste basicamente de um grupo de cilindros aplainadores e um sistema de ajuste destes cilindros. Apenas um passe é suficiente.

A próxima etapa é o corte final da placa combustível nas dimensões especificadas. Este corte é realizado em guilhotina utilizando-se uma traçagem baseada numa chapa radiográfica, obtida num sistema de radiografia industrial, onde o núcleo é perfeitamente localizado na placa combustível, traçando-se, a partir da posição do núcleo, linhas que orientarão o corte final. A seguir, as placas

combustíveis são desengraxadas em acetona e decapadas numa solução de NaOH a 10% em peso durante 1 minuto, a 60°C. Feito isto, elas são lavadas em água corrente durante 1 minuto, neutralizadas em HNO₃ a 40% em peso durante 1 minuto, lavadas novamente em água corrente por 5 minutos, lavadas em água desmineralizada corrente por 5 minutos (“spray”), lavadas por imersão em água desmineralizada quente e secas manualmente com o auxílio de um secador de jato de ar quente.

A figura 3.3 mostra um desenho da placa combustível, ilustrando seu núcleo.

FIGURA 3.3 – Esquema ilustrativo da placa combustível laminada [19].

As placas combustíveis acabadas são caracterizadas dimensionalmente, obtendo-se seu comprimento, largura e espessura. Placas combustíveis que não atendem às especificações dimensionais são rejeitadas e encaminhadas para recuperação do urânio contido.

Após o corte final, são obtidas duas novas radiografias. A primeira tem o objetivo de verificação do posicionamento do núcleo na placa combustível, assim como da verificação de seu comprimento e largura, utilizando-se negatoscópios. A segunda tem por objetivo a verificação da homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo e da sua integridade, assim como a presença de “pontos claros” e partículas físséis fora da zona do núcleo.

Para verificação da reprodutibilidade e estabilidade do processo de fabricação de placas combustíveis, as porosidades dos núcleos de todas as placas fabricadas são determinadas utilizando-se o princípio de Archimedes.

A cada 24 placas combustíveis produzidas (3 lotes de laminação), em uma placa combustível é feita a caracterização dos defeitos terminais do núcleo, basicamente espessura do revestimento na zona do “osso de cachorro” (“dog-boning”), inspeção da “zona difusa” onde se encontra o “rabo de peixe” (“fish tail”) ou “rabo de andorinha” e geometria do final do núcleo. Esta análise é realizada destrutivamente por meio de metalografia e análise de imagens. Caso a placa escolhida aleatoriamente apresente algum defeito que não atenda às especificações, uma segunda placa combustível do lote de 24 é destruída e analisada. Se o defeito for comprovado, todos os 3 lotes de laminação são rejeitados. Essa análise metalográfica é realizada utilizando-se técnicas usuais de metalografia e equipamentos específicos para este fim. Placas combustíveis rejeitadas nesta fase são encaminhadas para recuperação do urânio contido.

A qualidade do caldeamento entre os componentes do conjunto original é verificada por meio de testes de dobramento. Este teste é realizado em duas ocasiões, após o pré-corte e após o corte final. Neste teste, o material excedente oriundo do corte é extensivamente dobrado em 180° num sentido e dobrado novamente no sentido inverso. Caso ocorram falhas de caldeamento, estas são facilmente detectadas por inspeção visual após o dobramento. Placas combustíveis rejeitadas nesta fase também são encaminhadas para recuperação do urânio contido.

Dois tipos de elementos combustíveis são fabricados. O elemento combustível padrão é constituído de 18 placas combustíveis, 2 suportes laterais (direito e esquerdo), 1 bocal, 1 pino de sustentação e 8 parafusos. O elemento combustível de controle é constituído por 12 placas combustíveis, 2 placas suportes laterais (direito e esquerdo), 4 placas guias sendo 2 placas guias internas e 2 placas guias externas, 1 bocal, 1 cilindro amortecedor e 12 parafusos. Todos os componentes estruturais do elemento combustível são adquiridos no mercado, e são fabricados de acordo com desenhos que são parte das especificações.

O processo se inicia com a montagem das placas combustíveis para a formação de um estojo. As placas são fixadas por cravamento nos suportes

laterais (direito e esquerdo). Posteriormente, são fixados o bocal e o pino de sustentação, no caso do elemento combustível padrão, e o bocal e o cilindro amortecedor, no caso do elemento combustível de controle. Após a limpeza e a inspeção, os elementos combustíveis são embalados e armazenados até o seu transporte para o reator.

Após a fixação das placas combustíveis nos suportes laterais, formando-se o estojo, o próximo componente a ser instalado é o bocal. O bocal é utilizado para a fixação do elemento combustível na placa matriz do reator. Ele é fixado na extremidade inferior do estojo, montado por meio de parafusos. O bocal é alinhado ao estojo do elemento combustível através de uma operação de ajuste dimensional, utilizando-se mesa de desempenho e traçador de alturas. Os furos no bocal que o fixarão nos suportes laterais já se encontram usinados. A furação para a fixação do bocal nas placas combustíveis externas é usinada com o bocal já fixado nos suportes laterais, com o auxílio da fresadora, sendo preparadas roscas M6. Os parafusos utilizados são de alumínio e já se encontram devidamente limpos e qualificados. O aperto final é realizado após uma caracterização dimensional prévia, verificando-se o alinhamento do bocal no estojo. Caso o alinhamento não atenda à especificação, este é ajustado. No caso do elemento combustível de controle, o procedimento para a fixação do bocal e do cilindro amortecedor é o mesmo descrito acima.

O pino de sustentação é utilizado para a manipulação do elemento combustível padrão no interior da piscina do reator. Ele é instalado na extremidade superior do estojo montado, a qual contém dois furos onde o pino é fixado por meio de rebitemento, onde as suas extremidades, contendo cavidades, são deformadas por pressão com o auxílio da fresadora. No caso do elemento combustível de controle, este pino é substituído pelo cilindro amortecedor, que tem a finalidade de amortecimento da barra de controle ou segurança que opera no interior deste tipo de elemento combustível. A figura 3.4 ilustra o elemento combustível padrão e seus componentes.

Uma vez qualificado, o elemento combustível é lavado num banho de álcool etílico e seco manualmente com o auxílio de um jato de ar quente. Após esta limpeza, é realizada uma inspeção visual, especialmente no interior dos canais de refrigeração, procurando-se detectar possíveis obstruções causadas

por cavacos ou materiais estranhos. Após a lavagem e inspeção, o elemento combustível é transferido para o Reator IEA-R1.

FIGURA 3.4 – Esquema ilustrativo do elemento combustível fabricado no IPEN-CNEN/SP [19].

4 METODOLOGIA

Não estão disponíveis na literatura informações sobre procedimentos de fabricação de placas combustíveis com alta concentração de urânio. Além disso, tais procedimentos são específicos para cada fabricante, uma vez que são dependentes dos equipamentos utilizados na fabricação, principalmente nas etapas de compactação de briquetes e laminação das placas combustíveis.

Assim, a metodologia proposta neste estudo foi inicialmente aplicar na fabricação de placas combustíveis com alta concentração de urânio os mesmos procedimentos de fabricação atualmente adotados pelo CCN do IPEN-CNEN/SP para a fabricação do combustível de 3 gU/cm³. O combustível rotineiramente fabricado tem um carregamento de 27% em volume de material físsil. As placas combustíveis estudadas neste trabalho terão o carregamento máximo tecnologicamente possível de 45% em volume, seja no caso da dispersão U₃Si₂-Al ou da dispersão U₃O₈-Al, resultando em densidades de urânio de 4,8 e 3,2 g/cm³, respectivamente.

Apesar de já terem sido fabricadas no IPEN-CNEN/SP miniplacas com núcleos de dispersão U₃Si₂-Al com 4,8 gU/cm³ sem que fossem identificadas maiores dificuldades na fabricação [52,55], nessa primeira fase do trabalho foram identificados problemas decorrentes do aumento da fração volumétrica do material físsil, de 27 para 45% em volume. Uma vez conhecidas as dificuldades, na segunda fase do trabalho elas foram analisadas e as correções necessárias nos procedimentos de fabricação foram estudadas e testadas, sempre com vista ao atendimento das especificações vigentes para o combustível regularmente fabricado para o reator IEA-R1.

O fluxograma do processo de fabricação de placas combustíveis adotado no CCN do IPEN-CNEN/SP está apresentado resumidamente no diagrama de blocos da figura 4.1. As etapas do processo de fabricação mais relevantes para este trabalho são a fabricação de briquetes, que inclui a homogeneização dos pós de material físsil com pó de alumínio e a compactação dos briquetes, e laminação das placas combustíveis, pois tais processos são bastante alterados devido ao

aumento da fração volumétrica da fase físsil da dispersão. Tais etapas estão indicadas em vermelho no fluxograma.

FIGURA 4.1 – Diagrama de blocos do processo de fabricação de placas combustíveis adotado no CCN do IPEN-CNEN/SP.

4.1 Matérias primas U_3Si_2 e U_3O_8

Os pós de compostos de urânio utilizados neste trabalho foram fabricados segundo os procedimentos usuais de fabricação do IPEN-CNEN/SP. Foi utilizado urânio natural durante o desenvolvimento experimental deste trabalho. O processo se inicia com a reconversão do UF_6 a uma solução hidrolisada de UO_2F_2 . A partir dessa solução, o processo de fabricação é diferente para as rotas de obtenção de U_3Si_2 e U_3O_8 .

A rota de fabricação do U_2Si_2 passa pela precipitação do UF_4 e sua redução a urânio metálico por magnesiotermy. Ao urânio metálico obtido é adicionado silício metálico por meio de fusão em forno de indução [52,55].

O pó de U_3O_8 utilizado foi obtido a partir do diuranato de amônio (DUA), precipitado com amônia a partir de solução aquosa de nitrato de urânio. As condições de preparação estão indicadas na figura 4.1.1.

FIGURA 4.1.1 – Diagrama de blocos do processo de obtenção do DUA.

Para a obtenção do U_3O_8 , o pó de DUA foi calcinado segundo os procedimentos usuais adotados no IPEN-CNEN/SP, ou seja, temperatura 600°C, por um período de 3 horas, suficiente para a completa transformação do DUA em

U_3O_8 . A calcinação do DUA foi realizada ao ar em um forno resistivo tipo caixa. O pó de DUA foi acondicionado em botes de inconel (ligas de níquel – cromo - ferro) de modo que se mantivesse uma camada uniforme de pó de altura constante. Os botes foram posicionados no forno na região de menor gradiente térmico (10°C). Ao final das 3 horas, os botes foram deixados no forno para que o resfriamento ocorresse de forma natural, obtendo-se o pó de U_3O_8 calcinado.

4.2 Obtenção dos pós de U_3Si_2 e U_3O_8

Para a obtenção do pó de U_3Si_2 , o lingote de U_3Si_2 obtido na fusão por indução foi moído manualmente em caixa de luvas com atmosfera inerte, de argônio, já que o U_3Si_2 é pirofórico. A moagem foi realizada com peneiramentos intermediários de forma a separarem-se duas frações granulométricas, entre 150 e $44\mu\text{m}$ e abaixo de $44\mu\text{m}$ (finos), como descrito no capítulo 3. A especificação permite a existência de, no máximo, 20% em peso de finos (partículas menores do que $44\mu\text{m}$) no lote de pó a ser usado na fabricação da placa combustível. O lote fabricado para uso neste trabalho foi caracterizado química e fisicamente para sua qualificação em relação à especificação vigente. Os resultados estão apresentados na tabela 4.2.1. A figura 4.2.1 apresenta uma micrografia eletrônica de varredura do pó de U_3Si_2 obtido.

FIGURA 4.2.1 – Micrografia eletrônica de varredura do pó de U_3Si_2 utilizado. Elétrons secundários.

TABELA 4.2.1 – Características do pó de U_3Si_2 utilizado neste trabalho.

Impurezas		
Elemento	Especificado (µg.g ⁻¹)	Resultado (µg.g ⁻¹)
Al	600	172
B	10	< 0,40
C	2000	385
Cd	10	< 0,1
Co	10	< 0,4
Cu	2000	31,4
Fe + Ni	1500	432
Zn	1000	12,3
Li	10	< 0,1
N	2500	7
O	7000	273
H	200	43,2
Outros Elementos		
Cr	-	60,6
Mn	-	74,5
Mg	-	5,67
Pb	-	6,5
Sn	-	149,5
V	-	< 0,10
Ba	-	< 0,20
Th	-	< 10
Ca	-	2
Mo	-	< 3
Individual	≤ 500	-
Total	≤ 2500	1678,87
Composição		
Elemento	Especificado (%)	Resultado (%)
U	não especificado	91,37
Si	7,4 – 7,9	7,81
Densidade		
Especificado (g/cm ³)		Resultado (g/cm ³)
> 11,7		12,0
Área de Superfície Específica		
Especificado (m ² /g)		Resultado (m ² /g)
< 0,15		0,024

O processo de obtenção do pó de U_3O_8 utilizado como combustível é diferente daquele utilizado na obtenção do pó de U_3Si_2 . Nesse caso não é necessária a etapa de obtenção de urânio metálico, bastando a oxidação do DUA para a obtenção do material de partida e um posterior processamento para a

obtenção do pó de U_3O_8 com características apropriadas para uso como combustível nuclear, a partir do pó de U_3O_8 calcinado.

O procedimento de fabricação de pó de U_3O_8 para uso como combustível nuclear foi desenvolvido no IPEN-CNEN/SP em 1989. Detalhes de fabricação desse pó podem ser obtidos na literatura [61,62]. Uma variante do método foi desenvolvida em 2000, partindo-se do tricarbonato de amônio e uranilo (TCAU) no lugar do DUA [63]. Contudo, esse método não foi implantado no IPEN-CNEN/SP devido à maior dificuldade de obtenção de TCAU em pequenas quantidades.

O pó de U_3O_8 calcinado foi granulado por meio de compactação e posterior trituração de pastilhas. As pastilhas foram compactadas em uma prensa hidráulica com uma matriz cilíndrica de 40,30mm de diâmetro do tipo flutuante. Utilizou-se uma pressão de 20ton, obtendo-se pastilhas com 50g. Após a compactação, as pastilhas foram trituradas manualmente utilizando-se um almofariz e um pistilo de porcelana para a desagregação. Intercaladamente fez-se um peneiramento manual para classificar os grânulos na faixa granulométrica 87 – 44 μm . Os grânulos foram, então, sinterizados. Na sinterização utilizou-se um forno tipo caixa de resistência de carvão de silício, tendo sido o pó previamente classificado acondicionado em botes planos de alumina, de base quadrada, e nivelado numa camada de altura máxima de 3,0 cm. A sinterização foi realizada a 1400°C durante 24 horas, e teve como finalidade aumentar a densidade do pó. Todas as condições de sinterização empregadas nesse trabalho, tais como, taxa de aquecimento, tempo de sinterização, temperatura no patamar e taxa de resfriamento, foram definidas de acordo com os procedimentos de fabricação usuais da produção do CCN do IPEN-CNEN/SP [64].

O material proveniente da sinterização foi desagregado manualmente e classificado, mediante peneiramento automático em lote de 100g por 60 minutos, com a finalidade de se separar o pó de U_3O_8 inferior a 44 μm e o compreendido entre 44 e 87 μm . O lote de U_3O_8 fabricado para uso neste trabalho foi caracterizado química e fisicamente para sua qualificação em relação à especificação vigente. Os resultados estão apresentados na tabela 4.2.2. A figura 4.2.2 apresenta uma micrografia eletrônica de varredura do pó de U_3O_8 obtido.

TABELA 4.2.2 – Características do pó de U_3O_8 utilizado neste trabalho.

Impurezas		
Elemento	Especificado (µg.g ⁻¹)	Resultado (µg.g ⁻¹)
Al	250	40,5
B	2	< 0,4
C	500	13,3
Ca	200	56,4
Mg	-	74,5
Cd	0,5	< 0,1
Cl	350	< 20
F	-	< 10
Cr	200	2,07
Co	10	< 0,4
Cu	250	12,9
Fe	250	64,5
Li	5	< 0,1
Mn	250	6,63
Mo	250	< 3
N	200	18
Ni	200	21,8
P	250	-
Pb	250	< 6
Si	250	27
Sn	250	17,5
Ta	250	< 0,4
Th	10	< 5
Ti	250	0,87
V	250	1,47
Zn	250	19,8
W	250	0,98
H	-	15,2
Dy	-	< 0,2
Eu	-	< 0,1
Gd	-	< 0,1
Sm	-	< 0,4
Equivalente B	< 4	1,6489
Total	≤ 1500	439,62
Composição		
Elemento	Especificado (%)	Resultado (%)
U total	> 84,5	84,47
Razão O/U	não especificado	2,65
Densidade		
Especificado (g/cm³)		Resultado (g/cm³)
> 8		8,31
Área de Superfície Específica		
Especificado (m²/g)		Resultado (m²/g)
< 0,1		0,005

FIGURA 4.2.2 – Micrografia eletrônica de varredura do pó de U_3O_8 obtido. Elétrons secundários.

4.3 Pó de alumínio

O pó de alumínio utilizado na preparação das dispersões é proveniente da ALCOA com identificação ALCOA 1409. Esse pó foi peneirado em peneira de malha 325 mesh (abertura $44\mu m$) e o pó passante ($< 44\mu m$) foi utilizado como material da matriz das dispersões. O lote fabricado para uso neste trabalho foi caracterizado química e fisicamente para sua qualificação em relação à especificação vigente. Os resultados estão apresentados na tabela 4.3.1. A figura 4.3.1 apresenta uma micrografia eletrônica de varredura do pó de alumínio utilizado neste trabalho.

FIGURA 4.3.1 – Micrografia eletrônica de varredura do pó de alumínio utilizado. Elétrons secundários.

TABELA 4.3.1 – Características do pó de alumínio utilizado neste trabalho.

Impurezas		
Elemento	Especificado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)	Resultado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)
B	< 10	< 10
Cd	< 10	10
Co	< 10	10
Cu	< 500	40
Fe	9500	1100
Si		
Mn	< 500	30
Zn	< 1000	80
Li	< 10	< 10
Outros	< 1500	1060
Total	< 10000	2370
Teor de Al_2O_3		
Especificado (%)		Resultado (%)
< 0,7		< 0,7
Materiais Voláteis		
Especificado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)		Resultado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)
< 1000		32
Carbono		
Especificado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)		Resultado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)
< 2000		40
Alumínio		Total
Especificado (%)		Resultado (%)
> 99		99,86

4.4 Fabricação dos briquetes de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ e $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$

A mistura dos pós de U_3Si_2 com Al e U_3O_8 com pó de Al foi efetuada no homogeneizador do tipo “roda gigante” marca Renard utilizado na fabricação rotineira de briquetes. As condições de homogeneização foram mantidas segundo o procedimento tradicional de fabricação do combustível do CCN do IPEN-CNEN/SP, ou seja, rotação de 36 rpm por 120 minutos e ângulo de 45° .

Os pós de U_3O_8 e U_3Si_2 foram pesados de forma a obter-se 45% em volume na dispersão. A massa dos compostos de urânio foi calculada com base no volume do briquete, cujas dimensões são especificadas em 59,2mm de largura, 104,3mm de comprimento e 4,3mm de espessura. Conhecendo-se as

densidades dos pós de U_3Si_2 e U_3O_8 e do pó de alumínio e fixando-se uma porosidade residual de 5% em volume para o briquete U_3Si_2 -Al e de 7% em volume para o briquete U_3O_8 -Al, as quais são usuais no caso do combustível de baixa concentração de urânio, foram calculadas as massas necessárias dos pós de U_3Si_2 e U_3O_8 e do pó de alumínio. O pó de alumínio previamente seco em estufa a 100°C por 60 minutos foi colocado no interior de uma caixa de luvas, onde já se encontravam os pós de U_3O_8 e U_3Si_2 . Para a pesagem das cargas de compactação foi utilizada uma balança da marca Marte de sensibilidade 0,01 g. As massas calculadas dos pós de U_3Si_2 e U_3O_8 e do pó de alumínio foram pesadas e acondicionadas nos frascos de vidro do homogeneizador.

Uma vez homogeneizada, as cargas de compactação foram cuidadosamente despejadas na cavidade de uma matriz flutuante e compactadas hidráulicamente, originando-se assim o briquete. Para alimentação da cavidade da matriz, o punção inferior é introduzido 10 mm no interior da cavidade e o pó existente no recipiente de vidro do homogeneizador é despejado. O punção inferior é, então, introduzido até que o pó da mistura da dispersão aflore na superfície superior da matriz de compactação. O pó é, então, aplainado de modo a distribuir uniformemente a massa pela área da cavidade da matriz. Isso é necessário para garantir uma boa homogeneidade na distribuição de urânio no briquete e na sua porosidade residual. Dessa forma, foram compactados 4 briquetes U_3Si_2 -Al e 4 briquetes U_3O_8 -Al.

Num primeiro momento, foi mantida a pressão de compactação utilizada para a fabricação do combustível de baixa concentração de urânio ($3,0 \text{ gU/cm}^3$), de $4,35 \text{ tf/cm}^2$. Um briquete de cada dispersão foi compactado e a sua espessura avaliada. Com base nas espessuras obtidas e na experiência adquirida na fabricação dos briquetes de baixa concentração de urânio, a pressão de compactação foi ajustada empiricamente para obterem-se briquetes com espessura dentro da especificação, de 4,10 a 4,30 mm. Duas tentativas foram suficientes para ajustarem-se as pressões de compactação, que foram de $5,0 \text{ tf/cm}^2$ no caso dos briquetes U_3Si_2 -Al e de $5,5 \text{ tf/cm}^2$ no caso dos briquetes U_3O_8 -Al. Devido à grande massa dos briquetes de alta concentração de urânio, ao redor de 150 g, não foi possível construir curvas de compactação, uma vez que seria necessária a produção de grandes quantidades dos pós de U_3Si_2 e U_3O_8 (mínimo 3kg). A porosidade nos briquetes ficou pouco acima daquela obtida no

caso de briquetes com baixa concentração de urânio, tipicamente ao redor de 8,0% em volume no caso do U_3O_8 e 5,0% em volume no caso do U_3Si_2 .

Os briquetes de alta concentração obtidos, de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ e de $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$, foram desgaseificados com a finalidade de retirar eventuais gases adsorvidos e lubrificantes utilizados na compactação do briquete. Essa operação foi realizada em uma retorta a 440°C por 3 horas no caso do $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ e a 250°C por 1 hora no caso do $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$, sob vácuo dinâmico de 10^{-3} torr. As condições de desgaseificação do briquete $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ são menos severas devido à forte tendência do U_3Si_2 em oxidar-se. Uma vez desgaseificados, os briquetes foram embalados em papel alumínio e armazenados em dessecador até que fossem utilizados para a fabricação das placas combustíveis. O dessecador foi colocado em uma estufa a vácuo de 10^{-1} torr por 24 horas [65].

4.5 Fabricação das placas combustíveis de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ e $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$

As chapas de moldura e revestimentos, componentes do conjunto a ser laminado, foram limpas quimicamente por meio de um tratamento superficial que consiste em desengraxamento com acetona, decapagem em solução de hidróxido de sódio com 6 a 10% em peso de NaOH por 60°C por 1 minuto, lavagem em H_2O corrente por 1 minuto, neutralização em solução de ácido nítrico com 30 a 50% em peso de HNO_3 por 1 minuto, lavagem em água corrente por 1 minuto, lavagem em água desmineralizada e secagem com ar quente [66]. Foi utilizada a liga de alumínio 6061.

A moldura foi aquecida à 440°C por 15 minutos para a montagem do briquete por interferência. O briquete foi alojado na cavidade da moldura, sendo, posteriormente, montadas as chapas de revestimento por baixo e por cima da moldura contendo o briquete alojado.

O conjunto “sanduíche” (revestimento / moldura / revestimento) foi soldado por meio do processo TIG. Nos conjuntos, os 4 cantos das extremidades, com aproximadamente 10mm, ficaram livres de solda para que o ar presente em seu interior pudesse escapar nos primeiros passes de laminação.

Após a soldagem, os conjuntos foram aquecidos em forno resistivo tipo caixa a $440 \pm 10^\circ\text{C}$ durante 60 minutos. Após o tratamento térmico inicial, os

conjuntos foram laminados a quente em 9 passes, com reaquecimento por 15 minutos entre passes (440°C). O esquema de passes de laminação utilizado foi o mesmo utilizado rotineiramente na fabricação de placas combustíveis de baixa concentração de urânio, fabricadas regularmente pelo CCN do IPEN-CNEN/SP. A redução em espessura nos dois primeiros passes foi de 25% e a redução nos demais passes foi de 15% [67]. A tabela 4.5.1 ilustra o programa típico de passes de laminação utilizado neste trabalho.

TABELA 4.5.1 – Projeto típico de passes de laminação adotados na fabricação de placas combustíveis para o reator IEA-R1.

	Passe	Espessura Projetada (mm)	Redução Projetada (%)	Redução Acumulada (%)
quente	0	9,24	0	0
	1	6,93	25	25,0
	2	5,20	25	43,7
	3	4,42	15	52,2
	4	3,76	15	59,3
	5	3,20	15	65,4
	6	2,72	15	70,6
	7	2,31	15	75,0
	8	1,96	15	78,8
	9	1,67	15	81,9
frio	10	1,55	7	83,2
	11	1,52	2	83,5

Após o último passe de laminação a quente foi realizado o ensaio de empolamento, que consiste no aquecimento das placas laminadas a 440°C durante uma hora, seguido de resfriamento ao ar. O objetivo do ensaio é verificar a ocorrência de eventuais bolhas na região do núcleo (“blisters”), as quais são indicativas falhas no caldeamento dos componentes do conjunto moldura, núcleo e revestimentos. Após o ensaio de empolamento, realizou-se uma inspeção visual para verificar a ocorrências de bolhas, seguido de laminação a frio com uma redução típica de 9% em dois passes de laminação. O objetivo da laminação a frio é conferir às placas combustíveis a resistência mecânica necessária, obtida pelo encruamento, além de se atingir com precisão a espessura final da placa combustível e controlar o comprimento final do núcleo da placa, especificado

entre 590 e 610mm. O laminador utilizado foi da marca Stanat-Mann, com precisão de 0,025mm (0,001de polegada).

Após a laminação a frio, as placas combustíveis foram pré-cortadas em uma guilhotina. Este processo teve por finalidade diminuir as dimensões da placa bruta obtida após a laminação para facilitar as etapas de radiografia, traçagem, aplainamento, determinação de porosidade do núcleo e corte final.

Após o pré-corte, nos pedaços das laterais e pontas retirados da placa combustível, foi realizado o teste de dobramento (“bending test”) para verificação da qualidade da união metalúrgica entre os componentes originais do conjunto revestimento superior/moldura/revestimento inferior que foi laminado.

Como as placas combustíveis apresentam suas superfícies onduladas após a laminação é necessário a realização da operação de aplainamento. Isto é realizado em uma máquina denominada “aplainador de rolos”, composta por cilindros superiores e inferiores, onde as distâncias dos cilindros podem ser ajustadas com o auxílio de relógios comparadores.

As placas pré-cortadas foram radiografadas individualmente num equipamento de radiografia industrial da marca Philips, modelo MGC-30. Devido à maior concentração de urânio presente no núcleo das placas combustíveis, as condições de exposição radiográficas foram ajustadas de modo a obter-se após as radiografias a mesma densidade óptica típica das radiografias obtidas das placas combustíveis de baixa concentração de urânio fabricadas regularmente pelo CCN do IPEN-CNEN/SP. No processo usual de fabricação são feitas três radiografias. A primeira é denominada radiografia de localização, exposta por 55 segundos com tensão de 60 kV e corrente de 4 mA (feixe de raios X), utilizada para localizar o núcleo da placa combustível na placa pré-cortada e traçar as linhas que irão orientar o corte final da placa combustível. A segunda, denominada radiografia de defeitos, é obtida por exposição por 4 minutos e 20 segundos com tensão de 70 kV e corrente de 14 mA, é utilizada para examinar o núcleo da placa combustível quanto à presença de defeitos estruturais (trincas e pontos quentes) e quanto à homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo. A terceira e última radiografia, exposta por 55 segundos com tensão de 60 kV e corrente de 4 mA, é denominada radiografia final e é utilizada para a realização da metrologia interna da placa combustível, uma vez que são especificados o comprimento e largura do núcleo e a sua centralização na placa combustível. A

tabela 4.5.2 apresenta as condições usadas nas radiografias das placas combustíveis com alta concentração de urânio.

TABELA 4.5.2 – Condições de exposição para obtenção das radiografias das placas combustíveis com alta concentração de urânio. Utilizadas no desenvolvimento deste trabalho.

Amostra	Matéria prima	Tempo de exposição	Tensão (kV)	Corrente (mA)
radiografia localização	U_3O_8	55"	50	4
	U_3Si_2	55"	50	4
radiografia defeito	U_3O_8	1'10"	100	5
	U_3Si_2	2'15"	90	14
radiografia final	U_3O_8	55"	50	4
	U_3Si_2	55"	50	4

A porosidade de todas as placas combustíveis foi determinada utilizando-se o método hidrostático (princípio de Arquimedes). A microestrutura do núcleo das placas combustíveis foi caracterizada por meio de microscopia óptica, assim como foram determinadas as espessuras dos núcleos e dos revestimentos. As amostras foram preparadas utilizando-se técnicas convencionais de metalografia, envolvendo embutimento, lixamento e polimento. De cada lote de 4 placas laminadas, uma foi cortada para determinação das espessuras dos revestimentos e do núcleo por meio de metalografia.

Seguindo o mesmo procedimento adotado pelo CCN do IPEN-CNEN/SP na produção rotineira de placas combustíveis, foram retiradas de cada placa sete amostras das regiões de interesse, conforme ilustra a figura 4.5.1. As amostras 1, 3, 11, 13 e 9 são longitudinais, na direção da laminação, nas extremidades do núcleo e na sua zona central. As amostras da extremidade do núcleo (1, 3, 11 e 13) são utilizadas para medição da espessura do revestimento na zona de espessamento do núcleo ("osso de cachorro") e para caracterização do defeito terminal ("rabo de peixe"). Esses são defeitos terminais característicos do processo de fabricação de placas combustíveis. As amostras 5 e 7 são transversais e, em conjunto com a amostra 9, fornecem informações

microestruturais do núcleo na região central da placa combustível, ou região livre de defeitos. O conjunto das informações obtidas por metalografia dessas amostras é um dos principais requisitos para qualificação das placas combustíveis.

FIGURA 4.5.1 – Plano de corte de uma placa combustível para avaliação da microestrutura e dimensões do núcleo de dispersão.

Para a preparação das amostras para metalografia, estas foram embutidas em resina de cura a frio, lixadas com lixa de carbetto de silício de grana entre 220 a 4000 grit, e, em seguida, polidas em sílica coloidal de $0,2\mu\text{m}$, lavadas em água corrente e posteriormente secas. Para a caracterização metalográfica, as amostras foram estudadas num microscópio óptico marca Olympus equipado com um analisador de imagens marca Buehler, modelo Omnimet Interprise.

As imagens de microscopia eletrônica de varredura foram obtidas utilizando-se um microscópio Philips modelo XL30, acoplado a um equipamento de análise de micro-regiões por energia dispersiva (EDS) da marca EDAX modelo 9800 Plus.

5 RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste trabalho, numa primeira fase, foram fabricadas oito placas combustíveis com alta concentração de urânio a base de dispersões $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ e $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$, com densidades de urânio de 4,8 e 3,2 gU/cm^3 , respectivamente, sendo quatro de cada tipo. Os problemas de fabricação ocasionados pelo alto carregamento da fase físsil foram, então, identificados e estudados. Uma vez conhecido os problemas, numa segunda fase do trabalho, ações corretivas foram implantadas e testadas, definindo-se novos procedimentos de fabricação para a produção do novo combustível. Os resultados apresentados na primeira fase indicaram o caminho para, na segunda fase, definir-se os novos procedimentos de fabricação. Numa terceira fase forem fabricadas placas combustíveis enriquecidas com 4,8 gU/cm^3 para a realização de testes de irradiação. A seguir apresentam-se os resultados obtidos na diferentes fases do trabalho.

5.1 Resultados da primeira fase

Nos briquetes com alta concentração de urânio constatou-se um alto grau de segregação de material físsil na face inferior do briquete. Tal segregação é decorrente da maior densidade das partículas de material físsil quando comparada com a densidade das partículas de alumínio no pó homogeneizado. A segregação mostrou-se muito mais severa no caso do U_3O_8 , quando comparada à observada no caso do U_3Si_2 . Essa segregação ocorreu durante a alimentação da matriz de compactação, provavelmente quando o pó homogeneizado contido no frasco de vidro foi despejado na cavidade da matriz. Esse problema está ilustrado na figura 5.1.1, que apresenta fotografias das faces superior e inferior do briquete produzido, para ambos os casos, $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ e $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$. As macrografias da figura 5.1.2 também ilustram esse problema.

A tabela 5.1.1 apresenta as principais características dos briquetes de alta concentração de urânio fabricados. A amplitude máxima recomendada da variação de espessura dos briquetes é de 200 μm , a qual foi obtida. Uma

amplitude superior à recomendada causa defeitos nas laterais do núcleo laminado, na forma de trincas.

FIGURA 5.1.1 – Fotografias ilustrando segregação de U_3O_8 (A) e de U_3Si_2 (B) na face inferior do briquete.

Figura 5.1.2 – Macrografias ilustrando segregação de U_3O_8 (A) e de U_3Si_2 (B) na face inferior do briquete.

Como pode também ser observado na tabela 5.1.1, os valores da porosidade nos briquetes de alta concentração de urânio a base de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ (45% em volume da fase físsil) ficaram acima dos usualmente obtidos nos briquetes de produção de baixa concentração de urânio (27% em volume da fase físsil) que é de 4,6% de porosidade, o que era esperado devido ao maior volume ocupado pelo material físsil não deformável. Contudo, esse ligeiro aumento na porosidade dos briquetes não foi considerado prejudicial ao processo de laminação e, uma

vez que a porosidade não é especificada, os briquetes foram laminados. Além disso, as densidades de urânio almejadas foram obtidas. No caso dos briquetes U_3O_8 -Al, as densidades de urânio ficaram ligeiramente abaixo do valor almejado, de $3,2 \text{ gU/cm}^3$, devido à maior porosidade dos briquetes quando comparado ao valor usual obtido nos briquetes de produção de baixa concentração de urânio, de 7,5% em volume.

TABELA 5.1.1 - Características dos briquetes de alta concentração de urânio fabricados na primeira fase.

Briquete	Massa (g)	Larg. (mm)	Comp. (mm)	Espessura (mm)		Amplitude (μm)	Vol (cm^3)	Porosidade (%vol)	Dens. U (gU/cm^3)
				min	max				
U_3Si_2 1	168,80	59,19	104,30	4,02	4,15	130	25,22	6,42	4,85
U_3Si_2 2	167,13	59,17	104,31	4,03	4,15	120	25,24	6,56	4,82
U_3Si_2 3	167,13	59,19	104,29	4,07	4,15	80	25,37	6,97	4,83
U_3Si_2 4	167,14	59,23	104,33	4,08	4,13	50	25,37	7,11	4,83
U_3O_8 1	128,29	59,17	104,29	4,15	4,27	120	25,98	9,35	3,18
U_3O_8 2	129,27	59,17	104,29	4,13	4,25	120	25,86	9,35	3,20
U_3O_8 3	129,33	59,18	104,29	4,18	4,24	60	25,98	9,35	3,18
U_3O_8 4	129,00	59,18	104,29	4,12	4,31	190	26,01	9,53	3,17

A deformação dos núcleos das placas combustíveis laminadas a partir dos briquetes apresentou um comportamento muito similar ao caso do combustível tradicional fabricado pelo CCN do IPEN-CNEN/SP. O alargamento e alongamento durante a laminação foram idênticos aos usualmente observados e nenhum ajuste nos processos de montagem dos conjuntos e laminação foi necessário. A tabela 5.1.2 apresenta as características dimensionais dos núcleos das placas combustíveis com alta concentração de urânio fabricadas. Observa-se que os valores de comprimento e largura do núcleo atendem à especificação vigente (58,9mm a 59,3mm de largura e 104,00mm a 104,40mm de comprimento), adequando-se perfeitamente à espessura da placa combustível [68]. Portanto, a liberdade de variação da espessura da placa combustível, mantendo-se controladas as características dimensionais do núcleo, não foi alterada pelo fato

das placas combustíveis conterem maior concentração de urânio em seu núcleo, o que é muito importante em termos de fabricação. Em outras palavras, a operação de laminação não apresentou uma maior dificuldade pelo fato das placas combustíveis serem de alta concentração de urânio.

TABELA 5.1.2 - Características dimensionais dos núcleos das placas combustíveis de alta concentração de urânio fabricadas na primeira fase.

Placa	Espessura da Placa (mm)	Comprimento do Núcleo (mm)	Largura do Núcleo (mm)	Volume do Núcleo (cm ³)	Porosidade do Núcleo (%vol)	Densidade de Urânio (gU/ cm ³)
U ₃ Si ₂ -1	1,52	603,0	61,20	25,76	9,33	4,75
U ₃ Si ₂ -2	1,53	604,0	61,24	25,71	9,34	4,78
U ₃ Si ₂ -3	1,51	601,0	61,12	25,75	9,48	4,76
U ₃ Si ₂ -4	1,52	601,0	61,31	25,72	9,34	4,77
U ₃ O ₈ -1	1,53	600,5	61,51	27,19	14,39	3,05
U ₃ O ₈ -2	1,54	595,0	61,79	27,14	14,39	3,05
U ₃ O ₈ -3	1,53	594,0	61,73	27,19	14,35	3,04
U ₃ O ₈ -4	1,52	605,0	61,97	27,07	14,21	3,05

Observa-se também na tabela 5.1.2 que os valores obtidos da densidade de urânio para o combustível de U₃O₈-Al estão sensivelmente abaixo do valor almejado, de 3,2gU/cm³. Isso é decorrente da alta porosidade observada no núcleo das placas laminadas, consideravelmente superiores ao valor típico observado no combustível U₃O₈-Al de baixa concentração, ao redor de 9% em volume. Essa alta porosidade indica uma maior fragmentação das partículas de U₃O₈. Essa maior fragmentação é esperada, pois com o aumento da fração volumétrica ocorre uma maior interação entre as partículas do U₃O₈ durante a deformação do núcleo, quando as partículas se fragmentam mutuamente. Realmente, dados obtidos na literatura mostram que a porosidade do núcleo U₃O₈-Al aumenta de 7% para 11% em volume quando a concentração de U₃O₈ aumenta de 65% em peso para 75% em peso [69], concentrações que equivalem a frações volumétricas de U₃O₈ de 40% e 45%, respectivamente.

O mesmo ocorre no caso do combustível de alta concentração de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$. Esse comportamento do combustível $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ já foi estudado [69], verificando-se um aumento da porosidade no núcleo da placa laminada com o aumento da fração volumétrica do U_3Si_2 . A porosidade se eleva de 7% em volume para 10% com o aumento da fração volumétrica de 40% em volume para 45% em volume. No caso do U_3Si_2 , a densidade de urânio almejada foi atingida, uma vez que a porosidade dos núcleos das placas combustíveis ficou próxima do valor típico obtido nos núcleos das placas de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com baixa concentração de urânio, de 8% em volume.

Observou-se falha do caldeamento entre o núcleo de $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ e o revestimento, no caso das placas combustíveis a base de $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ com alta concentração de urânio. A figura 5.1.3 ilustra esse problema. Nas micrografias ópticas nota-se a presença de um vazio contínuo entre o núcleo e o revestimento. Essa falha no caldeamento entre o núcleo $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ e o revestimento foi observada apenas em uma das interfaces núcleo/revestimento, correspondente à face inferior do briquete, exatamente a face onde também se observou a segregação de pó ilustrada nas figuras 5.1.1 e 5.1.2. É muito provável que esse problema foi causado pela grave segregação de pó de U_3O_8 ocorrida durante a alimentação da matriz de compactação, como discutido anteriormente. Na face onde ocorreu a segregação de partículas de U_3O_8 , a fração volumétrica de alumínio diminuiu sensivelmente.

A ligação metalúrgica entre o núcleo de dispersão e o revestimento é obtida pelo caldeamento da matriz de alumínio com a placa de alumínio do revestimento. A diminuição localizada da fração volumétrica da matriz de alumínio no núcleo exatamente na região da interface núcleo/revestimento comprometeu a qualidade da união metalúrgica, produzindo o vazio observado nas micrografias da figura 5.1.3. Esse tipo de falha é motivo de rejeição de todo o lote de fabricação de placas combustíveis, pois compromete a estabilidade dimensional do combustível e a transferência de calor, gerando uma bolha que diminui o canal de refrigeração entre as placas combustíveis, comprometendo o desempenho termo-hidráulico do elemento combustível e levando inevitavelmente à falha durante a operação.

Este tipo de problema não foi observado no combustível de dispersão $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$, provavelmente devido ao menor grau de segregação observado nesse caso, como ilustram as figuras 5.1.1 e 5.1.2.

FIGURA 5.1.3 – Micrografias ópticas ilustrando falha de caldeamento entre núcleo e revestimento, causada pelo acúmulo de partículas de U_3O_8 numa das faces do briquete $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$.

A espessura dos revestimentos é uma das especificações mais importantes da placa combustível, pois é essa camada de revestimento de alumínio que impede a exposição do núcleo ao ambiente do reator. O espessamento do núcleo da placa combustível nas suas extremidades, o que resulta na diminuição da espessura do revestimento nessa região, é um fenômeno causado pela diferença entre as propriedades mecânicas do núcleo e dos revestimentos. Esse defeito é conhecido como “osso de cachorro”, ou “dog-bonning” em inglês, sendo inevitável e um dos mais importantes no que se refere à qualificação de uma placa combustível, já que a espessura mínima do revestimento nessa zona deve atender à especificação vigente.

A tabela 5.1.3 apresenta os resultados obtidos na medição das espessuras do núcleo e revestimentos das placas combustíveis fabricadas na primeira fase do trabalho. A especificação divide a região do núcleo em duas zonas. A especificação para a Zona 2, também chamada zona de defeitos terminais, que tem extensão de 50mm a partir do final do núcleo, permite uma espessura de revestimento mínima de 0,25mm e espessura máxima do núcleo de 1,07mm. Na Zona 1, ou zona central, a especificação define como espessura mínima para o revestimento o valor de 0,30mm e como espessura do núcleo a faixa de $0,76 \pm 0,05$ mm [70].

TABELA 5.1.3 - Valores das espessuras dos revestimentos e do núcleo, obtidos na primeira fase do trabalho.

	Zona 1		Zona 2	
	Núcleo (mm) min-max	Revestimento (mm) min-max	Núcleo (mm) min-max	Revestimento (mm) min-max
U ₃ Si ₂ 1	0,83-0,87	0,31-0,33	0,82-0,93	0,28-0,37
U ₃ O ₈ 3	0,78-0,79	0,37-0,38	0,84-0,89	0,31-0,30

Observa-se que as placas combustíveis de alta concentração a base da dispersão U₃O₈-Al atenderam com folga às especificações de espessuras dos revestimentos e do núcleo.

Contudo, as placas combustíveis a base da dispersão U_3Si_2 -Al apresentaram na Zona 1 o valor mínimo da espessura do núcleo está acima do valor máximo especificado, de 0,81mm. Além disso, os valores da espessura dos revestimentos, apesar de estarem dentro do especificado (mínimo de 0,30mm), estão muito menores do que os valores típicos de produção observados no combustível tradicional fabricado no CCN do IPEN-CNEN/SP, entre 0,38 e 0,40mm. A causa para esse comportamento está relacionada à penetração de partículas de U_3Si_2 no revestimento. Nos pontos onde as partículas de U_3Si_2 penetram no revestimento, a espessura do revestimento diminui ao mesmo tempo em que a espessura do núcleo aumenta, o que explica os valores apresentados na

tabela 5.1.3. Essa penetração ocorre devido ao aumento da fração volumétrica de U_3Si_2 , que dificulta a acomodação das partículas de U_3Si_2 no núcleo (principalmente as de maior dimensão) devido à pouca matriz de alumínio, forçando sua penetração no revestimento. A figura 5.1.4 ilustra esse efeito.

As radiografias de defeitos mostraram que as placas combustíveis de alta concentração a base de U_3Si_2 -Al apresentaram uma má distribuição de material físsil, nitidamente abaixo do padrão de homogeneidade de distribuição de urânio obtido na fabricação do combustível regular. As manchas escuras são regiões com alta concentração de alumínio e as manchas claras são regiões com alta concentração de urânio, seja U_3Si_2 ou U_3O_8 . Esse tipo de problema ocorreu com muito menor intensidade nas placas combustíveis de alta concentração a base de U_3O_8 . Nesse caso podem-se perceber poucas regiões um pouco mais escuras, porém a aparência geral é muito próxima da aparência da radiografia padrão. A figura 5.1.5 apresenta fotografias das radiografias obtidas.

FIGURA 5.1.4 – Micrografias ópticas ilustrando partículas de U_3Si_2 penetrando o revestimento, diminuindo sua espessura efetiva.

(A)

(B)

(C)

FIGURA 5.1.5 – Radiografias ilustrando a homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo de placas combustíveis. A - alta concentração U_3Si_2 -Al. B - alta concentração U_3O_8 -Al. C - padrão mínimo de aceitabilidade.

Para ambos os materiais estudados, o U_3Si_2 e o U_3O_8 , a elevação da concentração conduziu a distribuições heterogêneas de urânio no núcleo das placas combustíveis, em maior grau para o caso do U_3Si_2 . As radiografias mostraram que a homogeneidade da distribuição de material físsil no núcleo da placa combustível acabada não atingiu o nível mínimo necessário para qualificar o combustível. Para qualificação da placa combustível, o procedimento de fabricação atual utiliza uma inspeção visual na radiografia, comparando-se com uma radiografia padrão. Essa radiografia padrão foi escolhida como a visualmente mais homogênea em termos de distribuição de urânio, obtida a partir de placas combustíveis dos 10 primeiros elementos combustíveis irradiados no núcleo do reator, atingindo queima média de até 35% com ótimo desempenho, retirados do caroço do reator IEA-R1 até fevereiro de 1999.

Essa má distribuição de urânio no núcleo da placa combustível também está relacionada à grande tendência de segregação dos pós de U_3Si_2 e U_3O_8 na mistura com pó de alumínio. O aumento da fração volumétrica desses pós de alta densidade ocasionou esse tipo de defeito, principalmente no caso do U_3Si_2 , que é mais denso do que o pó de U_3O_8 . Essa segregação provavelmente está ocorrendo durante a alimentação das misturas de pós na cavidade da matriz de compactação. O procedimento atual prevê a alimentação numa só etapa, despejando-se manualmente todo o conteúdo do frasco contendo a mistura de pós, uma vez retirado do homogeneizador.

A figura 5.1.6 apresenta micrografias ópticas ilustrando a aparência geral da dispersão U_3Si_2 -Al com $4,8gU/cm^3$. Uma boa dispersão ocorre quando as partículas de material físsil estão as mais isoladas possíveis, ou seja, com uma matriz de alumínio contínua ao redor das partículas isoladas, aprisionando os gases de fissão e conferindo resistência mecânica ao núcleo da placa combustível. No caso da dispersão U_3Si_2 -Al a aparência da microestrutura pode ser considerada satisfatória, com base nas premissas teóricas de uma dispersão ideal. Essa análise é subjetiva, uma vez que não existem especificações para aspectos microestruturais do núcleo da placa combustível. Nesse caso, prevalecem a experiência e o bom senso de cada fabricante, apoiados em testes de irradiação.

(A)

(B)

FIGURA 5.1.6 – Micrografias ópticas ilustrando a microestrutura do núcleo de placas combustíveis de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com $4,8\text{gU/cm}^3$. A – corte transversal. B – corte longitudinal.

Por outro lado, no caso da microestrutura das placas combustíveis com alta concentração de U_3O_8 , verificou-se que muitas partículas se tocam, com porosidade entre elas. A quantidade de poros também aparenta ser, visivelmente, muito elevada. Os valores de porosidade determinados pelo método hidrostático, apresentados na tabela 5.1.2 confirmam essa observação. Isso é causado pela fragmentação excessiva das partículas de U_3O_8 durante a laminação. Nas microestruturas dos cortes longitudinais, percebe-se claramente a fragmentação com alinhamento dos fragmentos na direção da laminação. Durante a fragmentação, poros são formados e alongados na direção da laminação, apresentando-se como “canais”. Apesar de não existirem requisitos quantitativos para desqualificar esse tipo de microestrutura, percebe-se que a aparência microestrutural dos núcleos U_3O_8 -Al com alta concentração de U_3O_8 afasta-se dos requisitos teóricos de uma boa dispersão, diferentemente do caso da dispersão U_3Si_2 -Al. Essa diferença microestrutural com relação à dispersão U_3Si_2 -Al é devida à maior resistência à fragmentação das partículas de U_3Si_2 , quando comparada à resistência à fragmentação das partículas de U_3O_8 . A figura 5.1.7 apresenta micrografias ópticas ilustrando a aparência geral da dispersão U_3O_8 -Al com $3,2gU/cm^3$.

FIGURA 5.1.7 – Micrografias ópticas ilustrando a microestrutura do núcleo de placas combustíveis de $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ com $3,2 \text{ gU/cm}^3$. A – corte longitudinal. B – corte transversal.

Além do espessamento do núcleo (dog-boning), existem outros dois defeitos importantes característicos do final do núcleo, também chamados defeitos terminais. O primeiro é conhecido “rabo de andorinha” e está relacionado à forma do final do núcleo da placa combustível. Este defeito não está especificado, sendo a única exigência que ele não ultrapasse a zona de defeitos, ou Zona 2, de comprimento 50mm. A geometria desse tipo de defeito foi considerada normal para as placas de alta concentração de urânio fabricadas, seja a base de U_3Si_2 ou U_3O_8 . A figura 5.1.8 ilustra a aparência de defeitos terminais obtidos neste trabalho, podendo ser considerados “típicos” com relação

às placas combustíveis tradicionais fabricadas pelo CCN do IPEN-CNEN/SP, ou mesmo típicos desse tipo de processo de fabricação.

FIGURA 5.1.8 – Micrografias ópticas ilustrando defeitos típicos de final de núcleo nas placas combustíveis com alta concentração de urânio. A - $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ com $3,2\text{gU/cm}^3$. B - $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com $4,8\text{gU/cm}^3$.

O segundo defeito refere-se à presença de partículas combustíveis fora da zona do núcleo, ou seja, após o término do núcleo não é admissível a presença de partículas físséis, sejam de U_3Si_2 ou U_3O_8 . Esse tipo de defeito é inspecionado a partir da radiografia. Não foram observadas partículas fora do núcleo em nenhuma das placas de alta concentração fabricadas.

Com base nos resultados obtidos na primeira etapa do trabalho, conclui-se que as dificuldades encontradas na fabricação de placas combustíveis com alta concentração de urânio são:

- 1) segregação de partículas de U_3O_8 e U_3Si_2 na face inferior do briquete, severa no caso do U_3O_8 . Isso conduziu a grave falha no caldeamento entre o núcleo U_3O_8 -Al e o revestimento de alumínio;
- 2) penetração de partículas de U_3Si_2 no revestimento da placa combustível, diminuindo sua espessura efetiva e aumentando a espessura do núcleo;
- 3) falta de homogeneidade na distribuição de urânio nas placas laminadas com alta concentração de urânio, em ambos os casos, U_3Si_2 e U_3O_8 , sendo mais severa no caso do U_3Si_2 ;
- 4) qualidade discutível da dispersão U_3O_8 -Al em termos das premissas de uma dispersão ideal, ou seja, partículas físeis isoladas e rodeadas por matriz contínua de alumínio, com presença de alta porosidade no núcleo, acima do padrão internacionalmente usado.

Na segunda fase do trabalho, cujos resultados estão apresentados e discutidos no próximo item, foram modificados materiais e métodos de fabricação buscando-se ultrapassar essas dificuldades.

5.2 Resultados da segunda fase

Com as conclusões da primeira fase deste estudo, conhecendo-se as dificuldades encontradas na fabricação de placas combustíveis com alta concentração de urânio, nesta segunda fase de desenvolvimento foram propostas alterações nos procedimentos de fabricação buscando-se corrigir os problemas observados.

Na primeira fase do trabalho, ficou evidenciado que a falta de homogeneidade na mistura dos pós de U_3Si_2 e U_3O_8 com o pó de alumínio foi a responsável pelo mau caldeamento entre o núcleo U_3O_8 -Al e o revestimento,

devido ao acúmulo de partículas de U_3O_8 em uma das faces do briquete, e pela má homogeneidade na distribuição de urânio no núcleo da placa combustível, detectada nas radiografias de ambas as dispersões, sendo o problema mais acentuado para a dispersão com alta concentração de U_3Si_2 . Também ficou evidenciado que isso ocorre durante a alimentação da matriz de compactação. Numa tentativa de solucionar estes problemas, a granulometria do pó de alumínio utilizado foi modificada, utilizando-se um pó mais fino. Além disso, foi efetuada uma mudança no procedimento de alimentação da matriz de compactação.

O problema de segregação dos constituintes da dispersão na operação de compactação é conhecido dos fabricantes desse tipo de combustível. Isso é causado pela grande diferença entre as densidades dos pós de alumínio e dos pós de compostos de urânio utilizados como material físsil, os quais possuem alta densidade. Segundo a experiência prática, esse problema pode ser controlado aumentando-se a rugosidade superficial das partículas e diminuindo-se o seu tamanho médio. Segundo o atual procedimento de fabricação, as únicas operações envolvendo a preparação do pó de alumínio são a sua secagem e classificação em tamanho de partículas menor do que $44\mu m$, porém, essa classificação nada informa com relação à distribuição do tamanho de partículas. A primeira modificação proposta nesta segunda fase do trabalho foi a diminuição do tamanho das partículas do pó de alumínio utilizando o pó ALCOA 1409/A (tabela 5.2.1 e figura 5.2.1).

A figura 5.2.1 apresenta as distribuições granulométricas do pó de alumínio utilizado na primeira fase, quando o problema de segregação foi identificado, e do pó de alumínio mais fino, proposto para ser utilizado na segunda fase. Nota-se que o novo pó de alumínio utilizado nesta segunda fase do trabalho é sensivelmente mais fino do que o pó tradicionalmente utilizado na produção rotineira do combustível de baixa concentração de urânio, com d_{50} três vezes menor, de $11\mu m$, comparado a $33\mu m$ do pó de alumínio tradicionalmente usado. Isso pode ser visualizado nas micrografias eletrônicas de varredura apresentadas na figura 5.2.2.

TABELA 5.2.1 – Características do pó de alumínio utilizado nesta segunda fase do trabalho.

Impurezas		
Elemento	Especificado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)	Resultado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)
B	< 10	< 10
Cd	< 10	10
Co	< 10	10
Cu	< 500	40
Fe	9500	1600
Si		
Mn	< 500	70
Zn	< 1000	90
Li	< 10	< 10
Outros	< 1500	350
Total	< 10000	2190
Teor de Al_2O_3		
Especificado (%)		Resultado (%)
< 0,7		< 0,7
Materiais Voláteis		
Especificado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)		Resultado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)
< 1000		38
Carbono		
Especificado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)		Resultado ($\mu\text{g.g}^{-1}$)
< 2000		42
Alumínio Total		
Especificado (%)		Resultado (%)
> 99		99,78

FIGURA 5.2.1 – Distribuição granulométrica dos pós de alumínio utilizados: na fase 1 (preto, produção rotineira), e na fase 2 (vermelho, modificado).

Além da modificação na granulometria do pó de alumínio, foi também modificado o procedimento tradicional para a alimentação da matriz. Conforme mencionado anteriormente, o procedimento tradicional prevê a alimentação em uma só etapa, vertendo-se no interior da cavidade da matriz de compactação, de uma só vez, todo o pó contido no frasco utilizado na etapa de homogeneização. Feito isso, o pó é aplainado no interior da cavidade com auxílio de uma ferramenta especial.

(A)

(B)

FIGURA 5.2.2 – Micrografias eletrônicas de varredura dos pós de alumínio utilizados: A) na fase 1, e B) na fase 2 deste trabalho.

A modificação proposta, prevê a alimentação em 3 etapas, vertendo-se um terço do volume de pó e efetuando-se o aplainamento, e assim sucessivamente, em 3 etapas consecutivas. O punção inferior é elevado até $\frac{2}{3}$ da sua posição normal no interior da cavidade da matriz de compactação, quando $\frac{1}{3}$ da mistura

de pós é vertida e aplainada. Feito isso, o punção é abaixado para 1/3 da posição normal e mais 1/3 da mistura é vertida e aplainada. Finalmente, o punção é novamente abaixado até sua posição normal e o restante da mistura de pós é vertida e aplainada. A idéia foi diminuir a profundidade da cavidade da matriz para diminuir a altura de queda da mistura de pós, minimizando-se a segregação.

Com relação aos problemas de penetração de partículas de U_3Si_2 no revestimento e da qualidade da dispersão U_3O_8 -Al em relação à dispersão ideal, a modificação proposta foi a diminuição do tamanho máximo das partículas de U_3Si_2 , definido na primeira fase como 150 μ m, e o aumento do tamanho máximo das partículas de U_3O_8 , definido na primeira fase como 87 μ m. Foi definido um valor máximo de 125 μ m para ambos os pós.

No caso da penetração de partículas de U_3Si_2 no revestimento, observou-se que esse fenômeno tem tendência maior a ocorrer para as partículas de maior dimensão, como pode ser observado na figura 5.1.4. Portanto, procurou-se controlar esse problema com a diminuição do tamanho máximo dessas partículas.

Com relação à baixa qualidade da dispersão U_3O_8 -Al, o problema pode estar relacionado ao pequeno tamanho das partículas de U_3O_8 , limitado a um máximo de 87 μ m. Comparando-se a microestrutura do núcleo U_3O_8 -Al, apresentada na figura 5.1.7, com a do núcleo U_3Si_2 -Al, apresentada na figura 5.1.6, observa-se que o aumento do tamanho das partículas físeis (fase dispersa) conduz a dispersões de melhor qualidade, mais próximas de uma dispersão ideal, onde as partículas físeis dispersas estão individualmente circundadas pela matriz de alumínio, tornando essa matriz a mais contínua possível.

Além disso, a definição do valor de 125 μ m para ambos os tipos de combustível traz vantagens em termos de padronização nos procedimentos de produção dos pós.

Assim, nesta segunda fase, foram realizadas 3 modificações, adotadas na fabricação dos dois tipos de combustíveis de alta concentração estudados. A primeira refere-se à substituição do pó de alumínio utilizado na fabricação de briquetes, utilizando-se um pó mais fino. A segunda refere-se à modificação do procedimento de alimentação da cavidade da matriz, sendo nesta segunda etapa do trabalho realizada em 3 fases. A terceira refere-se à modificação do tamanho máximo de partículas do material disperso, passando de 150 μ m para 125 μ m no

caso do U_3Si_2 e de $87\mu m$ para $125\mu m$ no caso do U_3O_8 . Dessa forma, foram fabricadas 4 placas combustíveis de alta concentração de urânio a base de U_3Si_2-Al e 4 placas a base de U_3O_8-Al . A tabela 5.2.2 apresenta as principais características dos briquetes fabricados na segunda fase. Notou-se um ligeiro aumento na porosidade dos briquetes U_3Si_2-Al , decorrente principalmente da diminuição do tamanho máximo de partícula, de $150\mu m$ para $125\mu m$. As espessuras dos briquetes aumentaram ligeiramente. A diminuição do tamanho de partícula do pó de alumínio também influencia a compactação, com tendência a aumentar a porosidade para a mesma pressão de compactação. A pressão de compactação foi mantida a mesma utilizada na primeira fase, de $5,0tf/cm^2$.

TABELA 5.2.2 - Características dimensionais dos briquetes fabricados na segunda fase.

Briquete.	Massa (g)	Larg. (mm)	Comp. (mm)	Espessura (mm)		Amplitude (μm)	Vol (cm^3)	Porosidade (%vol)	Dens. U (gU/cm^3)
				min	max				
U_3Si_2 5	167,08	59,13	104,25	4,12	4,24	120	25,48	8,55	4,81
U_3Si_2 6	167,05	59,14	104,26	4,13	4,20	70	25,43	8,38	4,82
U_3Si_2 7	167,20	59,21	104,35	4,13	4,22	120	25,42	8,26	4,81
U_3Si_2 8	167,16	59,20	104,36	4,12	4,24	120	25,50	8,57	4,80
U_3O_8 5	129,31	59,20	104,38	4,12	4,27	60	25,95	6,47	3,19
U_3O_8 6	129,27	59,12	104,25	4,15	4,22	70	25,82	6,47	3,20
U_3O_8 7	129,26	59,11	104,24	4,10	4,15	110	25,45	6,83	3,24
U_3O_8 8	129,26	59,13	104,24	4,10	4,22	200	25,70	6,47	3,21

No caso dos briquetes U_3O_8-Al o efeito foi inverso, houve diminuição da porosidade e a espessura dos briquetes diminuiu ligeiramente. Isso é decorrente do aumento do tamanho máximo de partícula de $87\mu m$ para $125\mu m$, o que aumenta a eficiência da compactação. Nesse caso, a pressão de compactação também foi mantida a mesma utilizada na primeira fase, de $5,5tf/cm^2$. A diminuição da porosidade nesta segunda fase, diminuindo-se de

cerca de 9% em volume na primeira fase para 6-7% nesta segunda fase, foi uma tentativa de diminuir a porosidade no núcleo da placa combustível laminada, considerada excessiva na primeira fase do trabalho, ao redor de 14% em volume.

Os resultados obtidos nos briquetes produzidos nesta fase demonstraram que os problemas de segregação foram solucionados, não sendo observada diferença na aparência das faces do briquete, como ilustra a figura 5.2.3. Em ambas as faces dos briquetes, superior e inferior, a concentração de partículas dos compostos de urânio parece ser a mesma. As macrografias da figura 5.2.4 confirmam essa observação.

A deformação dos núcleos das placas combustíveis laminadas na segunda fase também apresentou um comportamento muito similar ao caso do combustível tradicional fabricado pelo CCN do IPEN-CNEN/SP, confirmando os resultados obtidos na primeira fase. O alargamento e alongamento durante a laminação também foram idênticos aos usualmente observados. A tabela 5.2.3 apresenta as características dimensionais dos núcleos das placas combustíveis com alta concentração de urânio fabricadas na segunda fase do trabalho. Observa-se que os valores de comprimento e largura do núcleo atendem à especificação vigente, adequando-se perfeitamente à espessura da placa combustível. Portanto, confirmou-se que a liberdade de variação da espessura da placa combustível, mantendo-se controladas as características dimensionais do núcleo, não foi alterada pelo fato das placas combustíveis conterem maior concentração de urânio em seu núcleo. Assim, confirmou-se que a operação de laminação não apresenta dificuldades relacionadas à alta concentração de urânio presente nas placas combustíveis.

FIGURA 5.2.3 – Fotografias ilustrando as faces dos briquetes de U_3O_8 (A) e de U_3Si_2 (B).

FIGURA 5.2.4 – Macrografias ilustrando boa homogeneidade na distribuição de U_3O_8 (A) e de U_3Si_2 (B) em ambas as faces do briquete.

A solução do problema de segregação das partículas combustíveis foi confirmada por meio das radiografias dos núcleos laminados. Todas as radiografias obtidas mostraram uma boa distribuição de urânio no núcleo da placa combustível, dentro dos padrões de aceitabilidade segundo o procedimento de qualificação atualmente vigente, baseado em inspeção visual e comparação com um padrão. As regiões escuras e claras nas extremidades dos núcleos poderiam sugerir um espessamento anormal do núcleo nessa região, ou seja, problemas de “dog-boning”. Contudo, as medições das espessuras do núcleo e do revestimento

para ambos os combustíveis estudados demonstraram que os valores atendem às especificações vigentes. A figura 5.2.5 apresenta as radiografias obtidas, mostrando um bom grau de homogeneidade para todas as placas fabricadas.

TABELA 5.2.3 - Características dimensionais dos núcleos fabricados na segunda fase.

Placa	Espessura da Placa (mm)	Comprimento da Placa (mm)	Largura da Placa (mm)	Volume do Núcleo (cm ³)	Porosidade do Núcleo (%vol)	Densidade de Urânio (gU/cm ³)
U ₃ Si ₂ -5	1,49	607,0	61,20	26,60	12,41	4,61
U ₃ Si ₂ -6	1,50	607,0	61,40	26,29	11,44	4,67
U ₃ Si ₂ -7	1,52	602,0	61,63	26,21	11,02	4,70
U ₃ Si ₂ -8	1,54	594,0	61,46	26,25	11,16	4,70
U ₃ O ₈ -5	1,50	607,5	61,70	27,31	14,75	3,02
U ₃ O ₈ -6	1,51	601,5	61,54	27,35	14,93	3,02
U ₃ O ₈ -7	1,53	595,0	61,47	27,10	14,39	3,05
U ₃ O ₈ -8	1,50	606,0	61,75	27,25	14,75	3,04

Para medição das espessuras dos revestimentos e dos núcleos foram destruídas as placas de menor espessura, de 1,49mm no caso do U₃Si₂-Al e 1,50mm no caso do U₃O₈-Al, de modo a obterem-se valores conservativos para a espessura do revestimento. Notam-se nos valores apresentados na tabela 5.2.4 que, mesmo diminuindo-se a espessura da placa para um valor próximo do mínimo especificado, de 1,47mm, os resultados qualificam ambos os tipos de combustíveis de alta concentração estudados. A espessura típica da placa combustível fabricada no CCN é de 1,54mm, podendo-se fabricar rotineiramente, sem dificuldades, placas combustíveis com 1,57mm de espessura (máxima especificada). Dessa forma, os valores de espessura de revestimento apresentados na tabela 5.2.4 podem ser maiores, devendo, portanto, ser

considerados os mínimos possíveis de ocorrer na fabricação rotineira de placas combustíveis com alta concentração de urânio.

(A)

(B)

(C)

FIGURA 5.2.5 – Radiografias ilustrando a homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo de placas combustíveis fabricadas na segunda fase do trabalho. A - alta concentração U_3Si_2 -Al. B - alta concentração U_3O_8 -Al. C - padrão mínimo de aceitabilidade.

TABELA 5.2.4 - Valores das espessuras dos revestimentos e do núcleo das placas combustíveis fabricadas na segunda fase, obtidos por metalografia.

	Zona 1		Zona 2	
	Núcleo (mm) min-max	Revestimento (mm) min-max	Núcleo (mm) min-max	Revestimento (mm) min-max
U ₃ Si ₂ 5	0,77-0,79	0,33-0,37	0,81-0,95	0,26-0,35
U ₃ O ₈ 5	0,78-0,81	0,34-0,38	0,80-0,92	0,28-0,36

Como mencionado anteriormente, nessa segunda fase do trabalho, após as modificações efetuadas no tamanho de partículas do pó de alumínio e do procedimento de alimentação da cavidade da matriz de compactação dos briquetes, não mais se observou a tendência à segregação de material disperso nas faces do briquete, como ilustram as figuras 5.2.3 e 5.2.4. Como decorrência, as placas combustíveis a base de U₃O₈-Al não apresentaram falha de caldeamento entre o núcleo e o revestimento, como ilustra a figura 5.2.6. Observa-se nessa figura a continuidade entre a matriz de alumínio do núcleo e o alumínio do revestimento, revelando um bom caldeamento.

FIGURA 5.2.6 – Micrografias ilustrando bom caldeamento entre núcleo e revestimento na placa combustível de alta concentração de U₃O₈-Al fabricada na segunda fase (U₃O₈ de tamanho máximo de partícula de 125µm).

A diminuição do tamanho máximo das partículas de U_3Si_2 , de $150\mu m$ para $125\mu m$, foi benéfica em termos de penetração das partículas no revestimento, como ilustram as micrografias apresentadas na figura 5.2.7. A diminuição do tamanho máximo das partículas resultou numa menor penetração no revestimento, conduzindo aos maiores valores na espessura efetiva do revestimento apresentados na tabela 5.2.4. Também, não se observou uma modificação importante na aparência da dispersão que apresenta as características tradicionais de uma boa dispersão, com as partículas de U_3Si_2 razoavelmente isoladas na matriz de alumínio. A figura 5.2.8 apresenta micrografias ópticas do núcleos de dispersão U_3Si_2 -Al utilizando pó com tamanhos máximos de partícula de $125\mu m$ e $150\mu m$, para comparação. Não houve modificação importante na aparência da microestrutura.

FIGURA 5.2.7 – Micrografias ópticas ilustrando pouca penetração de partículas de U_3Si_2 no revestimento em placas combustíveis fabricadas na segunda fase do trabalho, com partículas de U_3Si_2 com tamanho máximo de $125\mu m$.

FIGURA 5.2.8 – Micrografias comparando a microestrutura dos núcleos U_3Si_2-Al fabricados com pó de granulometria $150\mu m$ (esquerda) e $125\mu m$ (direita).

Por outro lado, ao contrário do esperado, a aparência da dispersão de U_3O_8-Al não melhorou com o aumento da granulometria do pó, como pode ser observado na figura 5.2.6. Para facilitar a comparação, a figura 5.2.9 apresenta as microestruturas obtidas nas dispersões U_3O_8-Al utilizando as duas granulometrias do pó de U_3O_8 , $125\mu m$ (figura 5.2.9A) e $87\mu m$ (figura 5.2.9B). Não se observou nenhum efeito benéfico na aparência da dispersão com o aumento do tamanho máximo das partículas de U_3O_8 . Ao contrário, a quantidade de pequenas

partículas aumentou sensivelmente. Isso ocorreu devido à maior fragmentação causada pelo aumento do tamanho das partículas de U_3O_8 , que se apresentam verdadeiramente como aglomerados de U_3O_8 . Notou-se, também, ao contrário do esperado, que a porosidade nos núcleos de U_3O_8 não diminuiu como pode ser observado na tabela 5.2.3, ao contrário, sofreu ligeira elevação.

Isso ocorreu devido às características do pó de U_3O_8 fabricado segundo o processo tradicional adotado pelo CCN do IPEN-CNEN/SP. Atualmente, o procedimento de fabricação do pó de U_3O_8 define a compactação de pastilhas com pó calcinado e sua granulação na faixa 100-44 μ m. Os grânulos obtidos são, então, sinterizados por 24 horas à temperatura de 1450°C e classificados. O pó obtido apresenta a densidade mínima especificada, de 8g/cm³, mas as partículas sinterizadas são formadas por pequenos grânulos individuais que se agrupam durante a sinterização, com a formação de “pescoços”. A figura 5.2.10 ilustra a morfologia das partículas de U_3O_8 . O aumento do tamanho das partículas de U_3O_8 causou uma maior desagregação dos grânulos que as formam, resultando numa fragmentação superior à observada no caso do uso de partículas com tamanho máximo menor, de 87 μ m. A maior fragmentação causa um aumento na porosidade do núcleo após a laminação, que pode ser observado na tabela 5.2.3 e nas microestruturas apresentadas na figura 5.2.9. Mesmo com a diminuição da porosidade dos briquetes fabricados na segunda fase, a porosidade residual nos núcleos laminados não diminuiu. Esse efeito é conhecido, uma vez que a porosidade final no núcleo laminado independe da porosidade do briquete de partida, atingindo-se uma porosidade de equilíbrio que depende em última instância da fração volumétrica do U_3O_8 , da resistência à fragmentação das partículas e da quantidade de redução a frio [70,71].

FIGURA 5.2.9 – Micrografias ópticas ilustrando a microestrutura de placas combustíveis a base de U_3O_8 – Al com tamanho máximo de partículas de: A) 125 μm e B) 87 μm .

As micrografias eletrônicas de varredura apresentadas na figura 5.2.10 sugerem que esse tipo de pó possui baixa resistência à fragmentação. Durante os esforços mecânicos na laminação, as partículas fraturam na região dos pescoços, liberando os grânulos originais que formam as partículas, diminuindo drasticamente o tamanho médio do pó de U_3O_8 originalmente adicionado na dispersão. Apesar desse efeito ocorrer mesmo no combustível de baixa concentração de urânio, ele torna-se mais intenso quando a fração volumétrica de U_3O_8 é elevada a 45% em volume na dispersão do combustível com alta concentração de urânio. O resultado final é uma dispersão de baixa qualidade, como ilustra a figura 5.2.9. O aumento do tamanho das partículas de U_3O_8 não é, portanto, eficaz, uma vez que o tamanho dos grânulos originais que compõe as partículas não é alterado. Ele é até prejudicial, pois conduz a uma fragmentação (ou desaglomeração) mais intensa. Segundo o processo tradicional de fabricação de pó de U_3O_8 , as partículas utilizadas na dispersão são, na verdade, aglomerados de partículas primárias de pequeno tamanho (20 a 30 μm), fracamente unidas durante a sinterização, as quais se desprendem durante a laminação. A maior fração volumétrica desse tipo de partícula no combustível de alta concentração agrava esse tipo de fragmentação, devido à maior interação entre elas.

FIGURA 5.2.10 – Micrografias eletrônicas de varredura ilustrando a morfologia das partículas de U_3O_8 fabricadas segundo o atual método de sinterização de grânulos (elétrons secundários).

Uma alternativa para resolver esse problema seria sinterizar as pastilhas de U_3O_8 , ao invés de sinterizar os grânulos, e posteriormente triturar as pastilhas sinterizadas. Esse método foi utilizado no IPEN-CNEN/SP até o ano de 1990 quando foi alterado pelo método atual de produção de pó de U_3O_8 pelo fato de reduzir sensivelmente a formação de finos menores do que $44\mu m$ e de ser menos trabalhoso [61,62]. A figura 5.2.11 ilustra a morfologia das partículas obtidas por meio desse método anteriormente utilizado, totalmente diferente quando comparada à morfologia das partículas do pó de U_3O_8 fabricado segundo o método tradicional mostrada na figura 5.2.10. Observa-se a ausência dos “pescoços”, com aspecto de continuidade, tem a forma mais irregular e alta rugosidade superficial, o que é benéfica em termos de diminuição dos problemas de segregação.

FIGURA 5.2.11– Micrografias eletrônicas de varredura ilustrando a morfologia das partículas de U_3O_8 fabricadas segundo o método de trituração de pastilhas sinterizadas. Elétrons secundários.

A utilização desse pó de U_3O_8 fabricado a partir da trituração de pastilhas sinterizadas é morfologicamente muito semelhante ao pó tradicional de U_3Si_2 (veja figura 4.2.1) e poderia resultar numa melhor microestrutura para as placas combustíveis com alta concentração de U_3O_8 . Contudo, sua utilização não será testada no presente trabalho e esse estudo será proposto como trabalho futuro.

Conclui-se desta segunda fase do trabalho que as modificações propostas nos materiais e métodos de fabricação do combustível de alta concentração de urânio a base da dispersão U_3Si_2 -Al permitiram a fabricação 33 do combustível com $4,8gU/cm^3$, atendendo-se a todas as especificações vigentes para uso no reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP, resultando numa microestrutura compatível com as premissas de uma dispersão ideal. Por outro lado, apesar do combustível de alta concentração de urânio a base da dispersão U_3O_8 -Al também atender à todas as especificações vigentes, apesar da subjetividade da análise, conclui-se que sua microestrutura distanciou-se das características recomendáveis para uma boa dispersão e que trabalhos futuros deverão ser desenvolvidos para diminuir a alta fragmentação das partículas de U_3O_8 . Convém mencionar que a aparência da dispersão U_3O_8 – Al obtida neste trabalho, apresentadas na figura 5.1.7. (pó de U_3O_8 com $87\mu m$), está melhor do que a aparência da dispersão obtida por Copeland e Martin [72] em seus trabalhos para testar o limite de fabricabilidade de placas combustíveis de dispersão U_3O_8 – Al com alta concentração de U_3O_8 , como ilustra a figura 5.2.12. Nota-se que na dispersão obtida neste trabalho, a matriz de alumínio é muito mais continua do que no caso obtida por Copeland e Martin [72]. De qualquer forma, uma vez que se considera possível melhorar a microestrutura da dispersão U_3O_8 – Al obtida neste trabalho, um trabalho futuro neste sentido é recomendável antes de se planejar um teste de irradiação.

FIGURA 5.2.12 – Microestrutura de dispersões de U_3O_8 – Al com alta concentração de U_3O_8 obtidas neste trabalho (A) e obtida por Copeland e Martin (B) [72].

Sendo assim, numa terceira etapa, o trabalho continuou com o objetivo de se fabricar 3 placas combustíveis de U_3Si_2 -Al com concentração de $4,8\text{gU}/\text{cm}^3$ utilizando-se urânio enriquecido a 20% em peso de ^{235}U . Duas dessas placas irão compor um elemento combustível parcial IEA-228 para a realização de teste de irradiação desse novo combustível no reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP. A terceira placa combustível foi destruída para a realização da análise metalográfica para qualificação.

5.3 Resultados da fabricação de placas combustíveis enriquecidas com 4,8gU/cm³ a base da dispersão U₃Si₂-Al

Para a fabricação das placas combustíveis com concentração de 4,8gU/cm³ a base de U₃Si₂ com urânio enriquecido foram adotadas as modificações descritas e testadas na segunda fase do trabalho. Foi utilizado pó fino de alumínio, com diâmetro máximo de partícula de cerca de 35µm, d₅₀=11µm e d₉₀=23µm. O diâmetro máximo de partícula do pó de U₃Si₂ foi de 125µm, com um máximo de 20% em peso de finos menores do que 44µm (19,27% em peso). A alimentação da cavidade da matriz de compactação dos briquetes foi realizada em três etapas, alimentando-se 1/3 da mistura de pós em cada etapa e ajustando-se a profundidade da cavidade da matriz em 1/3 da total em cada etapa de alimentação. Dessa forma, três placas combustíveis utilizando urânio enriquecido a 20% em peso em ²³⁵U foram fabricadas, todas contendo 4,8gU/cm³.

O pó de U₃Si₂ utilizado foi produzido no CCN do IPEN-CNEN/SP segundo os procedimentos usuais de fabricação. A tabela 5.3.1 apresenta as características químicas e físicas do pó de U₃Si₂ enriquecido.

TABELA 5.3.1 – Características do pó de U_3Si_2 enriquecido utilizado neste trabalho.

Impurezas		
Elemento	Especificado ($\mu g.g^{-1}$)	Resultado ($\mu g.g^{-1}$)
Al	600	< 14
B	10	1,27
C	2000	272,67
Cd	10	0,60
Co	10	10,00
Cu	2000	50,00
Fe + Ni	1500	259,67
Zn	1000	100
Li	10	2,50
N	2500	184,00
O	7000	1004,00
H	200	12,67
Outros Elementos		
Cr	-	36,67
Mn	-	5,00
Mg	-	2,00
Pb	-	2,00
Sn	-	2,00
V	-	3,00
Ba	-	1,00
Th	-	10,00
Individual	≤ 500	-
Total	≤ 2500	63,67
Composição		
Elemento	Especificado (%)	Resultado (%)
U	não especificado	92,17
Si	7,4 – 7,9	7,45
Densidade		
Especificado (g/cm^3)		Resultado (g/cm^3)
> 11,7		12,15
Área de Superfície Específica		
Especificado (m^2/g)		Resultado (m^2/g)
< 0,15		0,03
Razão Isotópica ^{235}U		
Especificado (%)		Resultado (%)
$19,75 \pm 0,20$		19,92

A figura 5.3.1 apresenta uma micrografia eletrônica de varredura do pó de U_3Si_2 enriquecido utilizado na fabricação das placas combustíveis.

FIGURA 5.3.1 – Micrografia eletrônica de varredura do pó de U_3Si_2 enriquecido. Elétrons secundários.

A tabela 5.3.2 apresenta as principais características dos briquetes de alta concentração de U_3Si_2 -Al fabricados com urânio enriquecido. Todas as especificações foram atendidas.

A tabela 5.3.3 apresenta as características dimensionais dos núcleos das placas combustíveis com alta concentração de urânio à base de U_3Si_2 -Al fabricadas com urânio enriquecido. Observa-se que os valores de comprimento e largura do núcleo atendem à especificação vigente, adequando-se perfeitamente à espessura da placa combustível. Portanto, confirmou-se a manutenção da liberdade de variação da espessura da placa combustível, mantendo-se controladas as características dimensionais do núcleo. Observa-se que os valores obtidos da densidade de urânio atingiram o valor almejado, de $4,8gU/cm^3$.

TABELA 5.3.2 - Características dos briquetes de alta concentração de U_3Si_2 fabricados com urânio enriquecido.

Briquete	Massa (g)	Lar g. (m)	Comp. (mm)	Espessura (mm)		Amplitude (μm)	Vol (cm^3)	Porosidade (%vol)	Dens. U (gU/cm^3)
				min	max				
U_3Si_2 1E	167,02	59,16	104,27	4,12	4,18	60	25,29	8,20	4,90
U_3Si_2 2E	167,01	59,13	104,31	4,10	4,18	80	25,26	8,10	4,91
U_3Si_2 3E	167,04	59,16	104,31	4,13	4,17	40	25,27	8,10	4,91

TABELA 5.3.3 - Características dimensionais dos núcleos das placas combustíveis de alta concentração de U_3Si_2 fabricadas com urânio enriquecido.

Placa	Espessura da Placa (mm)	Comprimento do Núcleo (mm)	Largura do Núcleo (mm)	Volume do Núcleo (cm^3)	Porosidade do Núcleo (%vol)	Densidade de Urânio (gU/cm^3)
U_3Si_2 -1E	1,54	595,0	61,30	25,84	10,15	4,79
U_3Si_2 -2E	1,53	591,0	61,35	25,89	10,29	4,79
U_3Si_2 -3E	1,53	595,0	61,40	25,92	10,43	4,78

As radiografias das três placas fabricadas com urânio enriquecido mostraram uma boa distribuição de urânio no núcleo, dentro dos padrões de aceitabilidade segundo o procedimento de qualificação atualmente vigente, baseado em inspeção visual e comparação com um padrão. A figura 5.3.2 apresenta as radiografias obtidas, mostrando um bom grau de homogeneidade para todas as placas fabricadas.

Para medição das espessuras dos revestimentos e dos núcleos foi destruída uma das placas combustíveis fabricadas com urânio enriquecido. A amostragem seguiu o mesmo procedimento utilizado para a qualificação das placas combustíveis fabricadas regularmente no CCN do IPEN-CNEN/SP. A tabela 5.3.4 apresenta os resultados obtidos, os quais atentem integralmente à especificação vigente. A tabela 5.3.5 e a figura 5.3.3 apresenta os resultados de

espessuras de revestimento e núcleo da forma como são formalmente emitidos pelo CCN do IPEN-CNEN/SP.

FIGURA 5.3.2 – Radiografias ilustrando a homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo de placas combustíveis fabricadas com alta concentração de U_3Si_2 com urânio enriquecido.

TABELA 5.3.4 - Valores das espessuras dos revestimentos e do núcleo da placa combustível com alta concentração de U_3Si_2 fabricada com urânio enriquecido.

	Zona 1		Zona 2	
	Núcleo (mm) min-max	Revestimento (mm) min-max	Núcleo (mm) min-max	Revestimento (mm) min-max
U_3Si_2 (SI AC – 001)	0,75-0,76	0,37-0,39	0,78-0,88	0,32-0,37

TABELA 5.3.5 –Análise Dimensional Interna de Placas Combustíveis emitido pelo CCN do IPEN-CNEN/SP para a placa combustível com alta concentração de U_3Si_2 fabricada com urânio enriquecido.

SI AC - 001

	$E_{m1} = 0,35mm$
TLIE (1)	$N = 0,84mm$
	$E_{m2} = 0,34mm$
	$E_{m1} = 0,32mm$
TLID (3)	$N = 0,88mm$
	$E_{m2} = 0,32mm$
	$E_{m1} = 0,39mm$
CTE (5)	$N = 0,75mm$
	$E_{m2} = 0,38mm$
	$E_{m1} = 0,37mm$
CTD (7)	$N = 0,75mm$
	$E_{m2} = 0,39mm$
	$E_{m1} = 0,38mm$
CL (9)	$N = 0,76mm$
	$E_{m2} = 0,39mm$
	$E_{m1} = 0,36mm$
TLSE (11)	$N = 0,79mm$
	$E_{m2} = 0,36mm$
	$E_{m1} = 0,37mm$
TLSD (13)	$N = 0,78mm$
	$E_{m2} = 0,36mm$

FIGURA 5.3.3 – Micrografia ilustrando a microestrutura das secções utilizadas para elaboração do laudo formal da “análise dimensional interna de placas combustíveis” emitido pelo CCN do IPEN-CNEN/SP.

A figura 5.3.4 apresenta micrografias ópticas ilustrando a aparência geral da dispersão $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com $4,8\text{gU}/\text{cm}^3$ fabricada com urânio enriquecido. Apesar da análise ser subjetiva, pois não existe uma especificação para a microestrutura de placas combustíveis de dispersão, observa-se uma boa dispersão, com as partículas de material físsil com uma matriz de alumínio ao seu redor, aproximando-se das premissas teóricas de uma dispersão ideal.

FIGURA 5.3.4 – Micrografias ópticas ilustrando a microestrutura do núcleo de placas combustíveis de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com $4,8\text{gU}/\text{cm}^3$ fabricadas com urânio enriquecido. A – corte transversal. B – corte longitudinal.

O defeito terminal “rabo de andorinha” das placas de alta concentração de U_3Si_2 fabricadas com urânio enriquecido apresentou geometria que pode ser considerada típica para esse tipo de combustível. A figura 5.3.5 ilustra a aparência desse tipo de defeito.

FIGURA 5.3.5 – Micrografias ópticas ilustrando os defeitos típicos de final de núcleo nas placas combustíveis com alta concentração de U_3Si_2 -Al ($4,8gU/cm^3$) fabricadas com urânio enriquecido.

Finalmente, quanto à presença de partículas combustíveis fora da zona do núcleo, não foram observadas partículas fora do núcleo em nenhuma das placas de alta concentração fabricadas. A análise foi realizada por meio da inspeção das radiografias apresentadas na figura 5.3.2.

A figura 5.3.6 apresenta uma fotografia das duas placas combustíveis com alta concentração de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$, com densidade de $4,8\text{gU/cm}^3$, fabricadas com urânio enriquecido. Essas duas placas combustíveis irão compor um elemento combustível parcial IEA-228 para que sejam testadas quanto ao seu desempenho sob irradiação no reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP.

FIGURA 5.3.6 – Fotografia das placas combustíveis com alta concentração de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ ($4,8\text{gU/cm}^3$) fabricadas com urânio enriquecido, qualificadas para montagem no elemento combustível parcial para teste de irradiação.

6 CONCLUSÕES

Placas combustíveis com alta concentração de urânio a base da dispersão $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ com $4,8\text{gU/cm}^3$ foram fabricadas atendendo a todas as especificações vigentes. Apesar da análise da microestrutura em uma dispersão ser subjetiva, uma vez que não está disponível na literatura um método para quantificar a qualidade de uma dispersão, a aparência da microestrutura obtida foi satisfatória.

As placas combustíveis com alta concentração de urânio a base da dispersão $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ com $3,2\text{gU/cm}^3$ fabricadas também atenderam às especificações vigentes. Contudo, apesar da subjetividade da análise, a aparência da microestrutura obtida não foi considerada satisfatória por não preencher as premissas de uma dispersão ideal, onde as partículas da fase físsil ficam circundadas pela matriz de alumínio. Um estudo complementar é necessário buscando o desenvolvimento de um pó de U_3O_8 com maior resistência à fragmentação.

As modificações de materiais e métodos necessárias para ajuste do atual processo de fabricação do CCN do IPEN-CNEN/SP foram:

- a) mudança do tamanho de partículas do pó de alumínio utilizado como matriz da dispersão, diminuindo-se o diâmetro máximo de partícula de $100\mu\text{m}$ para $35\mu\text{m}$, com o valor para d_{50} de $11\mu\text{m}$.
- b) mudança do tamanho de partículas do pó de U_3Si_2 , diminuindo-se o diâmetro máximo de $150\mu\text{m}$ para $125\mu\text{m}$.
- c) mudança do procedimento de alimentação da mistura de pós de U_3Si_2 e de alumínio na cavidade da matriz de compactação de briquetes. Segundo o procedimento desenvolvido neste trabalho, a alimentação deve ser realizada em três etapas, alimentando-se $1/3$ da massa de mistura de pós em cada etapa de alimentação.

Foram fabricadas três placas combustíveis com alta concentração de U_3Si_2 , com densidade de $4,8 \text{ gU/cm}^3$, fabricadas com urânio enriquecido. Duas placas combustíveis irão compor um elemento combustível parcial IEA-228 para que sejam testadas quanto ao seu desempenho sob irradiação no reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP e uma foi destruída para caracterização metalográfica quanto à espessura dos revestimentos e do núcleo.

7 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

Desenvolver o processo de fabricação de um pó de U_3O_8 mais resistente à fragmentação durante a laminação. Duas alternativas devem ser estudadas. A primeira é manter o atual processo de sinterização de grânulos, buscando uma maior densificação dos mesmos pelo ajuste do ciclo de sinterização e/ou pelo ajuste da atividade do pó de diuranato de amônio. A segunda é modificar o atual método de produção de pó de U_3O_8 , fabricando-o a partir da trituração de pastilhas sinterizadas. Nesse caso deverão ser também ajustados o ciclo de sinterização e/ou a atividade do pó de diuranato de amônio de partida.

A partir dos resultados, desenvolver o processo de fabricação do combustível de U_3O_8 -Al com $3,2 \text{ gU/cm}^3$ e fabricar três placas combustíveis utilizando urânio enriquecido a 20% em peso em ^{235}U . Duas placas serão utilizadas para a montagem de um elemento combustível parcial para teste de irradiação no reator IEA-R1 e uma será destruída para qualificação quanto à espessura dos revestimentos e do núcleo, por meio de metalografia.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. TRAVELLI, A.; LEWIS, R.A.; MATOS, J.E.; DELANEY, E.; BALLARD, W.; AKERS, L.U.S. Reduced-enrichment research and test reactors program. ***Trans. Am. Nucl. Soc*** , v.30, p.725, 1978.
2. SCHWARTZ, J.P. Enrichment reduction in research and test reactors. ***Trans. Amer. Nucl. Soc*** , v.30, p.729-730, 1978.
3. TRAVELLI, A. Current status of the RERTR program. In: DEVELOPMENT FABRICATION AND APPLICATION OF REDUCED-ENRICHED FUELS FOR RESEARCH AND TEST REACTOR, November 12-14, 1980,Vienna, ***Proceedings held in Argonne III: (CONF-801144)***.
4. CUNNINGHAM, J. E. e BOYLE, E. J. MTR-Type fuel elements. In: UNITED NATIONS PEACEFUL USES ATOMIC ENERGY: Reactor Technology and Chemical Processing held in Geneva, Aug. 8-20, 1955., New York, ***,Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy***.New York: 1956, p. 203-207.
5. CUNNINGHAM, J.E.; BEAVER, R.J.; THURBER, W.C.; WAUGH, R.C. Fuel dispersions in aluminum-base elements for research reactors. In: ***USAEC. FUEL ELEMENTS, Conference held in Paris, November 18-23, 1957***. Oak Ridge, Tn: Oak Ridge: USAEC, 1958, p.269-297, (TID-7546).
6. BINFORD, F.T. e KNIGHT, R.W. The use of UgOg-Al cermet fuel in research reactors. ***Trans. Amer. Nucl. Soc.***, v.27, ,p.34-35,1977.
7. SNELGROVE, J.L.; BURN, R.R.; KOMORIYA, H.; MOSS, T.A. Near term reduced-enrichment conversions of plate-type research and test reactors. ***Trans. Amer. Nucl. Soc.***,v.30, p.727-728, 1978.
8. STAHL, D.; CUNNINGHAM, J.E.; FRANCIS, W.C. Development of advanced high-uranium-density reduced-enrichment plate-type fuels. ***Trans. Amer. Nucl. Soc*** , v.30, p.726, 1978.
9. GIETZEN, A.J. e WEST, G.B. Low-enrichment U-ZrH fuel for TRIGA and plate-type reactors. ***Trans. Amer. Nucl. Soc.***,v.30, p.726-727, 1978.
10. United .States Nuclear Regulatory Commission: Safety evaluation report related to the evaluation of low-enriched uranium silicide-aluminum dispersion Ffuel for use in non-power reactors, Maryland: U. S.NRC, July, 1988, NUREG-1313.

11. KAUFMAN, A. R. "Nuclear Reactor Fuel Elements, Metallurgy and Fabrication". New York, **Interscience**, 1962.

12. HOLDEN A.N. **Dispersions fuel elements**. New York, Gordon & Breach, 1967

13. SALLER H.A. Preparation, Properties and Cladding of Aluminum-Uranium Alloys. In: UNITED NATIONS PEACEFUL USES OF ATOMIC ENERGY: Reactor technology and chemical processing, Aug. 8-20, 1955, New York. **Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy.Held in Geneva**. New York: .1956, p. 214-220.

14. THURBER W.C., BEAVER RJ. Segregation in Uranium-Aluminum Alloys and its Effect on the Fuel Loading of Aluminum-Base Fuel Element. In: **Reactor fuel measurements techniques symposium held in EastLansing**, June,18-20, , 1958, Michigan. Oak Ridge, Tenn: Oak Ridge: USAEC, 1958, p. 9-29, TID -7560.

15. LENNOX D.H., KELBER C.N. **Summary Report on the Hazards of the Argonaut Reactor**. Lemont, Argonne National Lab., Dec., 1956, ANL – 5647.

16. KUCERA W.J., LEITTEN C.F., BEAVER RJ. **Specifications and Procedures Used in Manufacturing U₃O₈-Aluminium Dispersion Fuel Elements for Core I of the Puerto Rico Research Reactor**. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., 1963, ORNL – 3458.

17. KNIGHT R. W., BINNS J., ADAMSON Jr G.M. **Fabrication Procedures for Manufacturing High Flux Isotope Reactor Fuel Elements**. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., June, 1968, ORNL – 4242.

18. BEAVER R.I., ADAMSON Jr G.M., PATRIARCA P. **Procedures for Fabricating Aluminium-Base ATR Fuel Elements**. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., June, 1964, ORNL – 3632.

19. SALIBA, A. M. -Silva, URANO DE CARVALHO, E. F., RIELLA, H. G. e DURAZZO, M. Research reactor fuel fabrication to produce radioisotopes **Radioisotopes – Applications in Physical Sciences**, cap.2, 2011,p.21-54.

20. SNELGROVE J.L., DOMAGALA R.F., HOFFMAN, G.L., WIENCEK T.C., COPELAND G.L., HOBBS R.W., SENN R.L. The use of U₃Si₂ dispersed in aluminum in plate-type fuel elements for research and test reactors.In: SAFETY EVALUATION REPORT RELATED TO THE EVALUATION OF LOW-ENRICHED URANIUM SILICIDE-ALUMINIUM DISPERSION FUEL FOR USE IN NON-POWER REACTOR, United States Nuclear Regulatory Commission, Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, October, ANL/RERTR/TM-11, 1987, NUREG-1313 TI 88

21. COPELAND, G.L., HOBBS, R.W., HOFFMAN, G.L., SNELGROVE, J.L.
Performance of Low-Enriched U₃Si₂-Al Dispersion Fuel Elements in the Oak Ridge Research Reactor., Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, October, ANL/RERTR/TM-10, 1987.
22. NAZARÉ, S. Low enrichment dispersion fuels for research and test reactors. ***J. Nucl. Mat.***, v.124, p.14-24, 1984.
23. NAZARÉ, S. New low enrichment dispersion fuels for research reactors prepared by PM-techniques. ***Powder Met. Intern.***, v. 18, n.3, p. 150-158, 1986.
24. HOFMAN, G. L.; WIENCEK, T. C.; KOSTER Van GROOS, S. A.; e colaboradores - A study on the Formation of As-Fabricated Porosity im U₃Si₂ Aluminium Dispersion Fuels – In: INTERNATIONAL MEETING ON REDUCED ENRICHEMENT FOR REASEARCH AND TEST REACTOR, september, Paris, 1994.
25. HOFMAN, G. L., MEYER, M. K., RAY, A. Design of High Density Gamma-Phase Uranium Alloys for LEU Dispersion Fuel Applications. International RERTR Meeting, São Paulo, 18-23, October, 1998.
26. VAN THYNE, R. J.; McPHERSON, D.J. Transformation Kinetics of Uranium-Molybdenum Alloys. ***Trans. Am. Soc. Metals***, v. 49, p. 598, 1957.
27. SNELGROVE, J. L.; HOFMAN, G. L.; TRYBUS, C. L.; WIENCEK, T. C. Development of very-high-density low-enriched-uranium fuels. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, Bruges, Belgium, February 5-7, 1997.
28. HAMY, J. M.; LANGUILLE, A.; GUIGON, B; LEMOINE, P.; JAROUSSE, C.; BOYARD, M.; EMIN, J. L. Status as of march 2002 of the UMo development program. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, Ghent, Belgium, March 17-20, 2002.
29. ADELFGANG, P.; ALVAREZ, L.; BOERO, N.; CALABRESE, R.; DE LA FUENTE, M.; ECHENIQUE, P.; MARKIEWICZ, M.; PASQUALINI, E.; PÉREZ, A.; PIAZZA, A.; RUGGIRELLO, G.; TABOADA, H. RERTR Activities in Argentina. International RERTR Meeting. Las Vegas, USA, October 1-6, 2000.
30. CHERNYSHOV, V.; ADEN, V.; KARTASHOV, E.; LIKICHEV, V. Russian RERTR Program. International RERTR Meeting. Bariloche, Argentina, November 3-8, 2002.

31. RODIER, M.; ILTIS, X.; MAZAUDIER, F.; CORNEN, M.; DUBOIS, S. Effects of Ti in the UMo/Al system: Preliminary results. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, Lyon, France, March 11-15, 2007.
32. PARK, J.; RYU, OH, S.; LEE, D.; KIM, C.; KIM, Y.; HOFMAN, G. Interdiffusion behaviors of U-Mo-Zr/Al-Si. International RERTR Meeting. Cape Town, South Africa, 29 October - 2 November, 2006.
33. KIM, Y. S.; HOFMAN, G. L.; RYU, H. J.; REST, J. Thermodynamic and metallurgical considerations to stabilizing the interaction layers of U-Mo/Al dispersion fuel. International RERTR Meeting. Boston, USA, November 6-10, 2005.
34. KIM, Y.; RYU, H.; HOFMAN, G.; HAYES, S.; FINLAY, M.; WACHS, D.; CHANG G. Interaction layer growth correlations for (U-Mo)/Al and Si-added (U-Mo)/Al dispersion fuels. International RERTR Meeting. Cape Town, South Africa, 29 October - 2 November, 2006.
35. HOFMAN, G.; KIM, Y.; RYU, H.; FINLAY M. Results of low-enriched U-Mo miniplates from RERTR-6 and -7A irradiation. International RERTR Meeting. Cape Town, South Africa, 29 October - 2 November, 2006.
36. PALANCHER, H.; MARTIN, P.; SABTHIER, C.; DUBOIS, S.; VALOT, C.; WIESCHALLA, N.; RÖHRMOSER, A.; PETRY, W.; JAROUSSE, C.; GRASSE, M.; TUCOULOU, R. Heavy ion irradiation as a method to discriminate research reactor fuels. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, Sofia, Bulgaria, April 30 – May 3, 2006.
37. MIRANDOU, M.; ARICÓ, S.; GRIBAUDO, L.; BALART, S. Out-of-Pile diffusion studies between U-7wt%Mo and Al-Si alloys. International RERTR Meeting. Boston, USA, November 6-10, 2005.
38. CORNEN, M.; MAZAUDIER, F.; ILTIS, X.; RODIER, M.; DUBOIS, S.; LEMOINE, P. Physico-chemical aspects of modified UMo/Al interaction. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, France, March 11-15, 2007.
39. MEYER, M.; AMBROSEK, R.; CHANG, G.; CLARK, C.; FINLAY, M.; HOFMAN, G.; KEISER, D.; MEYER, D.; MOORE, G.; MOORE, K.; SNELGROVE, J.; WACHS, D.; WIENCEK, T.; WIGHT, J.; WILLIAMS J. Progress in the U.S. RERTR fuel development program. International RERTR Meeting. Cape Town, South Africa, 29 October - 2 November, 2006.

40. DUBOIS, S.; MAZAUDIER, F.; PALANCHER, H.; MARTIN, P.; SABATHIER, C.; RIPERT, M.; LEMOINE, P.; JAROUSSE, C.; GRASSE, M.; WIESCHALLA, N.; PETRY, W. Development of dispersed UMo fuel : an oxide layer as a protective barrier of the UMo particles. International RERTR Meeting. Cape Town, South Africa, 29 October - 2 November, 2006.
41. TRYBUS, C. L.; MEYER, M. K.; CLARK, C. R.; WIENCEK, T. C.; McGANN, D. J. Design and fabrication of high density uranium dispersion fuels. International RERTR Meeting. Jackson Hole, USA, October 5-10, 1997.
42. INSTITUTO DE ENERGIA ATOMICA. **“Reator de Pesquisas”**. São Paulo:IEA, 1958, (IEA-Pub-1).
43. PASQUALETO, H. **Níveis de radiação na superfície livre da piscina do reator IEA-R1**. 1978, Dissertação (Mestrado) - Instituto de Energia Atômica, São Paulo, (IEA-Dt-064).
44. CAPOCHI, J.D.T., CINTRA, S.H.L., GENTILE, E.F. Estudo experimental de fabricação de elementos combustíveis planos contendo núcleos de cermetes. ***Metalurgia***, v.24, p. 201-212, 1968.
45. CAPOCHI, J.D.T., CINTRA, S.H.L., GENTILE, E.F. Estudo de fabricação de elementos combustíveis planos com núcleos de cermetes de 65% U_3O_8 - 35% Al revestidos com liga de alumínio. ***Metalurgia***, v.24, p. 913-919, 1968.
46. CINTRA, S.H.L., GENTILE, E.F., NISHIOKA I., ABRÃO, M.A.S., AMBROZIO, F.F. Análise de Variáveis do Processo de Fabricação de Placas Combustíveis com Núcleos de Dispersões Al- U_3O_8 . ***Metalurgia***, v.26, p. 31-44, 1970.
47. SOUZA SANTOS, T.D., HAYDT, H.M., FREITAS, C.T. Principais característicos metalúrgicos dos elementos combustíveis produzidos para o Reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear. ***Metalurgia***, v.21, n.97,dezembro, p. 909-921, 1965.
48. SOUZA SANTOS, T.D., HAYDT, H.M., FREITAS, C.T. Fabricação de elementos combustíveis para Reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear. ***Metalurgia***, v.21, n.90, maio, p. 269-376, 1965.
49. SILVA, J. E. R.; SILVA, A. T.; TERREMOTO, L. A. A.; DURAZZO, M., Program for in-Pile Qualification of High Density Silicide Dispersion Fuel at IPEN/CNEN-SP. In: INTERNATIONAL NUCLEAR ATLANTIC CONFERENCE - INAC 2009, Rio de Janeiro. ***International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2009***. Rio de Janeiro, Associação Brasileira de Energia Nuclear - ABEN, v.1, p.1-8, 2009.

50. SILVA NETO, J. B.; URANO de CARVALHO, E. F.; DURAZZO, M.; RIELLA, H. G., Obtenção de UF_4 a partir de efluentes fluoretados gerados na reconversão do UF_6 . **Revista Brasileira de Pesquisa e Desenvolvimento**, v.10, n.2, p. 32-38, 2008.
51. SILVA, A. M. S.; DURAZZO, M.; CARVALHO, E. F. U.; RIELLA, H. G., Fabrication of U_3Si_2 powder for fuels used in IEA-R1 Nuclear Research Reactor. **Materials Science Forum**, v.591-593, p. 194-199, 2008.
52. DURAZZO, M.; CARVALHO, E. F. U., SALIBA-SILVA, A. M.; SOUZA, J.A. B.; RIELLA, H. G., Fabricação de elementos combustíveis a base de U_3Si_2 no Brasil. **Revista Brasileira de Pesquisa e Desenvolvimento**, v.9, n.1, p. 18-28, 2007.
53. SALIBA-SILVA, A. M.; MARTINS, I. C.; OLIVEIRA, E. T.; PEREIRA, J...; DURAZZO, M., Estudos térmicos e físicos para viabilizar a redução metalotérmica de urânio metálico a partir de UF_4 . **Revista Brasileira de Pesquisa e Desenvolvimento**, v.8, n.3, p. 85-90, 2006.
54. DURAZZO, M.; CARVALHO, E. F. U.; SALIBA-SILVA, A. M.; SOUZA, J. A. B.; RIELLA, H. G., **Development of LEU Silicide Fuel Element for the IPEN Research Reactor**. In: RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT - RRFM 2008, 2008, Hamburg. Transactions of RRFM, p. 342-348, March 02-05, 2008.
55. DURAZZO, M.; URANO de CARVALHO, E. F.; SALIBA-SILVA, A. M.; SOUZA, J. A. B. RIELLA, H. G., Current status of U_3Si_2 fuel elements fabrication in Brazil. In: 2007 INTERNATIONAL RERTR MEETING (RERTR-2007), Prague, Illinois, Argonne National Laboratory, 2007. **Proceedings International RERTR Meeting**.
56. OLIVEIRA, F. B. V., DURAZZO, M., CARVALHO, E. F. U., SALIBA-SILVA, A.M., RIELLA, H.G., Powder formation of γ uranium-molybdenum alloys via hydration-dehydration, In: *International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors*, Czech Republic, Prague, 23-27 September, 2007. **Proceedings RERTR2007**.
57. DURAZZO, M., ROCHA, C. J., MESTNIK FILHO, J., LEAL NETO, R. M., Powdering ductile U-Mo alloys for nuclear dispersion fuels. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, 14th, March 21-25, 2010, Marrakesh, Morocco, **Proceedings Transactions of RRFM 2010**.

58. OSSO JUNIOR, J. A.; TEODORO, R.; DIAS, C. R. B. R.; BEZERRA, R.R.L.; VILLELA, J. L.; CORREIA, PERROTTA, J. A.; PEREIRA, G. A.; ZAPPAROLI Jr, C. L.; MENGATTI, J. Brazilian strategies to overcome molybdenum crisis: present and future perspectives of the Multipurpose Research Reactor. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, 15TH, March 20-24, Rome, Italy, 2011.
59. OBADIA, I. J.; PERROTTA, J. A. A sustainability analysis of the Brazilian Multipurpose Reactor project. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, 14th, march 21-25, 2010, Marrakesh, Marocco, **Proceedings Transactions of RRFM 2010**.
60. KNIGHT, R.W., MORIN, R.A. ***Fabrication Procedures for Manufacturing High Flux Isotope Reactor Fuel Elements II***, Oak Ridge National Laboratory, 1996.
61. LEAL NETO, R. M. ***Estudo de processos de obtenção de pó de U_3O_8 empregado em elementos combustíveis do tipo MTR***. 1989. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN/CNEN-SP, São Paulo.
62. LEAL NETO, R.M; RIELLA, H.G Métodos de obtenção de pó de U_3O_8 empregado em elementos combustíveis do tipo MTR. In: 34. CONGRESSO BRASILEIRO DE CERAMICA, 20-23 de maio, 1990, Blumenau, SC.
63. MARCONDES, G.H; RIELLA, H.G; DURAZZO, M Obtenção de pó de U_3O_8 para combustíveis tipo MTR a partir do tricarbonato de amônio e uranilo - TCAU. In: CONGRESSO BRASILEIRO DE CERAMICA, 43 CONGRESSO DE CERAMICA DO MERCOSUL, 4, 2-5 jun, 1999, Florianópolis, SC. **Anais...** Sao Paulo: Associação Brasileira de Cerâmica, p. 40001-40013, 2000.
64. VIEIRA, E., SANTOS, G. R. T., OLIVEIRA, F. S., LIMA, R. M., **Preparação de pós**, São Paulo: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Centro de Combustível Nuclear, 2003, (IT-CCN-09.126.03), (Acesso Restrito).
65. ROSA da SILVA, J. E., NEGRO, M. L. M., OLIVEIRA, F. B. V., **Especificação do briquete de $U_3Si_2 - Al$ para a placa combustível de testes ($4,8gU/cm^3$)**, São Paulo: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Centro de Engenharia Nuclear, 2011, (P&D.CENC.CCN.003.00 RELT.006.00), (Acesso Restrito).
66. SILVA, D. G., SANTOS, O., LIMA, R. M., **Tratamento superficial de componentes estruturais de placa combustível**, São Paulo: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Centro de Combustível Nuclear, 2003, (IT-CCN-09.163.01), (Acesso Restrito).

67. SILVA, D. G., LIMA, R. M., Laminação de placas combustíveis de U_3O_8 -Al e U_3Si_2 -Al, São Paulo: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Centro de Combustível Nuclear, 2004, (PO-CCN-09.147), (Acesso Restrito).
68. Elemento Combustível IEA-R1, **Placa combustível interna**, São Paulo: Comissão Nacional de Energia Nuclear, 1988, (R19-IPN-213PR-2DJ-003), (Acesso Restrito).
69. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Research reactor core conversion guidebook.v. 4: Fuels. (Appendices I-K). IAEA, Vienna, 1992. IAEA-TECDOC-643.
70. MARTIN, M. M. Parametric Study of the deformation of U_3O_8 -Al and UAl_x -Al dispersion fuel plates. Fuel and material development program QPR for period ending December, 31, 1969. Oak Ridge, Tn., Oak National Lab., May 1970. p.277-282. ORNL-4520.
71. MARTIN M. M.; MARTIN W. R. Fabrication voids in aluminum-based fuel dispersions, Oak Ridge National Laboratory, Metals and Ceramics Division, Oct., 1970. ORNL-4611.
72. COPELAND, G. L.; MARTIN, M.M. Development of high uranium-loaded U_3O_8 - Al fuel plates. **Nuclear Technology**, v. 56 n. 3, p. 547-552, 1982.