INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**ESTUDO DO PROCESSAMENTO DO COMBUSTÍVEL $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ VIA
MISTURA MECÂNICA COM REUTILIZAÇÃO DE REJEITOS DO PROCESSO DE
FABRICAÇÃO E ADITIVO DE DENSIFICAÇÃO**

LAURO ROBERTO DOS SANTOS

**Tese apresentada como parte dos requisitos
para obtenção do grau de Doutor em Ciências
na Área de Tecnologia Nuclear – Materiais.**

Orientador:

Dr. Humberto Gracher RIELLA

SÃO PAULO

2009

A Lauro, meu pai, pelo exemplo.
(in memoriam)

AGRADECIMENTOS

Ao Instituto de Pesquisa Energéticas e Nucleares pela oportunidade da realização deste trabalho.

Ao Dr. Humberto Gracher RIELLA, pela dedicação dispensada, pela orientação, sugestões e apoio na realização deste trabalho.

A Dra. Elita Urano de Carvalho pela colaboração, sugestões e estímulo durante todo o desenvolvimento do trabalho.

Ao Dr. Michelangelo Durazzo pelas discussões, pelas críticas construtivas e por todas as sugestões que ajudaram a enriquecer o trabalho.

Ao técnico Cláudio Padovani pela sua dedicada colaboração no desenvolvimento de todo o processo objeto deste trabalho.

A todos que de alguma maneira, direta ou indiretamente contribuíram para a realização do trabalho.

De maneira especial quero agradecer ao **Centro Tecnológico da Marinha – CTMSP** pela infra-estrutura oferecida por meio do **Laboratório de Materiais Nucleares – LABMAT**, sem a qual seria impossível a realização deste trabalho.

A todos os funcionários do **Laboratório de Materiais Nucleares – LABMAT** que com seu trabalho, sugestões e estímulo colaboraram de maneira marcante na realização deste trabalho.

ESTUDO DO PROCESSAMENTO DO COMBUSTÍVEL $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ VIA MISTURA MECÂNICA COM REUTILIZAÇÃO DE REJEITOS DO PROCESSO DE FABRICAÇÃO E ADITIVO DE DENSIFICAÇÃO

LAURO ROBERTO DOS SANTOS

RESUMO

No ciclo do combustível nuclear as etapas de reprocessamento e estocagem do combustível “queimado”, seja ela de modo provisório ou definitivo, demandam um alto custo além de problemas ambientais. Uma estratégia para minorar estes problemas é adoção de medidas que diminuam a quantidade de rejeitos. A utilização de veneno queimável integrado a base de gadolínio é uma medida que contribui para esse objetivo. A função do veneno queimável é controlar a população de nêutrons no início da vida do reator ou no início do ciclo de queima de cada recarga do combustível, podendo prolongar o tempo de recarga do combustível, além de se poder operar o reator com maiores taxas de queima, otimizando com isso o uso do combustível.

O processo de fabricação de pastilhas de veneno queimável integrado $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$, gera rejeito que, na medida do possível, deve ser reaproveitado.

A incorporação do Gd_2O_3 no UO_2 exige a utilização de um aditivo para que a densidade especificada das pastilhas de combustível seja obtida.

O objetivo deste trabalho é o desenvolvimento do processo de obtenção do veneno queimável integrado $\text{UO}_2 - 7\%\text{Gd}_2\text{O}_3$ com o auxílio do aditivo de densificação, hidróxido de alumínio ($\text{Al}(\text{OH})_3$) e reutilizando-se os rejeitos do processo de fabricação, via mistura mecânica. O teor de 7 % de Gd_2O_3 está fundamentado para a concepção do tipo de reator PWR como, por exemplo, Angra 2.

Os resultados mostram que o aditivo ($\text{Al}(\text{OH})_3$) é muito eficiente para promover a densificação das pastilhas com reciclo de até 10 %, e que a

concentração de 0,20 % de Al(OH)_3 é o valor indicado em escala industrial, principalmente quando se reutiliza o rejeito na forma de U_3O_8 obtido da calcinação de pastilhas sinterizadas. Isto é particularmente interessante, pois é após as etapas de sinterização e retificação das pastilhas, que se tem a geração do maior volume de rejeito.

UO₂-7%Gd₂O₃ FUEL PROCESS DEVELOPMENT BY MECHANICAL BLENDING WITH REPROCESSING OF WASTE PRODUCTS AND USAGE OF DENSIFICATION ADDITIVE

LAURO ROBERTO DOS SANTOS

ABSTRACT

In the nuclear fuel cycle, reprocessing and storage of "burned" fuels, either temporary or permanent, demand high investments and, in addition, can potentially generate environmental problems. A strategy to decrease these problems is to adopt measures to reduce the amount of waste generated. The usage of integrated burnable poison based on gadolinium is a measure that contributes to achieve this goal. The reason to use burnable poison is to control the neutron population in the reactor during the early life of the fresh reactor core or the beginning of each recharging fuel cycle, extending its cycle duration. Another advantage of using burnable poison is to be able to operate the reactor with higher burning rate, optimizing the usage of the fuel.

The process of manufacturing UO₂-Gd₂O₃ integrated burnable fuel poison generates waste that, as much as possible, needs to be recycled.

Blending of Gd₂O₃ in UO₂ powder requires the usage of a special additive to achieve the final fuel pellet specified density.

The objective of this work is to develop the process of obtaining UO₂ - 7% Gd₂O₃ integrated burnable poison using densification additives, aluminum hydroxide (Al(OH)₃), and reprocessing manufacturing waste products by mechanical blending. The content of 7%- Gd₂O₃ is based on commercial PWR reactor fuels – Type Angra 2.

The results show that the usage of Al(OH)₃ as an additive is a very effective choice that promotes the densification of fuel pellets with recycle up to 10%. Concentrations of 0,20 % of Al(OH)₃ were found to be the indicated amount on an

industrial scale, specially when the recycled products come from U_3O_8 obtained by calcination of sintered pellets. This is particularly interesting because it is following the steps of sintering and rectifying of the pellets, which is generating the largest amounts of recycled material.

SUMÁRIO

Justificativas, objetivos e plano geral da tese	22
1. Introdução	24
1.1 Controle da reatividade dos reatores nucleares	26
1.2 Venenos queimáveis	29
1.2.1 Considerações gerais	29
1.2.2 Aplicação dos venenos queimáveis	31
1.2.3 Tipos de venenos queimáveis	34
1.2.4 Características do gadolínio	37
1.2.5 Principais processos de fabricação do combustível $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$	44
1.2.5.1 Processo sol-gel e coprecipitação	44
1.2.5.2 Processo por mistura mecânica	48
1.3 Reutilização de rejeitos	53
2. Objetivo e fundamentação do trabalho de pesquisa	56
2.1 Objetivos específicos	62
3. Metodologia	63
4. Procedimento experimental	64
4.1 Caracterização físico-química	64

4.2 Preparação das misturas	70
4.3 Condições do processo de fabricação e principais especificações físicas das pastilhas sinterizadas de (U-Gd)O ₂	72
4.3.1 Condições do processo de fabricação	72
4.3.2 Principais especificações físicas das pastilhas sinterizadas de (U-Gd)O ₂	72
5. Análise e Caracterização	73
5.1 Características físicas das pastilhas sinterizadas de UO ₂	73
5.2 Planilhas com o dimensional e características físicas das pastilhas verdes e sinterizadas utilizando Al(OH) ₃ e os ciclos	75
5.3 Características físicas das pastilhas sinterizadas de (U-Gd)O ₂ com aditivo Al(OH) ₃ e sem ciclo	81
5.4 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 10 com ciclo U ₃ O ₈ ps	84
5.5 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 15 com ciclo U ₃ O ₈ ps	85
5.6 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 20 com ciclo U ₃ O ₈ ps	86
5.7 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 25 com ciclo U ₃ O ₈ ps	87
5.8 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 30 com ciclo U ₃ O ₈ ps	88

5.9 Gráfico: densidade hidrostática x $\text{Al}(\text{OH})_3$ para o reciclo U_3O_8 ps	89
5.10 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 10 com reciclo U_3O_8 pv	92
5.11 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 15 com reciclo U_3O_8 pv	93
5.12 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 20 com reciclo U_3O_8 pv	94
5.13 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 25 com reciclo U_3O_8 pv	95
5.14 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 30 com reciclo U_3O_8 pv	96
5.15 Gráfico: densidade hidrostática x $\text{Al}(\text{OH})_3$ para o reciclo U_3O_8 pv	97
5.16 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 10 com reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp	100
5.17 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 15 com reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp	101
5.18 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 20 com reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp	102
5.19 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 25 com reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp	103
5.20 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 30 com reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp	104
5.21 Gráfico: densidade hidrostática x $\text{Al}(\text{OH})_3$ para o reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp	105
5.22 Métodos de superfície de resposta	107

5.23 Planilha com as características físicas das pastilhas submetidas ao teste de ressinterização	112
5.24 Planilha com as características físicas das pastilhas após a retificação	114
5.25 Análise química das pastilhas sinterizadas	117
5.26 Ataque químico	121
6. Comentários e Conclusões	126
6.1 Teor de Al residual	126
6.2 Comentários finais e sugestões para trabalhos futuros	127
6.3 Conclusões	131
7. Referências bibliográficas	133

ÍNDICE DE TABELAS

Tabela 1 – Comparação entre tipos de venenos queimáveis integrados disponíveis (IAEA-Tecdoc-844, 1995)	38
Tabela 2 – Concentração e seção de choque para nêutrons térmicos dos isótopos de Gd e da mistura natural (IAEA-Tecdoc-844, 1995).	37
Tabela 3 - Características dos isótopos de Gd gerado pela fissão do ^{235}U por nêutrons térmicos e pelo decaimento dos produtos de fissão (Pshenin, V., et al., 1990; IAEA-Tecdoc-844, 1995)	40
Tabela 4 – Características físicas e dimensionais das pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ com o reaproveitamento dos rejeitos sem o uso de aditivo.	58
Tabela 5 – Características físicas das pastilhas sinterizadas de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com reciclo e sem o uso do $\text{Al}(\text{OH})_3$.	60
Tabela 6 - Análise química do pó de UO_2	66
Tabela 7 - Análise física do pó de UO_2	67
Tabela 8 - Análise química do pó de Gd_2O_3	67
Tabela 9 - Análise física do pó de Gd_2O_3	68
Tabela 10 - Análise química do pó de U_3O_8 obtido a partir da calcinação de pastilhas verdes e sinterizadas	68
Tabela 11 - Análise física do pó de U_3O_8 obtido a partir da calcinação de pastilhas verdes e sinterizadas	68
Tabela 12 - Análise química do pó de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ obtido a partir da coprecipitação do Gd com U na forma de DUA.	69

Tabela 13 - Análise física do pó de UO_2 obtido a partir da coprecipitação do Gd com U na forma de DUA. 69

Tabela 14 – Valores dimensionais, de densidades e porosidade aberta das pastilhas de UO_2 -7% Gd_2O_3 com o uso de reciclos e 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ 76

Tabela 15 – Valores dimensionais, de densidades e porosidade aberta das pastilhas de UO_2 -7% Gd_2O_3 com o uso de reciclos e 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ 77

Tabela 16 – Valores dimensionais, de densidades e porosidade aberta das pastilhas de UO_2 -7% Gd_2O_3 com o uso de reciclos e 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ 78

Tabela 17 – Valores dimensionais, de densidades e porosidade aberta das pastilhas de UO_2 -7% Gd_2O_3 com o uso de reciclos e 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ 79

Tabela 18 – Valores dimensionais, de densidades e porosidade aberta das pastilhas de UO_2 -7% Gd_2O_3 com o uso de reciclos e 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ 80

Tabela 19 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 -7% Gd_2O_3 somente com o uso do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ 81

Tabela 20 – Características físicas das pastilhas sinterizadas de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 ps 84

Tabela 21 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 ps. 85

Tabela 22 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 ps. 86

Tabela 23 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 ps. 87

Tabela 24 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 ps. 88

Tabela 25: Diâmetro médio equivalente de poros e grãos em função da concentração do reciclo U_3O_8 ps e do aditivo de densificação 91

Tabela 26 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 pv 92

Tabela 27 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 pv 93

Tabela 28 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 pv. 94

Tabela 29 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 pv. 95

Tabela 30 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 pv. 96

Tabela 31: Diâmetro médio equivalente de poros e grãos em função da concentração do reciclo U_3O_8 pv e do aditivo de densificação 99

Tabela 32 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de UO_2 cp. 100

Tabela 33 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de UO_2 cp. 101

Tabela 34 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de UO_2 cp.	102
Tabela 35 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de UO_2 cp.	103
Tabela 36 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de UO_2 cp.	104
Tabela 37 - Diâmetro médio equivalente de poros e grãos em função da concentração do reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp e do aditivo de densificação	107
Tabela 38 - Comparação da densidade hidrostática antes e após a ressinterização	113
Tabela 39 - Dimensional e comparação de algumas características das pastilhas antes e após a retificação	115
Tabela 40 – Análise química das pastilhas sinterizadas produzidas a partir das misturas MM 10 (0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$) e MM 15 (0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$)	118
Tabela 41 – Análise química das pastilhas sinterizadas produzidas a partir das misturas MM 20 (0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$) e MM 25 (0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$)	119
Tabela 42 – Análise química das pastilhas sinterizadas produzidas a partir das misturas MM 30 (0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$)	120
Tabela 43 - Concentrações de Alumínio	126

ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 1 – Variação da condutividade térmica em função da concentração de gadolína e temperatura (Thornton, T. A., et al., 1982)	42
Figura 2 – Variação da condutividade térmica em função da concentração de gadolína e temperatura (Chotard, A., et al., 1986)	42
Figura 3 – Variação da condutividade térmica em função da concentração de gadolína e temperatura (Skogen, R. B., et al., 1985)	43
Figura 4 – Variação da condutividade térmica em função da concentração de gadolína e temperatura (Fukushima, et al., 1982)	43
Figura 5 - Fluxograma para a produção de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ via sol-gel	46
Figura 6 - Fluxograma para a produção de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ via coprecipitação com TCAU ou DUA	47
Figura 7 - Fluxograma para a produção de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ a partir do UO_2 obtido pela via úmida	50
Figura 8 - Fluxograma para a produção de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ a partir do UO_2 obtido pela via seca	51
Figura 9 - Fluxograma típico do processo de obtenção de pastilhas de UO_2	55
Figura 10 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 10 % U_3O_8 ps e sem aditivo	59
Figura 11 – Tamanho médio de poros de uma pastilha obtida sem aditivo com 3 % do reciclo U_3O_8 ps	61
Figura 12 - Tamanho médio de grãos de uma pastilha obtida sem aditivo com 3 % do reciclo U_3O_8 ps	61

Figura 13 - Fluxograma do procedimento experimental	64
Figura 14 - Fluxograma para preparação das misturas	71
Figura 15 - Pastilha de UO_2 puro	74
Figura 16 - Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ (sem a adição de	82
Figura 17 – Efeito da concentração do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ na sinterização das pastilhas de UO_2 -7% Gd_2O_3	83
Figura 18 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 ps	85
Figura 19 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 ps	86
Figura 20 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 ps	87
Figura 21 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 ps	88
Figura 22 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 ps	89
Figura 23 – Variação da densidade hidrostática com $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com o reciclo U_3O_8 ps	90
Figura 24 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 10 % U_3O_8 pv	93
Figura 25 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 pv	94
Figura 26 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 pv	95
Figura 27 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 pv	96
Figura 28 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 pv	97
Figura 29 – Variação da densidade hidrostática com $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com o reciclo U_3O_8	

pv

98

Figura 30 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp
101

Figura 31 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp
102

Figura 32 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp
103

Figura 33 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp
104

Figura 34 – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp
105

Figura 35 – Variação da densidade hidrostática com $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com o reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp
106

Figura 36 – Gráfico das curvas de nível da superfície de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ e da % do reciclo U_3O_8 ps
109

Figura 37 – Gráfico da superfície tridimensional de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ e da % do reciclo U_3O_8 ps
109

Figura 38 – Gráfico das curvas de nível da superfície de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ e da % do reciclo U_3O_8 pv
110

Figura 39 – Gráfico da superfície tridimensional de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ e da % do reciclo U_3O_8 pv
110

Figura 40 – Gráfico das curvas de nível da superfície de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo Al(OH)_3 e da % do reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp 111

Figura 41 – Gráfico da superfície tridimensional de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo Al(OH)_3 e da % do reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp 111

Figura 42 – Efeito da concentração dos reciclos no processo de sinterização das pastilhas de $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ 116

Figura 43 – As imagens **A** e **B** são do ataque químico de uma pastilha obtida com 0,10 % de Al(OH)_3 121

Figura 44 – As imagens **C** e **D** são do ataque químico de uma pastilha obtida com 0,15 % de Al(OH)_3 122

Figura 45 – As imagens **E** e **F** são do ataque químico de uma pastilha obtida com 0,20 % de Al(OH)_3 122

Figura 46 – As imagens **G** e **H** são do ataque químico de uma pastilha obtida com 0,25 % de Al(OH)_3 122

Figura 47 – As imagens **I** e **J** são do ataque químico de uma pastilha obtida com 0,30 % de Al(OH)_3 123

Figura 48 A – Micrografia obtida de uma pastilha obtida a partir da concentração de 0,20 % Al(OH)_3 124

Figura 48 B – Micrografia obtida de uma pastilha obtida a partir da concentração de 0,15 % Al(OH)_3 124

Figura 48 C – Micrografia obtida de uma pastilha obtida a partir da concentração de 0,25 % Al(OH)_3 125

Figura 49 A – Imagem do ataque químico em uma pastilha obtida com 0,25 % de Al(OH)_3 125

Figura 49 B – Imagem do ataque químico em uma pastilha obtida com 0,15 % de Al(OH)_3 126

Figura 50 A – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,10 % de Al(OH)_3 e 7 % U_3O_8 ps ressaltando o Al residual 127

Figura 50 B – Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,30 % de Al(OH)_3 e 7 % U_3O_8 ps ressaltando o Al residual 128

LISTA DE SÍMBOLOS

MM10, 15, 20, 25, 30 – mistura mecânica com 0,10; 0,15; 0,20; 0,25 e 0,30 % de Al(OH)_3 respectivamente

h – altura

d – diâmetro

m – massa

d.v. – densidade verde

p.c. – pressão de compactação

d.g. - densidade geométrica

d.h. – densidade hidrostática

p.a. – porosidade aberta

M – média

S – desvio padrão

U₃O₈ ps - U₃O₈ obtido a partir de pastilhas sinterizadas

U₃O₈ pv - U₃O₈ obtido a partir de pastilhas verdes

(U,Gd)O₂ cp – (U,Gd)O₂ obtido a partir da coprecipitação do Gd com U na forma de DUA

d. h. r. – densidade hidrostática após a ressinterização

p. a. r. – porosidade aberta após a ressinterização

var. máx. – diferença da **d. h. r.** pela **d. h.**

Rugos. – rugosidade (Ra)

d. r. – diâmetro após a retificação

Justificativas, objetivos e plano geral da tese

Para controlar a reação de fissão dentro do reator nuclear há a necessidade de fazer uso de alguns controles, principalmente das barras de controle, barras de segurança e do controle fixo de longo prazo. O controle fixo de longo prazo pode ser realizado de duas maneiras: na primeira os materiais absorvedores são colocados de forma fixa em pontos estratégicos no núcleo do reator, composto de uma vareta separada da vareta do combustível, contendo em seu interior somente o absorvedor e seu diluente. Este tipo de controle é conhecido como veneno queimável heterogêneo ou discreto. Outra maneira é combinar o absorvedor com o combustível numa mesma vareta. Este tipo de controle é conhecido como “veneno queimável homogêneo ou integrado”. O objetivo do controle fixo de longo prazo é de uniformizar a reatividade global do núcleo, sendo projetado para ser consumido a uma taxa aproximadamente igual ao do combustível.

Esta tese de doutorado tem como objetivo principal o desenvolvimento de um processo para a obtenção do “veneno queimável integrado”, $(\text{U-Gd})\text{O}_2$ contendo 7 % de Gd_2O_3 o qual é utilizado nos reatores tipo PWR (Pressurized Water Reactor) como o de Angra 2.

O trabalho foi desenvolvido fazendo-se uso de um aditivo de densificação, $\text{Al}(\text{OH})_3$, em várias concentrações, num total de 5: 0,10 %, 0,15 %, 0,20 %, 0,25 % e 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$, além de estudar o reaproveitamento de três tipos de rejeitos de processo, dois na forma de U_3O_8 e um forma de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ no qual o Gd é coprecipitado com o U na forma de DUA (Diuranato de Amônio e Uranilo). Serão utilizadas 3 diferentes concentrações para cada rejeito: 3, 7 e 10 %. As principais fontes de rejeitos são: a prensa na forma de pastilhas verdes, inspeção visual final, realizada após a retificação, na forma de pastilhas sinterizadas além de pós e/ou pastilhas que estejam fora das especificações devido a algum tipo de contaminação.

No caso das pastilhas verdes e sinterizadas, estas foram calcinadas a U_3O_8 que retornou ao processo na etapa de homogeneização. Quanto ao pó e/ou

pastilhas que estavam fora das especificações por contaminação, estes foram atacados com HNO_3 , formando uma solução de $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ impuro. Esta solução foi purificada por meio de extração com solventes, obtendo-se uma solução de $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ puro. Deve-se fazer o acerto da concentração de Gd_2O_3 , visto que durante a purificação ocorre uma perda do Gd. A partir da solução de $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ puro, já com a concentração de Gd corrigida, fez-se a precipitação do $\text{U}_2\text{O}_7(\text{NH}_4)_2$ (Diuranato de Amônio e Uranilo – DUA). Produziu-se então o $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ por meio da redução deste DUA. Este $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ retornou ao processo também na etapa de homogeneização.

Quanto ao aditivo de densificação, $\text{Al}(\text{OH})_3$, seu limite superior foi definido de maneira que a quantidade de Al residual na pastilha sinterizada, produto final, não fosse superior àquele estabelecido nas especificações (250 $\mu\text{g/g}$ U).

Foram preparadas 50 misturas diferentes variando-se as concentrações do UO_2 , do $\text{Al}(\text{OH})_3$ e dos recírculos mantendo-se a concentração do Gd_2O_3 em 7 %. Todas as misturas foram prensadas e sinterizadas numa mesma condição. As pastilhas foram analisadas física e quimicamente comparando-se os resultados com os valores especificados. Foi realizado também o teste de ressinterização para se verificar a contração das pastilhas quando submetidas à alta temperatura por um longo tempo.

Esses ensaios e análises serviram como base para se determinar as melhores condições de processo de produção, em escala industrial, do veneno queimável $(\text{U-Gd})\text{O}_2$ com 7 % de Gd_2O_3 utilizado nos reatores PWR.

1. Introdução

Desde 1942, quando foi concebido o primeiro reator nuclear por Enrico Fermi, muitos processos têm sido apresentados para se fazer o controle dos reatores. Um dos objetivos principais desses processos é o desenvolvimento de materiais absorvedores. O controle dessa primeira reação nuclear foi realizado por meio de barras construídas em aço contendo boro e cádmio. A partir dessa época muito se avançou no controle dos reatores nucleares e a utilização do gadolínio tem sido decisiva, primeiramente em reatores de água fervente, tipo BWR (Boiling Water Reactor) e posteriormente, em reatores de água pressurizada, tipo PWR (Pressurized Water Reactor). O desenvolvimento dessa área tem levado a otimização do combustível com conseqüente redução de rejeitos radioativos.

O projeto de reatores nucleares bem como seus sistemas de controle é um problema complexo e exige o conhecimento dos processos físicos de interação dos nêutrons com os núcleos atômicos dos materiais que constituem o núcleo do reator e seu transporte em meios materiais. A física dos reatores é a área da engenharia nuclear que estuda estas interações e o transporte de nêutrons num reator nuclear. Para se projetar o controle de um reator utilizam-se os cálculos de seus parâmetros dinâmicos durante a sua vida útil, por meio da análise da população de nêutrons no seu núcleo e, conseqüentemente, da distribuição de potência, definindo a estratégia operacional, o que inclui a estratégia de controle desta população de nêutrons (VLADIMIR , 2002; PORTA, 1999; MOROGOV, 2000).

Quando um núcleo atômico pesado absorve um nêutron pode ocorrer a divisão deste em dois ou mais núcleos leves num processo conhecido como fissão nuclear. Além dos produtos de fissão são emitidos no processo de 2 a 3 novos nêutrons que poderão induzir de 2 a 3 novas fissões, produzindo de 4 a 9 novos nêutrons, os quais poderão dar origem a novas fissões que poderão produzir de 8 a 27 novos nêutrons, configurando então uma reação em cadeia. Manter essa reação sob controle é o princípio de um reator nuclear. A manutenção da reação em cadeia depende do balanço dos nêutrons produzidos nas fissões e os nêutrons que não produzem novas fissões, ou seja, nêutrons que escapam ou são absorvidos. Esse balanço pode ser expresso pelo fator de multiplicação k , que indica a relação entre o

número de nêutrons existentes no sistema num determinado ciclo de fissão e o número de nêutrons existentes no ciclo de fissão anterior. Se $k > 1$ o sistema é supercrítico, se $k = 1$ o sistema é crítico e se $k < 1$ o sistema é subcrítico. A quantidade média de nêutrons emitidos por uma fissão é constante e é característico de cada núcleo físsil. No caso do ^{235}U o número médio de nêutrons emitidos é de 2,42. Pelo fato desse valor não poder ser controlado, o balanço de nêutrons dentro do reator depende fundamentalmente de seu escape e de sua absorção pelos materiais utilizados no núcleo do reator.

A reatividade de um reator, que expressa o quanto o fator de multiplicação k é maior do que 1, não é constante, e diminui gradualmente durante sua vida útil, devido principalmente ao consumo do combustível e formação de produtos de fissão que absorvem nêutrons, por exemplo, ^{135}Xe , ^{149}Sm e ^{151}Sm , além de outros fatores como aquecimento do combustível e do moderador. Com o objetivo de compensar todos esses efeitos, um reator nuclear deve ser projetado de maneira a se obter um excesso de reatividade no início da operação, para garantir que o mesmo estará crítico em qualquer instante de sua vida útil.

No núcleo do reator o fluxo de nêutrons não é constante, ou seja, as condições de geração e absorção de nêutrons é uma função da posição no núcleo, ocorrendo por isso uma distribuição de potência no reator. Esta distribuição de potência sofre variações durante a vida do núcleo do reator, que estão diretamente ligadas com as variações localizadas do fluxo de nêutrons que surgem devido ao consumo desigual do combustível e às variações das condições de absorção de nêutrons ao longo do tempo. Esta distribuição de potência ocorre tanto na direção radial como na direção axial do núcleo e é diferente para cada projeto.

Outro parâmetro avaliado no núcleo do reator é o fator de potência, o qual é definido como a relação entre a potência máxima local e a potência média do reator. A potência máxima ocorre em regiões onde o fluxo de nêutrons atinge valores máximos localizados. Este fator de pico é muito importante no projeto do reator, pois está relacionado com o máximo excesso de reatividade permissível, impondo limitações térmicas ao projeto.

Para se otimizar o uso do combustível nuclear há necessidade principalmente de aumentar a sua queima, tendo como consequência o aumento do intervalo entre as recargas. Para que isso aconteça se faz necessário introduzir um excesso de reatividade no início do ciclo de queima, que é obtido aumentando-se o enriquecimento do combustível.

1.1 Controle da reatividade nos reatores nucleares

Todo reator nuclear deve possuir um excesso de reatividade, para compensar a perda do fluxo de nêutrons. Essa queda no fluxo de nêutrons é ocasionada principalmente pela sua absorção pelos materiais que compõem o núcleo, pelos produtos de fissão, pelo escape de nêutrons e pela queima do combustível.

O método mais utilizado para se fazer o controle da reatividade é a aplicação de materiais absorvedores de nêutrons, ou seja, são materiais que possuem alta seção de choque de absorção de nêutrons e que como resultado dessa absorção não gere novos nêutrons (ANDERSON, 1962; MURGATROYD, 1977). Para ser considerado um absorvedor de nêutrons um material deve ter uma seção de choque na ordem de 100 barns ($1 \text{ barn} = 1,0 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$) ou superior. Os absorvedores mais usados são o boro, a prata, o índio, o cádmio, o háfnio e as terras raras. Geralmente são utilizados na forma de ligas metálicas, compostos na forma de pó compactado, pastilhas sinterizadas, dispersões e solução líquida.

Pode-se dividir o controle dos reatores em três tipos:

- *barras de controle*: é um sistema de controle que usam barras fabricadas de materiais absorvedores e/ou contenham em seu interior materiais absorvedores e são colocadas em lugares estratégicos dentro do núcleo do reator. Sua movimentação pode ser feita por meio de sistemas elétricos, hidráulicos ou pneumáticos ou uma combinação destes. Sua função é ajustar a potência do reator e compensar as variações de reatividade devidas, entre outros fatores, à variação da temperatura do reator. São utilizadas para controle de reatividade de curta duração, se comparado com a vida útil do núcleo do reator.

- *barras de segurança*: como o próprio nome indica é um sistema de segurança do reator que garante uma disponibilidade de reatividade negativa para se fazer o desligamento do mesmo em condições normais de operação ou em caso de acidente. Durante a operação normal do reator essas barras ficam fora do núcleo e estão posicionadas de maneira que podem ser rapidamente inseridas dentro do núcleo do reator com o objetivo de desligá-lo. Apresentam características físicas como, sistemas mecânicos e materiais absorvedores, semelhantes aos utilizados nas barras de controle.

As barras de controle têm como uma das principais características a capacidade de se movimentar no interior do núcleo. Por meio desse movimento pode controlar ou interromper a reação em cadeia. Uma das propriedades mais importante das barras de controle e de segurança é que sua vida útil deve ser superior a vida útil do combustível nuclear. Com isso se faz necessário que a barra de controle mantenha sua capacidade de absorção de nêutrons o maior tempo possível, o que implica em dizer que as barras de controle e de segurança devem ser fabricadas com materiais que após a reação nuclear de captura de nêutrons produzam isótopos que também possuam alta seção de choque de absorção de nêutrons.

Tanto os reatores PWR como BWR utilizam o carbeto de boro – B_4C e a liga 80 % prata – 15 % índio – 5 % cádmio – $AgInCd$, como material absorvedor nas barras de controle. Nos BWR o B_4C é utilizado na forma de pó compactado, já nos PWR na forma de pastilhas sinterizadas. A forma com que as barras de controle são colocadas no núcleo dos reatores varia se ele é do tipo BWR ou PWR. De uma maneira geral, nos PWR, um conjunto de 16 a 24 varetas é unido em uma estrutura central a qual se movimenta dentro de tubos guia, no elemento combustível, por meio de um sistema mecânico que pode ser acionado elétrica e/ou pneumáticamente. Geralmente as varetas de controle são preenchidas com pastilhas de B_4C tendo em suas extremidades a liga $AgInCd$. No caso dos reatores BWR as barras de controle são montadas no formato de cruz que se ajusta entre os elementos combustíveis. Cada uma das quatro partes que formam a cruz possui, normalmente, de 18 a 21 varetas preenchidas com B_4C compactado (STRASSER, 1984).

- *controle fixo de longo prazo*: este controle é realizado por materiais absorvedores colocados de forma fixa e em pontos estratégicos, no núcleo do reator ou distribuído uniformemente no próprio combustível. Sua principal função é promover ajustes de variação de reatividade causados por ciclos de longo prazo, como o consumo de combustível e seu envenenamento devido à formação de produtos de fissão com alta seção de choque de absorção de nêutrons térmicos. Ao contrário, das barras de controle que são utilizadas para ajustes de variações de reatividade de curta duração, esses materiais vão atuar sobre as variações de reatividade de longa duração que ocorrem durante toda vida útil do núcleo do reator. Esse tipo de controle é projetado de modo a ser consumido a uma taxa próxima àquela do consumo do combustível. Esse absorvedor também é conhecido como veneno queimável e sua principal característica é absorver um nêutron, produzindo um isótopo com baixa seção de choque de absorção, ou seja, produzir na reação de captura um isótopo que não possua capacidade de absorver nêutrons térmicos.

A utilização do veneno queimável nos reatores trouxe significativas vantagens na operação e gerenciamento do combustível nuclear, como por exemplo:

- o veneno queimável pode ser colocado em lugares estratégicos no núcleo do reator promovendo de maneira efetiva a distribuição uniforme de potência com conseqüente diminuição dos fatores de pico;
- o veneno queimável pode ser colocado em quantidades suficientes de modo a se obter uma reatividade inicial no núcleo do reator próxima àquela projetada para o final da vida útil do combustível. A sua presença, além de reduzir a quantidade necessária de barras de controle, faz também com que estas permaneçam mais retiradas do núcleo. Isso favorece uma melhor distribuição de potência;
- talvez a maior vantagem da utilização do veneno queimável esteja no fato de se poder aumentar tanto a carga do combustível como seu enriquecimento. Como conseqüência promove um aumento do intervalo nas recargas refletindo positivamente no custo da energia gerada e na quantidade de rejeitos.

De uma maneira geral os venenos queimáveis podem ser divididos em heterogêneos ou discretos e homogêneos ou integrados. O veneno queimável heterogêneo é composto por uma vareta separada da vareta combustível possuindo em seu interior somente o absorvedor com seu diluente. Já o veneno queimável homogêneo combina o absorvedor com o combustível numa mesma vareta. É nesse tipo de combustível que o gadolínio tem uma importante participação.

1.2 Venenos Queimáveis

1.2.1 Considerações Gerais

O custo da energia elétrica gerada a partir de unidades nucleares, está diretamente ligado ao custo do ciclo do combustível, e a otimização desses custos depende do gerenciamento do combustível dentro e fora do reator. O gerenciamento do combustível dentro do núcleo do reator (“in-core fuel management”), que envolve o projeto de consumo do combustível e o padrão de recargas, influencia de maneira determinante o custo da energia, uma vez que atinge diretamente as atividades de gerenciamento do combustível fora do reator (“out-of-core fuel management”), dentre os quais podemos destacar o enriquecimento e o destino final do combustível queimado.

O gerenciamento do combustível nuclear sempre esteve em constante desenvolvimento e na década de 70 inspirou vários estudos, como por exemplo, o desenvolvimento de novos projetos de combustíveis para se alcançar queimas da ordem de 45.000 a 50.000 MWd/TonU (esse valor se refere à energia total fornecida pela queima do combustível em megawatts-dia gerados por tonelada métrica de urânio consumida). Com base nos estudos realizados o aumento da queima de 33.000 para 50.000 MWd/TonU nos reatores tipo PWR, reduziria a massa de urânio a ser processada na etapa de conversão em 15 %, em 1 a 3 % o número de máquinas necessário no processo de separação isotópica e em 40 % o número de elementos combustíveis a serem descarregados por ano.

Devido ao aumento do custo de construção das centrais nucleares um outro estudo, que também se fez presente no âmbito da indústria nuclear foi a

possibilidade de se estender a vida de uma central nuclear para além dos 30 anos originalmente licenciados. O principal componente a ser avaliado neste caso é o vaso de pressão, de maneira particular nos reatores do tipo PWR. O vaso de pressão sofre danos de radiação devido ao bombardeamento nêutrons, particularmente nêutrons rápidos, que escapam para fora do núcleo do reator. Tais danos são diretamente proporcionais ao fluxo desses nêutrons que escapam do núcleo e atingem a parede do vaso de pressão. Para se prolongar a vida do vaso de pressão é necessária uma diminuição desse fluxo. Este estudo tornou-se então um assunto de suma importância no gerenciamento do combustível nuclear.

Tradicionalmente o padrão adotado nas recargas dos reatores tipo PWR é a substituição de 1/3 do combustível do núcleo a cada 12 meses. Nesse sistema o núcleo do reator é dividido em 3 regiões radiais concêntricas e para a recarga, os elementos combustíveis da região central são então retirados deslocando-se para essa região os elementos da região intermediária. Para a região intermediária são deslocados os elementos da região mais periférica, a qual recebe os novos elementos combustíveis. Esse sistema de recarga é conhecido como carregamento “out-in”. Neste caso há um aumento na produção de nêutrons que vão interagir com a parede do vaso de pressão, causando-lhe danos de irradiação.

Outro esquema de recarga é o oposto ao tradicional, ou seja, os novos 1/3 dos elementos a serem carregados são colocados na região central do núcleo e nas próximas recargas são deslocados para as regiões intermediária e periférica. Nesse sistema os elementos da região mais periférica é que são retirados do núcleo. Esse sistema alternativo de recarga é denominado de carregamento “in-out”. Nesta situação os elementos novos contendo alta reatividade estão “blindados” por aqueles elementos mais queimados, os quais estarão nos seus segundo e terceiros ciclos de queima respectivamente. Como consequência dessa “blindagem” o fluxo de nêutrons rápidos que incidem no vaso de pressão é minimizado, fazendo com que um considerável aumento na vida útil do vaso. Adicionalmente, a adoção deste padrão de carregamento conduz a uma redução de até 0,05% no enriquecimento em peso de ^{235}U e um aumento médio da queima do combustível de 200 a 500 MWd/TonU (COCHRAN, 1992). Esse padrão de recarga é denominado Padrão de Carregamento de Baixa Fuga, LLLP (“Low Leakage Loading Pattern”).

Muitos outros avanços têm sido experimentados pela indústria nuclear no que se refere ao uso do combustível e seu gerenciamento, além de avanços nos projetos do núcleo e do próprio combustível (MÄRKAL, 1987), tais como a substituição do aço inóx pelo zircaloy e a implantação de peças removíveis no elemento combustível que permitem o acesso a varetas danificadas permitindo seu reparo ou substituição durante a operação. Neste contexto o veneno queimável homogêneo tem tido uma participação significativa para a diminuição do custo do ciclo do combustível. Sua presença se faz necessária para controlar de maneira eficaz o maior excesso de reatividade necessário para se aumentar a queima e o ciclo do combustível dentro do reator nuclear. Sua utilização também se faz necessária quando se adota o padrão LLLP (“Low Leakage Loading Pattern”) de recargas.

1.2.2 Aplicações dos Venenos Queimáveis

Para se aumentar o ciclo de queima, com conseqüente aumento dos intervalos de recarga, deve-se prover o núcleo com um maior excesso de reatividade, o que é obtido por meio do aumento do enriquecimento inicial do combustível. Para os reatores LWR (Light Water Reactor) o excesso de reatividade gira em torno de 25 a 30 % acima da reatividade necessária para se atingir a criticalidade. Nesses casos o controle do reator é realizado utilizando-se barras de controle com venenos queimáveis a base de boro e boro solubilizado no moderador/refrigerante.

Quando se fala em reatores do tipo BWR o uso de boro solúvel é proibitivo por razões técnicas, restando para esse caso somente as barras de controle. Como a utilização somente das barras de controle para os reatores BWR era insuficiente para se obter um núcleo estabilizado termicamente, com pequenos picos de reatividade, esse fato levou ao desenvolvimento e a utilização de venenos queimáveis integrados, particularmente o Gd_2O_3 formando solução sólida com o UO_2 . Esse tipo de veneno queimável começou a ser utilizado em 1967, e a partir desta data tem sido utilizado rotineiramente nesse tipo de reator.

Para os reatores do tipo PWR, o boro solúvel é rotineiramente utilizado,

para que juntamente com as barras de controle façam a compensação do excesso de reatividade surgido em função do aumento do enriquecimento e do ciclo de queima. Todavia o aumento de reatividade não pode ser compensado indefinidamente com o aumento da concentração do ácido bórico (H_3BO_3) no moderador/refrigerante. Na prática o limite máximo utilizado para a concentração do boro solúvel é de 2.000 $\mu\text{g/g}$. Parte do boro solubilizado é removida pela absorção de nêutrons durante a operação do reator, porém a diminuição de sua concentração devido a essa absorção é relativamente pequena, não acompanhando a taxa de queima do combustível. Sendo assim se faz necessária a remoção controlada do ácido bórico pela passagem da água em um sistema de troca iônica. Outro aspecto é que o aumento de temperatura provoca a diminuição da densidade do ácido bórico, com conseqüente diminuição da concentração de núcleos absorvedores e diminuição da absorção de nêutrons. Essa situação indica que um aumento de temperatura do moderador provoca um aumento de reatividade, ou seja, torna o coeficiente de temperatura do reator positivo, o que não é aceitável no projeto. Esse problema é minimizado quando se mantém a concentração do boro solúvel num valor máximo de 2.000 $\mu\text{g/g}$.

Com essa sucinta explanação pode-se dizer que o aumento da reatividade global do núcleo do reator deve ser acompanhado de um controle adicional que pode ser feito fazendo-se uso de venenos queimáveis sólidos. Os venenos queimáveis, como já foi visto, podem ser discretos, sendo os mais comumente usados as varetas contendo borossilicato ou $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-B}_4\text{C}$, ou podem ser integrados onde um absorvedor é parte integrante da vareta combustível.

O aumento do uso de varetas de veneno queimável discreto apresenta algumas desvantagens no que se refere não somente a operação e desempenho do reator, mas também ao gerenciamento do combustível. Dentre elas podemos citar:

- a localização dos venenos queimáveis discretos dentro do núcleo está restrito a posições não ocupadas pelas barras de controle, diminuindo com isso a flexibilidade do projeto do ciclo de queima.
- o aumento da queima do combustível promove um aumento significativo na

quantidade de venenos queimáveis discretos exauridos, elevando o custo do ciclo do combustível. Esse impacto sobre o custo é tão importante que deve levar ao abandono da utilização deste tipo de veneno queimável em reatores do tipo LWR.

- para a utilização de venenos queimáveis a base de boro, quer seja borossilicato ou pastilhas de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-B}_4\text{C}$, há necessidade de uma reatividade residual no final do ciclo de queima para compensar a absorção residual gerada por este tipo de veneno queimável. Com isso a otimização do uso do combustível fica comprometida, pois para que isso ocorra, o excesso de reatividade do núcleo no final do ciclo de queima deve ser zero, e no início do ciclo deve ser mínimo.
- quando se substitui uma vareta de combustível por uma vareta de veneno queimável altera-se a relação urânio/água, afastando-se a razão de moderação do seu ponto ótimo. Um outro ponto é que com a diminuição da relação urânio/água, ocorre também uma diminuição da área de transferência de calor entre o refrigerante e o combustível provocando o aparecimento de “pontos quentes” indesejáveis.

As dificuldades encontradas com os venenos queimáveis discretos, fizeram com que se buscassem outras soluções para compensar o aumento do excesso de reatividade e para se otimizar a distribuição de potência nos reatores projetados para altas taxas de queima e longos intervalos de recarga. Uma solução que tem sido adotada é o uso de venenos queimáveis integrados. O uso de venenos queimáveis integrados além de ter minimizado, e até eliminado, os problemas com os venenos queimáveis discretos, também tem trazido algumas vantagens:

- por ser parte integrante do combustível seu posicionamento é irrestrito, flexibilizando o seu projeto de queima.
- pelo fato dos venenos queimáveis integrados estarem presentes nas próprias varetas de combustíveis, não há geração adicional de rejeitos radioativos, visto que são armazenados ou reprocessados junto com o combustível queimado, minimizando o problema da deposição final dos rejeitos.

- ao uso dos venenos queimáveis integrados está associada a uma menor reatividade residual no fim do ciclo de queima.
- a relação urânio/água nos venenos queimáveis integrados não é alterada mantendo-se a razão de moderação originalmente projetada. O mesmo ocorre com a superfície de transferência de calor entre o combustível e o refrigerante. Estes aspectos contribuem para a otimização do uso do combustível nuclear.
- como o veneno queimável é parte integrante do combustível, ele diminui a reatividade dos combustíveis novos no transporte e armazenamento, colaborando para uma maior flexibilidade das considerações de acidentes de criticalidade.

Não existe no mercado, nos dias de hoje, muitas opções de venenos queimáveis integrados e o combustível $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$, que já é utilizado a um longo tempo nos reatores tipo BWR, surge como opção natural para os reatores tipo PWR.

1.2.3 Tipos de Venenos Queimáveis

Comercialmente, nos dias de hoje, existem somente três tipos de venenos queimáveis integrados que são utilizados nos reatores LWR. O $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$, ZrB_2 e o Érbio.

A utilização de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ como veneno queimável comercial teve início na década de 60 quando a General Elétric adotou esse tipo de controle no reator Dresden-2 (BWR). A partir deste momento todos os fabricantes de combustíveis nucleares foram paulatinamente utilizando esse tipo de veneno queimável. Devido à preocupação cada vez maior em se aprimorar a otimização do combustível nuclear nos reatores PWR, e também devido à vasta experiência obtida nesses anos todos com o uso do $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$, e aliado ao fato de que os fabricantes de combustíveis para os reatores BWR e PWR serem os mesmos, a utilização deste tipo de combustível passou a ser uma opção natural a ser aplicada também nos reatores tipo PWR. (IAEA – Tecdoc 844, 1995).

O contínuo desenvolvimento do uso do gadolínio como veneno queimável integrado, que no início usava concentrações de 1 % em peso de Gd_2O_3 nos reatores BWR, passando para concentrações na faixa de 6 a 10 % nos reatores PWR, teve como consequência a formação de uma importante base de dados. Esta base em conjunto com o bom desempenho das varetas combustíveis contendo UO_2 - Gd_2O_3 foram responsáveis pelo contínuo e crescente uso de Gd_2O_3 pelos fabricantes de combustível nuclear.

No início do uso do gadolínio, a potência das varetas UO_2 - Gd_2O_3 era reduzida. Isso porque o projeto do núcleo do reator, que utiliza este tipo de controle, é mais complexo além de não se conhecer profundamente a influência do UO_2 - Gd_2O_3 nas propriedades do combustível. No caso nos reatores PWR chegou-se numa situação extrema de se usar urânio empobrecido na fabricação dos primeiros combustíveis com alta concentração de Gd_2O_3 . Com o incremento da base de dados deste sistema passou-se a utilizar urânio natural e hoje os combustíveis com Gd_2O_3 já são enriquecidos em até 70 % do enriquecimento padrão das varetas contendo somente UO_2 .

Um outro tipo de veneno queimável, também utilizado comercialmente, foi desenvolvido pela Westinghouse. Ele consiste em se depositar uma fina camada (20 μm) de boreto de zircônio (ZrB_2) na superfície das pastilhas de UO_2 . A maior vantagem deste tipo de veneno queimável integrado é sua menor absorção residual no fim do ciclo de queima. Uma desvantagem considerável é o seu custo. Tipicamente quando se utiliza boro natural, a quantidade de varetas no elemento combustível com este tipo de veneno queimável é de 30 a 40 %. Caso se use o boro enriquecido no isótopo ^{10}B esta quantidade fica entre 12 e 30 %. A Westinghouse iniciou os testes com esse combustível em 1981 e em 1987 já havia 20 reatores PWR usando este tipo de controle para um ciclo de 18 meses. Segundo a Westinghouse, numa comparação com o UO_2 - Gd_2O_3 , o ZrB_2 diminui o fator de pico radial em 2,2 % e aumenta o ciclo de queima em 1 %. Sob o ponto de vista operacional a única desvantagem do ZrB_2 , se comparado com UO_2 - Gd_2O_3 , é a possibilidade potencial de ter um coeficiente de temperatura do moderador positivo no início da vida do núcleo (SECKER, 1990; SIMMONS, 1998; SRINILTA, 1987).

Um terceiro tipo de veneno queimável integrado é a utilização de um outro elemento do grupo das terras raras (Gd, Sm, Dy, e Er). O samário, disprósio e európio possuem longas cadeias de absorção de nêutrons, sendo que os vários isótopos formados têm alta seção de choque de absorção de nêutrons térmicos o que caracteriza uma absorção residual inaceitável para o projeto do núcleo do reator. O érbio possui uma seção de choque similar a do boro (seção de choque para absorção de nêutrons térmicos do ^{10}B – 3.837 barns - 1 barn = $1,0 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$) (GOLDSTEIN, 1982). Para ser usado nos reatores PWR, o Er_2O_3 é misturado e homogeneizado ao UO_2 em proporções menores que aquelas utilizadas para o Gd_2O_3 , ou seja, entre 1 e 2 % em peso. Já o Gd_2O_3 é usado em concentrações de 6 a 10 % em peso. Tipicamente a quantidade de varetas combustíveis contendo Er é da ordem de 20 a 30 % do elemento combustível.

As maiores vantagens do veneno queimável contendo Er quando comparado ao Gd são:

- menor impacto nas propriedades do combustível, como condutividade térmica e ponto de fusão, devido a sua menor concentração se comparado com Gd.
- excelente controle do coeficiente de temperatura do moderador.

A adoção do Er pela ABB - Combustion Engineering foi precedida de programa experimental demonstrando que as propriedades do combustível com Er são similares àsquelas do combustível com Gd e que por isso pode se beneficiar da extensa base de dados do combustível UO_2 - Gd_2O_3 . Com o objetivo de validar o projeto e a performance do combustível, quatro elementos foram fabricados e irradiados em 1989 no reator Calvert Cliffs San e outros quatros foram irradiados no reator Onofre 2 em 1991. O primeiro carregamento completo de combustíveis contendo Er data de 1994 (IAEA – Tecdoc 844, 1995). Estudos recentes sugerem que o veneno queimável integrado a base de Gd seria mais indicado para ciclos de queima de 18 meses, enquanto que o veneno queimável utilizando o Er seria mais indicado para ciclos de 24 meses (ASOU, 1997). Uma outra informação importante a respeito do Er é que se ele fosse utilizado em todas as recargas dos reatores tipo LWR, a produção mundial deste material deveria se aumentada em 20 a 50 %

(IAEA – Tecdoc 844, 1995).

Com base numa avaliação das publicações mais relevantes, uma comparação entre esses três tipos de venenos queimáveis é sumarizado na **Tabela 1**, levando em consideração a especificação mais comum dos combustíveis para os PWRs (IAEA – Tecdoc 844, 1995).

1.2.4 Características do Gd

O gadolínio natural possui os seguintes isótopos: ^{152}Gd , ^{154}Gd , ^{155}Gd , ^{156}Gd , ^{157}Gd , ^{158}Gd e ^{160}Gd . Dois deles, ^{155}Gd , ^{157}Gd , tem como característica alta seção de choque de absorção de nêutrons térmicos e são os principais elementos considerados nos cálculos do núcleo do reator.

Na **Tabela 2** está ilustrada a seção de choque de cada isótopo, bem como sua concentração na mistura natural.

Tabela 2 – Concentração e seção de choque para nêutrons térmicos dos isótopos de Gd e da mistura natural (IAEA-Tecdoc-844, 1995).

Gadolínio Isótopos	Quantidade do isótopo na Mistura Natural (%)	Seção de Choque para Nêutrons Térmicos (barn)
Gd (Mistura Natural)	-----	48.890 ± 104
^{152}Gd	0,2	735 ± 20
^{154}Gd	2,1	85 ± 12
^{155}Gd	14,8	60.900 ± 500
^{156}Gd	20,6	$1,5 \pm 1,2$
^{157}Gd	15,7	254.000 ± 815
^{158}Gd	24,8	$2,2 \pm 0,2$
^{160}Gd	21,8	$0,77 \pm 0,2$

$$1 \text{ barn} = 1,0 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$$

Tabela 1 – Comparação entre tipos de venenos queimáveis integrados disponíveis (IAEA-Tecdoc-844, 1995)

<i>Tipo</i>	<i>UO₂-Gd₂O₃</i>	<i>ZrB₂</i>	<i>UO₂-Er₂O₃</i>
Fabricantes	(a)	Westinghouse (USA)	Combustion Eng. Co. (USA)
Concentração	6-10% em peso	-	1-2,5% em peso
Diminuição na condutividade térmica	Significativa	negligenciável	pequena
Redução na temperatura de fusão	Significativa	negligenciável	pequena
Proporção de varetas por elemento combustível	3 – 6 %	30 – 40 %	20 – 30 %
Redução da massa de ²³⁵ U no elemento combustível	Pequena	negligenciável	pequena
Velocidade de queima	Alta	alta	média
Reatividade residual no final do ciclo de queima	Pequena	negligenciável	significativa
Distribuição de potência na vareta de veneno queimável	Boa	satisfatória (b)	boa
Pico de potência localizado	Significativo	pequeno	pequeno
Controle do coeficiente de temperatura do moderador	Bom	satisfatório	ótimo
Facilidade de fabricação	pequena variação na linha padrão	grande equipamento adicional	pequena variação na linha padrão
Reprocessabilidade do combustível com o veneno queimável	Boa	questionável	boa

(a) Franco-Belge de Fabrication du Combustible (França e Bélgica), Siemens AG (Alemanha), Fabricazione Nucleari (Itália), Japan Nuclear Fuel (Japão), Mitsubishi Nuclear Fuel & Nuclear Fuel Industries (Japão), Korean Nuclear Fuel Company (Coreia), Empresa Nacional del Uranio AS (Espanha), ASEA-ATOM (Suécia), British Nuclear Fuels BNFL (Inglaterra), TENEX-Novosibirsk-Ulbinskij (Rússia/Kazaquistão), Babcock&Wilcox Fuel (USA), General Electric (USA) e Siemens Power (USA).

(b) Devido à rápida queima.

Alguns aspectos importantes devem ser considerados no cálculo neutrônico do núcleo do reator que utiliza Gd como veneno queimável integrado. Dentre eles pode-se ressaltar:

- a seção de choque de absorção de nêutrons não é somente uma característica intrínseca do Gd. O tamanho das partículas no combustível $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ também tem uma importante influência nesta propriedade (HARTLEY, 1983).
- devido à alta seção de captura, a queima do Gd no combustível ocorre a partir da periferia da pastilha em direção ao centro, isto é, no começo do ciclo do combustível o ^{155}Gd e o ^{157}Gd queimam na camada mais periférica, blindando a penetração do nêutron para o interior da pastilha (HARTLEY, 1983).
- o fato da captura de um nêutron pelos núclídeos ^{154}Gd e ^{156}Gd produzirem os núclídeos ^{155}Gd e ^{157}Gd respectivamente, indica que todos os outros isótopos do Gd (pelo menos aqueles obtidos a partir do ^{154}Gd até ^{157}Gd) deveriam ser considerados nos cálculos.
- além disso, alguns isótopos de Gd podem se originar diretamente do processo de fissão e outros podem ainda serem formados a partir do decaimento dos produtos de fissão (IAEA-Tecdoc-844, 1995).

Na **Tabela 3** estão resumidas as características básicas dos isótopos de Gd gerados a partir do processo de fissão do ^{235}U por nêutrons térmicos e a partir do decaimento dos produtos de fissão.

Tabela 3 - Características dos isótopos de Gd gerado pela fissão do ^{235}U por nêutrons térmicos e pelo decaimento dos produtos de fissão (PSHENIN, 1990; IAEA-Tecdoc-844, 1995)

Isótopo Gd	Produção (yields) de Gd a partir do		Produção (yield) Total	Meia Vida do PF	Meia Vida do Gd
	Processo de Fissão	Decaimento dos Produtos de Fissão.			
155		3.10×10^{-4}	2.86×10^{-4}	4,96 a	estável
156		9.00×10^{-5}	2.86×10^{-5}	15,20 d	estável
157		2.76×10^{-5}	2.86×10^{-5}	15,15 h	estável
158	2.86×10^{-8}	2.00×10^{-5}	2.86×10^{-5}	46,00 m	estável
159	1.00×10^{-7}	1.52×10^{-6}	1.62×10^{-6}	18,70 m	18,56 h
160	1.52×10^{-7}	9.40×10^{-7}	1.09×10^{-6}	42,00 s	estável

O “yield” expressa a produção do nuclídeo em termos de fissão, ou seja, se o valor do “yield” de um determinado nuclídeo for 1.00×10^{-02} , significa que para cada 100 fissões, em média, se produz 1 nuclídeo.

Com base na **Tabela 3**, no que diz respeito à contribuição na concentração do isótopo de Gd no veneno queimável integrado, quer ele seja obtido diretamente a partir do processo de fissão do ^{235}U , quer ele seja obtido por meio do decaimento de alguns produtos de fissão, pode-se concluir que:

- ^{158}Gd e os sucessivos isótopos mais pesados podem se originar diretamente da fissão do ^{235}U , mas com uma produção relativamente baixa.
- ^{155}Gd e os isótopos mais pesados podem ser formados a partir do decaimento de outros produtos de fissão.
- a produção do ^{155}Gd é maior em relação a outros isótopos do Gd. Entretanto, como o ^{155}Gd se origina a partir do ^{155}Eu cuja meia vida é de aproximadamente cinco anos, esta contribuição para a concentração do ^{155}Gd provavelmente não é considerada no cálculo do reator.
- as contribuições dos isótopos ^{156}Gd , ^{158}Gd e ^{160}Gd na concentração final do Gd a partir do decaimento dos produtos de fissão são maiores do que as contribuições

a partir diretamente da fissão. Apesar das meias vidas dos produtos de fissão que irão originar os isótopos ^{156}Gd , ^{158}Gd e ^{160}Gd , serem relativamente curtas, somente o isótopo ^{157}Gd , obtido no processo de fissão, é normalmente considerado no cálculo da concentração final de gadolínio. Isto é explicado pela diferença da seção de choque de absorção de nêutrons térmicos, já que o ^{157}Gd é várias ordens de magnitude maior que a dos outros isótopos como mostrado na Tabela 2 (IAEA-Tecdoc-844, 1995).

Resumidamente embora tenhamos a obtenção de todos os isótopos do Gd, seja a partir diretamente do processo de fissão e/ou a partir do decaimento dos produtos de fissão, somente a produção do isótopo ^{157}Gd , obtido a partir do decaimento dos produtos de fissão do ^{235}U é considerado no cálculo final da concentração do Gd.

De todas as propriedades do combustível contendo Gd_2O_3 , a condutividade térmica é que tem recebido maior atenção nos últimos dez anos. Isso ocorre porque ao se adicionar Gd_2O_3 no UO_2 sua condutividade térmica sofre uma redução, conduzindo a um aumento de temperatura do combustível no reator. Entretanto os experimentos discordam do grau de magnitude da redução da condutividade térmica, como está ilustrado nas **Figuras 1, 2, 3 e 4** (IAEA-Tecdoc-844, 1995). Nestas figuras são mostrados quatro resultados, de quatro fontes diferentes, de como varia a razão da condutividade térmica entre o UO_2 dopado com Gd_2O_3 e o UO_2 puro (sem Gd_2O_3), para várias concentrações de Gd_2O_3 , em função da temperatura. Todos eles mostram um efeito de redução, causado pela gadolínia, na condutividade térmica e que este efeito torna-se menos importante para altas temperaturas.

Figura 1 – Variação da condutividade térmica em função da concentração de gadolína e temperatura (THORNTON, 1982)

Figura 2 – Variação da condutividade térmica em função da concentração de gadolína e temperatura (CHOTARD, 1986)

Figura 3 – Variação da condutividade térmica em função da concentração de gadolína e temperatura (SKOGEN, 1985)

Figura 4 – Variação da condutividade térmica em função da concentração de gadolína e temperatura (FUKUSHIMA, 1982)

1.2.5 Principais processos de fabricação do combustível $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$

Os processos de fabricação do combustível $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ podem ser divididos principalmente em duas diferentes linhas:

- misturas dos óxidos de U e Gd em nível molecular
- misturas dos óxidos de U e Gd como pós finos

A mistura citada no primeiro caso pode ser alcançado utilizando os processos sol-gel ou coprecipitação, enquanto que para o segundo caso a mistura é obtida por meio da homogeneização dos pós.

1.2.5.1 Processo sol-gel e coprecipitação

O processo sol-gel foi introduzido como processo de produção do combustível $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ nos anos 60. Neste processo uma solução de nitrato de urânio e gadolínio é gelificada em um fluido adequado, resultando uma mistura homogênea de urânio e gadolínio. A estrutura das pastilhas obtida a partir deste método é uma solução sólida e o tamanho de grão é determinado pelo regime e temperatura no qual é feito o tratamento térmico (IAEA-Tecdoc-844, 1995; GANGULY, 1993). As etapas que envolvem a produção de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ via microesferas por gelificação estão ilustradas na **Figura 5**.

Há duas rotas pelas quais se pode fazer o sol-gel. Uma é chamada de gelificação interna e outra de gelificação externa. Em ambos os casos as soluções de nitrato de gadolínio, $\text{Gd}(\text{NO}_3)_3$, e nitrato de urânio, $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, são misturadas em proporções tais para que se obtenha a relação $\text{Gd}_2\text{O}_3/\text{UO}_2$ desejada. A quantidade de Gd_2O_3 que pode ser incorporada ao UO_2 não deve passar de 10 %, pois neste caso pode ocorrer a formação de uma nova fase.

Na rota da gelificação interna, hexametilenotetramina ($\text{C}_6\text{H}_{12}\text{N}_4$) é adicionada na solução dos nitratos a uma temperatura menor que 10 °C. Após a homogeneização esta solução é forçada, por meio de um gás inerte, a passar por bicos que sob vibração vão produzir gotículas que caem sobre óleo de silicone que

está aproximadamente a 90 °C. A esta temperatura o hexametilenotetramina se decompõe liberando amônia, a qual promove a gelificação das gotículas em segundos. As microesferas são então lavadas com tetracloreto de carbono para se retirar o excesso do óleo de silicone e em seguida lavada com uma solução de hidróxido de amônio para consolidar a sua forma de esférica, antes de serem secas a uma temperatura que varia entre 80 e 100 °C.

Para a rota chamada de gelificação externa, uréia e nitrato de amônio são adicionados à solução de nitrato contendo urânio e gadolínio já na proporção desejada. A uréia forma um complexo com o íon uranilo (UO_2^{+2}), e o nitrato de amônio promove estabilidade da solução. A solução é então gotejada no hidróxido de amônio onde são formadas as microesferas. Depois de gelificadas as microesferas passam por processo de envelhecimento, ou seja, são aquecidas numa solução de hidróxido de amônio a 60 °C, por um período de 30 a 60 min, para conferir estabilidade a sua forma. Em seguidas são lavadas com água e/ou etanol, e como no caso anterior, passam também por uma etapa de secagem.

A diferença básica entre gelificação interna e externa é que no primeiro caso as microesferas começam a se formar a partir do centro da gotícula, enquanto que no segundo a formação das microesferas se inicia pela parte externa da gota.

Após a secagem, as microesferas são então reduzidas em atmosfera de hidrogênio a temperaturas maiores do que 600 °C, compactadas com pressões que variam de 3,5 a 4,0 tf/cm² e as pastilhas verdes são sinterizadas em atmosfera de hidrogênio com maior ou menor potencial de oxigênio, dependendo de cada processo. Tipicamente o processo de sinterização ocorre a uma temperatura de 1750 °C por um período de 4 horas em uma atmosfera de H₂. A última etapa do processo de produção das pastilhas é a sua retificação cujo objetivo é uniformizar o seu diâmetro.

O processo sol-gel possui uma grande desvantagem que é a produção de uma quantidade muito grande de rejeitos líquidos.

Figura 5 - Fluxograma para a produção de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ via sol-gel

O processo de coprecipitação também possui duas vias que são mais comumente usadas. A via de precipitação do tricarbonato de amônio e urânio (TCAU) e a via de precipitação do diuranato de amônio (DUA). Ambas as vias têm como matéria prima principal uma solução de nitrato de urânio e nitrato de gadolínio. O fluxograma mostrando as principais etapas da produção de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ pelo processo de coprecipitação é ilustrado na **Figura 6**.

Figura 6 - Fluxograma para a produção de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ via coprecipitação na forma de TCAU ou DUA

A precipitação do DUA a partir da mistura do nitrato de urânio e gadolínio normalmente é realizada a uma temperatura de 60°C e numa faixa de pH que pode variar de 4,0 a 11,0. Essa precipitação é obtida fazendo-se reagir a solução de nitratos com amônia ou uma solução de hidróxido de amônio (BABA, 1982). Após a

filtração faz-se a decomposição térmica do DUA numa faixa de temperatura entre 600 e 700 °C em atmosfera de H_2 . O UO_2 produzido não possui as características físicas adequadas para que possa ser diretamente compactado e sinterizado. Devido a esse fato deve-se fazer o condicionamento mecânico do pó com a adição de lubrificantes e aglomerantes e operações de pré-compactação, granulação e peneiramento. As outras etapas do processo consistem na compactação, sinterização e retificação nas mesmas condições do processo sol-gel.

A precipitação do gadolínio conjuntamente com o urânio na forma de TCAU ocorre tipicamente a uma temperatura de 60 °C e um pH = 8,2. Essa precipitação é obtida fazendo-se reagir a solução contendo os dois nitratos com os gases amônia e dióxido de carbono em um meio aquoso contendo carbonato de amônio. A suspensão de TCAU é então filtrada e lavada com etanol anidro para baixar a sua umidade (SANTOS, 1989).

O processo TCAU em relação ao DUA apresenta algumas vantagens, como maior facilidade de filtração e menor umidade. Uma outra vantagem do processo de precipitação de TCAU em relação ao DUA é que o pó UO_2 obtido a partir da redução do TCAU pode ser diretamente prensado e sinterizado devido as suas boas propriedades físicas como granulometria, área de superfície específica e escoabilidade. As etapas de compactação, sinterização e retificação são realizadas nas mesmas condições que as do processo do DUA.

Uma diferença importante do processo de obtenção do $(U-Gd)O_2$ a partir do DUA e a partir do TCAU, é que o óxido obtido da redução do DUA é totalmente uma solução sólida, enquanto que o óxido obtido a partir de redução do TCAU é parcialmente uma solução sólida (DURAZZO, 2001).

1.2.5.2 Processo por mistura mecânica

Além do processo sol-gel e coprecipitação, os quais produzem misturas dos óxidos de Gd e U a um nível molecular, as pastilhas de $UO_2-Gd_2O_3$ também podem ser obtidas a partir de uma mistura homogênea dos pós de UO_2 e Gd_2O_3 o que, na prática, é o processo mais utilizado.

O UO_2 pode ter algumas diferenças nas suas propriedades físicas dependendo do processo pelo qual é obtido. Os processos mais comuns são geralmente divididos em duas vias principais: a via úmida e a via seca. Na via úmida se destacam os processos de precipitação do DUA ou TCAU a partir do hexafluoreto de urânio (UF_6) ou a partir de uma solução de nitrato de urânio ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$). Os processos pela via seca são basicamente designados pelo tipo de equipamento utilizado, sendo os mais comuns o por leito fluidizado (Dry Bed ou DCFB – Direct Conversion Fluid Bed) e o por forno rotativo ou IDR (Integrated Dry Route) (DURAZZO, 2001).

As principais condições de processo, bem como as vantagens e desvantagens, citadas no item **1.2.5.1**, no qual se descreve o processo de obtenção de $(\text{U-Gd})\text{O}_2$ por precipitação do TCAU ou DUA a partir de uma solução dos nitratos de urânio e gadolínio, são praticamente as mesmas para os processos de obtenção de TCAU ou DUA a partir do UF_6 ou de uma solução somente de nitrato de urânio. A principal diferença dos processos está no fato de que no segundo caso somente após a redução do TCAU ou DUA a UO_2 é que se faz a adição do Gd_2O_3 , na etapa de homogeneização. **A Figura 7** ilustra as etapas do processo de obtenção de pastilhas de $(\text{U-Gd})\text{O}_2$ quando o UO_2 é produzido pela via úmida.

Os processos de obtenção do UO_2 por via seca têm como único material de partida o UF_6 gasoso. A essência desses processos é a transformação do UF_6 em UO_2F_2 , utilizando vapor d'água superaquecido, sendo o UO_2F_2 reduzido a UO_2 utilizando uma atmosfera de H_2 . Esses processos têm como vantagem a produção de um volume reduzido de líquido (rejeito) e, também, devido à ausência de água, pode se processar maiores massas de material enriquecido ou trabalhar com maiores enriquecimentos já que não existe o fator de moderação, provocado pela presença de água, nos fenômenos de criticalidade. Por outro lado, esses processos exigem a construção de equipamentos mais sofisticados e o uso de materiais mais nobres para minimizar os problemas de corrosão, pois estão submetidos a altas temperaturas e presença de ácido fluorídrico.

Figura 7 - Fluxograma para a produção de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ a partir do UO_2 obtido pela via úmida

Na **Figura 8** estão indicadas as principais etapas do processo “Dry Bed” e do processo IDR.

Figura 8 - Fluxograma para a produção de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ a partir do UO_2 obtido pela via seca

O fato dos processos de conversão por via seca usarem somente o UF_6 como matéria prima principal constitui também em outra desvantagem, pois ao não processar o nitrato de urânio, que é a forma mais comum de se reciclar o urânio rejeitado na linha de produção, está via fica sem essa alternativa. Por isso a adoção da via seca, obrigatoriamente implica na necessidade de se ter uma linha da via úmida para se fazer o reaproveitamento dos rejeitos.

O processo por leito fluidizado DCFB ou simplesmente “Dry Bed” geralmente é dividido em quatro etapas. Na primeira o UF_6 injetado, juntamente com gás inerte de arraste, na parte inferior do forno reage com vapor d’água superaquecido produzindo o UO_2F_2 . Na segunda o UO_2F_2 se decompõe em UO_2 e HF . O UO_2 produzido fica muito contaminado com fluoreto que tem sua concentração reduzida na terceira etapa. A quarta etapa consiste na passivação do UO_2 que altera sua estequiometria para um valor entre 2,04 e 2,25, evitando assim o efeito pirofórico.

O processo “Dry Bed” normalmente utiliza-se de três a quatro fornos de leito fluidizado colocados em série e em cascata onde em cada forno ocorre uma ou mais etapas do processo (RADFORD, 1979).

O processo IDR é um processo contínuo onde o UF_6 é convertido a UO_2 num único estágio. O principal equipamento consiste um forno rotativo inclinado, onde se introduz UF_6 juntamente com vapor d’água superaquecido que ao reagirem formam UO_2F_2 . O UO_2 é obtido a partir da reação do UO_2F_2 com H_2 diluído, também em vapor d’água, que são injetados no forno em contra-corrente. A maioria dos fornos possui controle da inclinação e da velocidade de rotação. Com isso pode-se alterar o tempo de residência do produto, controlando assim o teor de fluoreto, o tamanho de partícula, a área de superfície específica e a morfologia do pó de UO_2 produzido (HEAL, 1978). Tanto no processo IDR quanto no processo “Dry Bed” o Gd_2O_3 é adicionado antes da etapa de moagem.

Ambos os processos produzem um pó de UO_2 com baixa escoabilidade, sendo assim, algumas etapas de condicionamento mecânico do UO_2 , como moagem e peneiramento, além da adição de lubrificantes e aglomerantes, devem

ser acrescentadas ao processo para que se obtenha um produto com características físicas que não comprometam a compactação e sinterabilidade das pastilhas.

1.3 Reutilização dos rejeitos

Com base no item **1.2.5** observa-se que existem vários processos de fabricação do veneno queimável integrado (U-Gd)O₂. Em todos eles, como em qualquer processo de fabricação, existe a geração de rejeitos que, na medida do possível, devem ser reaproveitados. Uma das linhas mais utilizadas para a produção desse veneno queimável é aquela que tem seu início com a evaporação do UF₆, passando pela precipitação do TCAU e sua redução a UO₂. Este UO₂ é então misturado mecanicamente com Gd₂O₃ que, após compactação, sinterização e retificação se obtém as pastilhas do veneno queimável integrado (U-Gd)O₂. De uma maneira geral essa linha de produção pode ser dividida em duas partes. A primeira que envolve as etapas de precipitação do TCAU e sua redução a UO₂, e a segunda que engloba as etapas de homogeneização, compactação, sinterização e retificação. Na primeira parte os rejeitos gerados, normalmente retornam ao processo na forma de uma solução de UO₂(NO₃)₂, a partir da qual pode se precipitar novamente o TCAU. Na segunda os rejeitos gerados nas várias etapas do processamento são reutilizados na forma de U₃O₈, que é incorporado ao processo na etapa de homogeneização. Na **Figura 9** (RIELLA, 1985) é mostrado um fluxograma típico da segunda parte do processo de uma unidade industrial de produção de pastilhas de UO₂ salientando o reaproveitamento do material rejeitado e indicando as porcentagens médias de perdas nas várias etapas.

Ainda tendo como base a **Figura 9** observa-se que a primeira fonte de perdas está na etapa de prensagem. Isso ocorre porque há sempre a necessidade de se avaliar o desempenho mecânico do pó de UO₂ e de promover a estabilização dos componentes da prensa.

A segunda fonte de perdas está na etapa de retificação das pastilhas. Esta etapa cujo objetivo é promover a uniformização do diâmetro gera uma suspensão de UO₂ em água a qual é chamada de lama da retífica.

A terceira e mais importante fonte de geração de rejeito é a etapa de inspeção superficial. É nessa etapa que todos os defeitos adquiridos pelas pastilhas, vindos do processo ou da sua manipulação, são detectados e as pastilhas segregadas. Os principais defeitos são lascas e trincas. Os rejeitos da prensa e da inspeção superficial são calcinados a U_3O_8 , peneirados e retornam ao processo na etapa de homogeneização. A lama da retífica, após o processo de secagem, também é calcinada a U_3O_8 e retorna ao processo na mesma etapa de homogeneização.

O fluxograma mostrado na **Figura 9** é típico não só do processo de produção de UO_2 e também do processo de produção do veneno queimável $(U-Gd)O_2$, fato este onde reside a maior vantagem do processo de mistura mecânica, ou seja, as alterações da linha de processo são mínimas. Isto indica que o reaproveitamento dos rejeitos pode ser feito da mesma maneira para ambos os produtos, UO_2 ou $(U-Gd)O_2$. A maior diferença entre os processos está na homogeneização. Para o processo de produção do veneno queimável $(U-Gd)O_2$, deve-se acrescentar nesta etapa, na proporção desejada, o Gd_2O_3 . Ao fluxograma original da **Figura 9**, ligadas por linhas pontilhadas na etapa de homogeneização, foram acrescentadas dois novos compostos: “aditivos” e “ $(U,Gd)O_2$ obtido da coprecipitação do Gd com U, forma de DUA”. A primeira modificação ao fluxograma originou-se do fato de que há necessidade do uso de algum tipo de aditivo para que a densidade especificada para o combustível $(U-Gd)O_2$ seja alcançada. A segunda modificação decorre da situação de que, no caso de um incidente em que se tenha contaminado a mistura de $UO_2-Gd_2O_3$, seja ela na forma de pó ou de pastilhas, ou mesmo no caso de um erro de processo, possa se fazer o reaproveitamento deste material. Para isso o produto contaminado é dissolvido com HNO_3 para se obter o nitrato de urânio (impuro), o qual passa por um processo de purificação, por exemplo, de extração por solventes, e acerto da concentração de Gd. A partir do nitrato purificado, já com a razão Gd_2O_3/UO_2 desejada, faz-se a precipitação do DUA, onde o Gd é coprecipitado com U. Em seguida faz-se a redução do DUA a UO_2 que retorna ao processo também na etapa de homogeneização.

Figura 9 - Fluxograma típico do processo de obtenção de pastilhas de UO_2 (RIELLA, 1985)

2. Objetivo e fundamentação do trabalho de pesquisa

O presente trabalho tem como objetivo o desenvolvimento do processo para a obtenção do veneno queimável homogêneo ou integrado por meio do estudo da densificação de pastilhas de $(\text{U-Gd})\text{O}_2$ contendo 7 % em peso de Gd_2O_3 com auxílio de um aditivo de densificação - $\text{Al}(\text{OH})_3$ (hidróxido de alumínio). O teor de 7 % de Gd_2O_3 está fundamentado para a concepção do tipo reator PWR. De acordo com a **Figura 9**, durante o processo de pelotização existe a formação de rejeitos que podem e devem ser reutilizados. O trabalho também contempla a reutilização desses rejeitos na forma de U_3O_8 ou na forma de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ coprecipitado.

Pela **Figura 9** tem-se a informação de que durante o processamento normal da produção de pastilhas de UO_2 ou de $(\text{U-Gd})\text{O}_2$, as perdas não vão além dos 10 %, com isso decidiu-se trabalhar com a concentração máxima de reciclo de 10 %. Também, com base na **Figura 9**, verifica-se a possibilidade de se produzir três tipos de rejeitos que muito provavelmente possuem características físicas diferentes. Baseado nisso optou-se em se fazer o estudo do reciclo destes três rejeitos, mantendo-se sempre as mesmas condições de processo, e avaliar as diferenças do comportamento durante o processo de fabricação combustível $(\text{U-Gd})\text{O}_2$.

Para se definir o grau de dependência do aditivo de densificação e o grau de dificuldade para se obter o veneno queimável integrado nas especificações exigidas, principalmente densidade hidrostática e porosidade aberta, foram realizados alguns testes preliminares com e sem a utilização dos reciclos. Para isso preparou-se uma mistura denominada mistura matriz a partir da qual se fez uma série de outras misturas.

- *mistura matriz*: 93 % de UO_2 com 7 % de Gd_2O_3

A partir desta mistura matriz foram preparadas mais nove misturas utilizando os três tipos de reciclo que são objetos deste estudo (U_3O_8 obtido das pastilhas verdes, U_3O_8 obtido das pastilhas sinterizadas e $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ obtido a partir

da coprecipitação de 7% Gd com U) nas proporções 3, 7 e 10 % respectivamente. O limite de 10 % foi retirado da **Figura 9** e as concentrações de 3 e 7 % foram simplesmente uma escolha. O teste consistiu em compactar e sinterizar pastilhas obtidas a partir das misturas propostas e determinar a densidade hidrostática e porosidade aberta. Os resultados estão ilustrados na **Tabela 4**.

densidade hidrostática e porosidade aberta

A densidade hidrostática é obtida utilizando o Princípio de Archimedes que diz: a medida do volume de uma amostra é calculada por meio do empuxo sofrido por esta amostra em um meio líquido adequado. O valor da densidade é obtido por meio da equação:

$$\mathbf{d.h. = M / (Mu - Mi) \times dl}$$

e a porosidade aberta é determinada pela equação:

$$\mathbf{p.a. = (Mu - M) / (Mu - Mi)}$$

onde:

d.h. = densidade hidrostática

p.a. = porosidade aberta

M = massa da amostra seca

Mu = massa da amostra úmida

Mi = massa da amostra imersa

dl = densidade do líquido na temperatura de realização do ensaio

As condições de processo de fabricação e principais especificações físicas para pastilhas sinterizadas de (U-Gd)O₂, estão apresentadas no item **4.3**.

Tabela 4 – Características físicas e dimensionais das pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ com o reaproveitamento dos rejeitos sem o uso de aditivo.

pastilha verde	h mm	d mm	m g	d.v. g/cm ³	p.c. tf/cm ²	pastilha sinterizada	h mm	d mm	m g	d.g. g/cm ³	d.h. g/cm ³	p. a. %	d.g. M/S	d.h. M/S	p.a. M/S
MMSA	12,710	11,390	7,1640	5,62	4,0	MMSA	10,370	9,440	7,0400	9,84	9,81	4,0950	9,83	9,81	4,02
MMSA	12,810	11,370	7,1710	5,60	4,0	MMSA	10,455	9,420	7,0470	9,81	9,79	4,2515	0,02	0,02	0,28
MMSA	12,660	11,370	7,1770	5,67	4,0	MMSA	10,360	9,450	7,0520	9,84	9,82	3,7135			
MMSA+3%U ₃ O ₈ ps	12,620	11,330	7,1680	5,72	4,0	MMSA+3%U ₃ O ₈ ps	10,380	9,460	7,0310	9,77	9,70	3,5981	9,77	9,71	3,64
MMSA+3%U ₃ O ₈ ps	12,610	11,330	7,1700	5,73	4,0	MMSA+3%U ₃ O ₈ ps	10,365	9,460	7,0330	9,79	9,71	3,6847	0,02	0,02	0,04
MMSA+3%U ₃ O ₈ ps	12,565	11,340	7,1810	5,75	4,0	MMSA+3%U ₃ O ₈ ps	10,355	9,490	7,0430	9,75	9,73	3,6452			
MMSA+7%U ₃ O ₈ ps	12,680	11,330	7,1990	5,72	4,0	MMSA+7%U ₃ O ₈ ps	10,420	9,450	7,0510	9,78	9,71	3,6597	9,77	9,70	3,74
MMSA+7%U ₃ O ₈ ps	12,625	11,330	7,1810	5,73	4,0	MMSA+7%U ₃ O ₈ ps	10,385	9,460	7,0350	9,77	9,70	3,8711	0,01	0,01	0,12
MMSA+7%U ₃ O ₈ ps	12,570	11,330	7,1400	5,72	4,0	MMSA+7%U ₃ O ₈ ps	10,335	9,460	6,9930	9,76	9,69	3,6831			
MMSA+10%U ₃ O ₈ ps	12,700	11,320	7,1860	5,71	4,0	MMSA+10%U ₃ O ₈ ps	10,430	9,440	7,0340	9,77	9,69	3,6766	9,75	9,69	3,78
MMSA+10%U ₃ O ₈ ps	12,585	11,325	7,1620	5,74	4,0	MMSA+10%U ₃ O ₈ ps	10,365	9,470	7,0100	9,74	9,69	3,7150	0,02	0,00	0,15
MMSA+10%U ₃ O ₈ ps	12,510	11,330	7,1350	5,75	4,0	MMSA+10%U ₃ O ₈ ps	10,315	9,470	6,9850	9,75	9,69	3,9521			
MMSA+3%U ₃ O ₈ pv	12,650	11,325	7,1360	5,69	4,0	MMSA+3%U ₃ O ₈ pv	10,380	9,440	6,9940	9,76	9,69	3,9178	9,76	9,68	3,89
MM A+3%U ₃ O ₈ pv	12,630	11,330	7,1450	5,70	4,0	MM A+3%U ₃ O ₈ pv	10,380	9,450	7,0070	9,76	9,69	3,8424	0,01	0,01	0,04
MM A+3%U ₃ O ₈ pv	12,660	11,320	7,1350	5,69	4,0	MM A+3%U ₃ O ₈ pv	10,375	9,450	7,0120	9,77	9,67	3,9026			
MMSA+7%U ₃ O ₈ pv	12,785	11,325	7,1800	5,66	4,0	MMSA+7%U ₃ O ₈ pv	10,480	9,440	7,0240	9,71	9,64	4,1581	9,70	9,64	4,17
MMSA+7%U ₃ O ₈ pv	12,840	11,320	7,1800	5,64	4,0	MMSA+7%U ₃ O ₈ pv	10,510	9,425	7,0230	9,71	9,64	4,1151	0,02	0,01	0,05
MMSA+7%U ₃ O ₈ pv	12,810	11,320	7,1990	5,67	4,0	MMSA+7%U ₃ O ₈ pv	10,500	9,460	7,0450	9,68	9,63	4,2238			
MMSA+10%U ₃ O ₈ pv	12,875	11,320	7,1480	5,60	4,0	MMSA+10%U ₃ O ₈ pv	10,520	9,410	6,9850	9,68	9,61	4,4168	9,66	9,60	4,55
MMSA+10%U ₃ O ₈ pv	12,640	11,310	7,1350	5,71	4,0	MMSA+10%U ₃ O ₈ pv	10,400	9,490	6,9940	9,64	9,61	4,6451	0,02	0,01	0,12
MMSA+10%U ₃ O ₈ pv	12,815	11,320	7,1390	5,62	4,0	MMSA+10%U ₃ O ₈ pv	10,490	9,420	6,9760	9,67	9,59	4,5768			
MMSA+3%(U,Gd)O ₂ cp	12,455	11,320	7,1320	5,78	4,0	MMSA+3%(U,Gd)O ₂ cp	10,235	9,480	7,0000	9,83	9,78	3,2091	9,82	9,78	3,21
MMSA+3%(U,Gd)O ₂ cp	12,580	11,330	7,1330	5,71	4,0	MMSA+3%(U,Gd)O ₂ cp	10,320	9,440	7,0030	9,83	9,79	3,2389	0,02	0,01	0,03
MMSA+3%(U,Gd)O ₂ cp	12,510	11,325	7,1900	5,80	4,0	MMSA+3%(U,Gd)O ₂ cp	10,290	9,510	7,0590	9,79	9,78	3,1697			
MMSA+7%(U,Gd)O ₂ cp	12,650	11,335	7,1660	5,70	4,0	MMSA+7%(U,Gd)O ₂ cp	10,335	9,435	7,0350	9,87	9,83	3,0965	9,88	9,83	3,03
MMAS+7%(U,Gd)O ₂ cp	12,540	11,330	7,1450	5,74	4,0	MMAS+7%(U,Gd)O ₂ cp	10,255	9,460	7,0150	9,87	9,83	2,8953	0,01	0,00	0,11
MM SA+7%(U,Gd)O ₂ cp	12,660	11,320	7,1620	5,71	4,0	MM SA+7%(U,Gd)O ₂ cp	10,340	9,420	7,0300	9,89	9,83	3,0847			
MMSA+10%(U,Gd)O ₂ cp	12,650	11,320	7,1550	5,71	4,0	MMSA+10%(U,Gd)O ₂ cp	10,310	9,400	7,0250	9,96	9,88	2,5384	9,95	9,87	2,54
MMSA+10%(U,Gd)O ₂ cp	12,710	11,320	7,1780	5,70	4,0	MMSA+10%(U,Gd)O ₂ cp	10,340	9,400	7,0490	9,96	9,88	2,5569	0,01	0,02	0,01
MMSA+10%(U,Gd)O ₂ cp	12,640	11,330	7,1430	5,69	4,0	MMSA+10%(U,Gd)O ₂ cp	10,295	9,410	7,0140	9,94	9,85	2,5349			

Na **Tabela 4** estão ilustradas as características físicas e dimensionais das pastilhas verdes e sinterizadas, além da densidade geométrica, densidade hidrostática e porosidade aberta com suas respectivas médias e desvios padrão, para pastilhas de $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ produzidas sem aditivo e com os reciclados. Para que uma pastilha esteja de acordo com a especificação quanto a porosidade aberta é necessário que esta seja menor que 3 % e quanto a densidade hidrostática que esteja dentro do intervalo de 9,98 a 10,28 g/cm^3 (RIELLA, 1985). Pela análise da **Tabela 4** observa-se praticamente que, em nenhuma das misturas se conseguiu atingir estes parâmetros. Com base na literatura (IAEA - Tecdoc-1036, 1996) tem-se que uma maneira de se atender essas especificações é usando um aditivo de densificação. Nesse caso e a partir da realização de alguns ensaios adotou-se o hidróxido de alumínio (Al(OH)_3) como aditivo de densificação para o processo de obtenção do veneno queimável $(\text{U-Gd})\text{O}_2$. Portanto os testes preliminares fundamentam o objetivo geral do processo do presente trabalho: Estudo do processo de densificação de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ com o aditivo Al(OH)_3 .

A **Figura 10** é uma micrografia da estrutura interna de uma pastilha de $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ na qual foram adicionados 10 % do reciclado U_3O_8 ps, e não se utilizou Al(OH)_3 como aditivo de densificação. Observa-se uma grande quantidade de poros internos, fazendo com que não se obtenha a densidade especificada, como está evidenciado na **Tabela 4**.

Figura 10 – Pastilha de $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ com 10 % U_3O_8 ps e sem aditivo

Na **Tabela 5** apresentam-se resumidamente as características físicas dessas pastilhas: densidade geométrica, densidade hidrostática, porosidade aberta, tamanho médio de poros e tamanho médio de grãos, com seus respectivos desvios padrão, além da concentração do reciclo utilizados.

Tabela 5 – Características físicas das pastilhas sinterizadas de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com reciclo e sem o uso do $\text{Al}(\text{OH})_3$.

U_3O_8 ps (%)	U_3O_8 pv (%)	$(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (g/cm^3)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
0,0	0,0	0,0	$9,83 \pm 0,02$	$9,81 \pm 0,02$	$4,02 \pm 0,28$	$5,02 \pm 4,14$	$4,38 \pm 2,95$
3,0	--	--	$9,77 \pm 0,02$	$9,71 \pm 0,02$	$3,64 \pm 0,04$	$4,58 \pm 3,60$	$4,68 \pm 2,81$
7,0	--	--	$9,77 \pm 0,01$	$9,70 \pm 0,01$	$3,74 \pm 0,12$	$4,24 \pm 3,49$	$3,91 \pm 2,56$
10,0	--	--	$9,75 \pm 0,02$	$9,69 \pm 0,00$	$3,78 \pm 0,15$	$4,21 \pm 3,04$	$4,38 \pm 2,91$
--	3,0	--	$9,76 \pm 0,01$	$9,68 \pm 0,01$	$3,89 \pm 0,04$	$5,27 \pm 4,15$	$3,99 \pm 2,84$
--	7,0	--	$9,70 \pm 0,02$	$9,64 \pm 0,01$	$4,17 \pm 0,05$	$4,22 \pm 3,48$	$4,51 \pm 2,86$
--	10,0	--	$9,66 \pm 0,02$	$9,60 \pm 0,01$	$4,55 \pm 0,12$	$4,54 \pm 3,72$	$4,21 \pm 2,75$
--	--	3,0	$9,82 \pm 0,02$	$9,78 \pm 0,01$	$3,21 \pm 0,03$	$4,02 \pm 3,08$	$4,42 \pm 2,88$
--	--	7,0	$9,88 \pm 0,01$	$9,83 \pm 0,00$	$3,03 \pm 0,11$	$4,98 \pm 3,80$	$4,59 \pm 2,78$
--	--	10,0	$9,95 \pm 0,02$	$9,87 \pm 0,01$	$2,54 \pm 0,01$	$4,69 \pm 3,99$	$4,72 \pm 2,99$

tamanho médio de poros e tamanho médio de grãos

A análise do tamanho de poros e grãos é realizada por meio de um “software” que faz o processamento de imagens enviadas por um microscópio ótico. O resultado da análise é uma média do processamento de, pelos menos, 10 campos da superfície de corte da pastilha.

O resultado da análise de poros pode ser dado na forma de um gráfico da frequência (%) de poros em função de seu diâmetro equivalente (μm), e o resultado da análise de grãos pode ser dado na forma de um gráfico cumulativo da frequência (%) de grãos em função de seu intercepto médio (μm). As **Figuras 11e 12** ilustram um exemplo do resultado dessa análise.

Figura 11 – Tamanho médio de poros de uma pastilha obtida sem aditivo com 3 % do reciclo U_3O_8 ps

Figura 12 – Tamanho médio de grãos de uma pastilha obtida sem aditivo com 3 % do reciclo U_3O_8 ps

Fundamentada a importância das especificações de um combustível nuclear, devemos considerar que:

- Muitas propriedades básicas das pastilhas de $\text{UO}_2/(\text{U-Gd})\text{O}_2$, tais como, condutividade térmica, constante elástica, resistência mecânica e fluência dependem tanto da densidade quanto da distribuição de poros e grãos. As especificações microestruturais das pastilhas de $\text{UO}_2/(\text{U-Gd})\text{O}_2$ baseiam-se no compromisso das seguintes necessidades:

a) altas densidades não permitem acomodação dos produtos de fissão;

b) para compensar o inchamento da matriz, é necessária certa porosidade.

- A forma e distribuição de poros são características que dependem do processo de fabricação e dos aditivos. Os ensaios de ressinterização fornecem dados sobre a estabilidade da estrutura interna da pastilha de $\text{UO}_2/(\text{U-Gd})\text{O}_2$. As porosidades aberta e fechada podem ser ajustadas independentemente dentro de uma determinada faixa. O tamanho médio do grão na microestrutura da pastilha de $\text{UO}_2/(\text{U-Gd})\text{O}_2$ normalmente é especificado para evitar efeitos negativos causados quando se tem um tamanho de grão muito pequeno ou muito grande. Um tamanho de grão muito pequeno aumenta a plasticidade do material, enquanto que grãos grandes conduzem a uma redução da taxa de fluência levando a instabilidade dimensional.

2.1 Objetivos específicos

Os objetivos específicos deste trabalho estão listados a seguir:

- estudar a influência do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ na densificação (densidade e retração linear) das pastilhas de $(\text{U-Gd})\text{O}_2$ contendo 7 % de Gd_2O_3 , para os teores de 0,10; 0,15; 0,20; 0,25 e 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$;
- estudar a influência do rejeito adicionado, na forma de U_3O_8 obtido de pastilhas

verdes e sinterizadas e na forma de (U,Gd)O₂ coprecipitado, na densificação das pastilhas de (U-Gd)O₂ com 7 % de Gd₂O₃, para os teores de 3, 7 e 10 % de rejeito;

- avaliar a evolução microestrutural das pastilhas em termos de poros e grãos;
- relacionar o crescimento e/ou diminuição dos grãos com o aditivo Al(OH)₃ e com o reciclo dos rejeitos na forma de U₃O₈ ps, U₃O₈ pv ou (U,Gd)O₂ cp;
- relacionar o crescimento e/ou diminuição do volume de poros com o aditivo Al(OH)₃ e com os reciclo dos rejeitos na forma de U₃O₈ ps, U₃O₈ pv ou (U,Gd)O₂ cp;

Os limites inferiores e superiores dos componentes das misturas foram estabelecidos por meio de estudos prévios e são os seguintes: quanto ao aditivo Al(OH)₃, para concentrações menores que 0,10 %, somente se alcançava a densidade especificada em algumas misturas. Para concentrações maiores que 0,30 % o teor de Al residual na pastilha sinterizada de UO₂-7%Gd₂O₃ foi superior ao limite especificado de 250 µg/gU; quanto às concentrações de U₃O₈, o limite de 10 % foi considerado devido a informações contidas na **Figura 9** de que, numa planta industrial, trabalhando em condições normais, não há um reciclo superior a este valor.

3. Metodologia

De uma maneira geral o desenvolvimento do processo é composto, além da revisão bibliográfica, de: caracterização físico-química de todas as matérias prima envolvidas, caracterização e análise dos produtos intermediários, obtenção do produto final e caracterização e análise do produto final confrontando-o com as especificações.

Na **Figura 13** estão ilustradas as principais atividades envolvidas no procedimento experimental.

Figura 13 - Fluxograma do procedimento experimental

4. Procedimento Experimental

4.1 Caracterização físico-química

O processo proposto neste trabalho consiste em se obter pastilhas de

urânia-gadolínia por meio da mistura mecânica dos pós de UO_2 , de Gd_2O_3 , do reciclo e do aditivo. Seguindo o fluxograma do procedimento, após a obtenção dos pós usado como reciclo e antes de se processar as misturas, fez-se a caracterização físico-química de todos os compostos envolvidos no processo: UO_2 , Gd_2O_3 , U_3O_8 ps, U_3O_8 pv e $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp. O $\text{Al}(\text{OH})_3$ utilizado foi de alta pureza fabricado pela Merck.

Para a caracterização desses produtos utilizaram-se as seguintes técnicas / equipamentos:

- impurezas gerais: espectrometria de emissão ótica com plasma induzido (ICP-OES)
- teor de fluoreto e cloreto: cromatografia de íons
- teor de Gd_2O_3 : espectrometria de emissão ótica com plasma induzido (ICP-OES) ou fluorescência de raios x
- relação O/U: polarografia - voltametria
- teor de urânio: polarografia - voltametria ou análise gravimétrica
- teores de C, N, H: combustão direta / analisadores de C, N e H da LECO
- determinação das fases: difratometria de raios x
- superfície específica: área de superfície específica – BET / Área Mettler II
- distribuição granulométrica: análise granulométrica a raios x / Sedigraph 5000ET
- tamanho de grãos: distribuição do tamanho de grãos / analisador de imagens LECO
- tamanho de poros: distribuição do tamanho de poros / analisador de imagens LECO

- microestrutura: caracterização microestrutural e química semi-quantitativa por microscopia eletrônica de varredura e espectrometria de energia dispersiva / MEV / EDS.

Nas **Tabelas 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12 e 13** estão sumarizados os resultados das análises química e física dos compostos utilizados para produção das pastilhas do veneno queimável integrado (U-Gd)O₂. Os resultados apresentados são valores médios com seus respectivos desvio padrão.

Tabela 6 - Análise química do pó de UO₂

Elementos	UO ₂
Al (µg/gU)	< 0,128
Si (µg/gU)	< 0,112
Ca (µg/gU)	< 0,016
Fe (µg/gU)	1,472 ± 0,126
Ni (µg/gU)	0,224 ± 0,053
Zn (µg/gU)	< 1,223
Cl ⁻ (µg/gU)	< 0,50
F ⁻ (µg/gU)	9,98 ± 1,60
N (µg/gU)	13,42 ± 0,00
C (µg/gU)	163,25 ± 11,57
Gases residuais (mm ³ /g UO ₂ -Gd ₂ O ₃)	31,22 ± 0,45
H equivalente (mm ³ /g UO ₂ -Gd ₂ O ₃)	1,90 ± 0,13
U _{Tot} (%)	87,50 ± 0,50
O/U	2,25
Teor de umidade (%)	0,24 ± 0,04

Tabela 7 - Análise física do pó de UO_2

Análise	UO_2
Escoabilidade (50 g)	$4,43 \pm 0,40$ s
Densidade solta (g/cm^3)	$2,43 \pm 0,01$
BET (m^2/g) Área Metter II	$5,24 \pm 0,16$
Volume de microporos (cm^3/g)	0,005986
Diâmetro médio de microporos (Angstrom)	45,7
Diâmetro médio – Sedigraph (μm)	$10,30 \pm 0,71$
Picnometria de Hélio (g/cm^3)	$10,86 \pm 0,12$
Difração	UO_2

Tabela 8 - Análise química do pó de Gd_2O_3

Elemento	Gd_2O_3	Especificação (RIELLA, 1985)
Cd ($\mu\text{g/gU}$)	$0,99 \pm 0,115$	20
Si ($\mu\text{g/gU}$)	$3,26 \pm 0,44$	400
Ti ($\mu\text{g/gU}$)	$18,534 \pm 0,055$	-----
B ($\mu\text{g/gU}$)	$2,36 \pm 0,16$	5
Ca ($\mu\text{g/gU}$)	$63,8 \pm 0,30$	400
Fe ($\mu\text{g/gU}$)	$3,14 \pm 0,14$	400
Ni ($\mu\text{g/gU}$)	$1057 \pm 0,10$	100
Zn ($\mu\text{g/gU}$)	$< 1,223$	-----
Cl^- ($\mu\text{g/gU}$)	$31,05 \pm 0,60$	50
F^- ($\mu\text{g/gU}$)	$0,58 \pm 0,04$	50
N ($\mu\text{g/gU}$)	$950,9 \pm 57,1$	1000
Th ($\mu\text{g/gU}$)	$081 \pm 0,15$	20
C ($\mu\text{g/gU}$)	$321,47 \pm 12,14$	1000
Sm* ($\mu\text{g/gU}$)	$5,00 \pm 1,19$	* Σ 500 $\mu\text{g/g}$ Gd máx
Dy* ($\mu\text{g/gU}$)	$3,08 \pm 0,40$	
Yb* ($\mu\text{g/gU}$)	$4,01 \pm 0,22$	
Eu* ($\mu\text{g/gU}$)	$3,14 \pm 0,12$	
Tb* ($\mu\text{g/gU}$)	$3,85 \pm 0,29$	
Teor de umidade (%)	$0,23 \pm 0,06$	----

Tabela 9 - Análise física do pó de Gd_2O_3

Análise	Gd_2O_3
Densidade solta (g/cm^3)	$2,40 \pm 0,01$
BET (m^2/g) Área Metter II	$1,26 \pm 0,01$
Diâmetro médio – Sedigraph (μm)	$1,8 \pm 0,2$
Picnometria de Hélio (g/cm^3)	$7,44 \pm 0,01$
Difração	Gd_2O_3

Tabela 10 - Análise química do pó de U_3O_8 obtido a partir da calcinação de pastilhas verdes e sinterizadas

Elemento	U_3O_8 ps	U_3O_8 pv
Al ($\mu\text{g}/\text{gU}$)	$59,820 \pm 0,710$	$234,682 \pm 1,100$
Si ($\mu\text{g}/\text{gU}$)	$3,508 \pm 0,230$	$<0,010$
Ca ($\mu\text{g}/\text{gU}$)	$35,171 \pm 0,341$	$28,067 \pm 0,885$
Fe ($\mu\text{g}/\text{gU}$)	$4,935 \pm 0,107$	$2,600 \pm 0,074$
Ni ($\mu\text{g}/\text{gU}$)	$< 0,011$	$0,630 \pm 0,258$
Zn ($\mu\text{g}/\text{gU}$)	$1,254 \pm 0,319$	$222,486 \pm 2,547$
Cl^- ($\mu\text{g}/\text{gU}$)	$3,03 \pm 0,13$	$12,76 \pm 1,11$
F^- ($\mu\text{g}/\text{gU}$)	$4,91 \pm 0,50$	$23,26 \pm 0,31$
C ($\mu\text{g}/\text{gU}$)	$0,026 \pm 0,002$	$0,031 \pm 0,001$
Teor de Gd_2O_3 (%)	$6,75 \pm 0,01$	$6,74 \pm 0,02$

Tabela 11 - Análise física do pó de U_3O_8 obtido a partir da calcinação de pastilhas verdes e sinterizadas

Análise	U_3O_8 ps	U_3O_8 pv
Escoabilidade (50 g)	$1,0 \pm 0,1$ s	$8,0 \pm 0,5$ s
Densidade solta (g/cm^3)	$2,03 \pm 0,02$	$1,55 \pm 0,02$
BET (m^2/g) Área Metter II	$1,17 \pm 0,05$	$5,30 \pm 0,13$
Diâmetro médio – Sedigraph (μm)	$11,5 \pm 0,71$	$8,70 \pm 0,14$
Difração	U_3O_8	U_3O_8

Tabela 12 - Análise química do pó de (U,Gd)O₂ obtido a partir da coprecipitação do Gd com U na forma de DUA.

Elemento	(U,Gd)O ₂ cp
Al (μg/gU)	5,955 ± 0,445
Si (μg/gU)	< 0,189
Ca (μg/gU)	20,225 ± 0,627
Fe (μg/gU)	86,226 ± 2,046
Ni (μg/gU)	6,233 ± 0,358
Zn (μg/gU)	465,264 ± 17,798
Cl ⁻ (μg/gU)	< 0,5
F ⁻ (μg/gU)	6,86 ± 0,17
C (μg/gU)	0,273 ± 0,002
Teor de Gd ₂ O ₃ (%)	7,07 ± 0,02

Tabela 13 - Análise física do pó de (U,Gd)O₂ obtido a partir da coprecipitação do Gd com U na forma de DUA.

Análise	(U,Gd)O ₂ cp
Escoabilidade (50 g)	10,0 ± 0,2 s
Densidade solta (g/cm ³)	1,45 ± 0,03
BET (m ² /g) Área Mettler II	3,00 ± 0,10
Diâmetro médio – Sedigraph (μm)	2,70 ± 0,14
Difração	UO ₂

4.2 Preparação das misturas

Após a caracterização físico-química das matérias primas e dos compostos que foram utilizados como reciclo, preparou-se uma série de misturas, a partir das quais foram produzidas as pastilhas de (U-Gd)O₂. A partir da mistura matriz – 93 % UO₂ + 7 % Gd₂O₃, preparou-se cinco misturas por meio da adição de 0,10; 0,15; 0,20; 0,25 e 0,30 % de Al(OH)₃, as quais foram denominadas de MM10, MM15, MM20, MM25 e MM30 respectivamente. A cada uma dessas cinco misturas foi adicionado os três tipos de reciclo (U₃O₈ ps, U₃O₈ pv e (U,Gd)O₂ cp) em três concentrações diferentes – 3, 7 e 10 %, perfazendo um total de 50 misturas. Na **Figura 14** está ilustrado o fluxograma para a preparação de todas as misturas, a partir das quais se produziu as pastilhas do veneno queimável homogêneo (U-Gd)O₂.

Figura 14 - Fluxograma para preparação das misturas

4.3 Condições do processo de fabricação e principais especificações físicas para as pastilhas sinterizadas de (U-Gd)O₂

4.3.1 Condições do processo de fabricação

A partir das misturas produzidas no item **4.2** (num total de 50 misturas) e também a partir do pó de UO₂ puro, foram obtidas pastilhas utilizando sempre as mesmas condições de processo:

- tempo de homogeneização - 1 h (túrbula)
- diâmetro da matriz - 11,15 mm
- pressão de compactação - 4,0 tf/cm²
- temperatura / tempo de sinterização - 1750 °C / 4,0 horas
- atmosfera de sinterização – hidrogênio industrial (99,95 %)
- calcinação das pastilhas verdes - 500 °C por 1,0 hora
- calcinação das pastilhas sinterizadas – 500 °C por 1,0 hora
- pH de precipitação do DUA para a obtenção do (U,Gd)O₂ cp – 8,0
- temperatura / atmosfera de redução do DUA - 600 °C / H₂ industrial (99,95 %)

4.3.2 Principais especificações físicas para as pastilhas sinterizadas de (U-Gd)O₂

Para que as pastilhas de (U-Gd)O₂ possam ser utilizadas como veneno queimável nos reatores tipo PWR – Angra 2, devem ter a seguinte especificação quanto às características físicas (RIELLA, 1985):

- densidade hidrostática: 9,98 a 10,28 g/cm³

- porosidade aberta: $\leq 3,0 \%$, após retificação
- rugosidade após retificação: $< 1,6 \mu\text{m}$ (Ra)
- tamanho médio de grãos: 7 a $35 \mu\text{m}$ em no mínimo 90 % da superfície de corte
- tamanho médio de poros: a maioria dos poros deve ter diâmetro médio $\leq 100 \mu\text{m}$ em no mínimo 90 % da superfície de corte. Poros $\geq 100 \mu\text{m}$ só podem ocorrer no máximo em 10 % da superfície de corte. Não são admissíveis poros com o diâmetro médio $> 500 \mu\text{m}$ e poros cuja dimensão máxima seja $> 1000 \mu\text{m}$ em um eixo.
- ressinterização: a variação da densidade antes e após um recozimento a uma temperatura $\geq 1700 \text{ }^\circ\text{C}$ com um tempo de permanência $\geq 24 \text{ h}$ em atmosfera redutora, não deve ser maior que $0,142 \text{ g/cm}^3$.
- especificação das partículas de UO_2 que não apresentam dissolução em Gd_2O_3 e das partículas de Gd_2O_3 que não apresentam dissolução em UO_2 são:
 - para Gd_2O_3 :
 - fração livre não deve ultrapassar a 15 % em massa do total de Gd_2O_3
 - tamanho médio da partícula não deve ultrapassar $200 \mu\text{m}$
 - para UO_2 :
 - fração livre não deve ultrapassar a 40 % em massa do total de UO_2
 - tamanho médio da partícula não deve ultrapassar $1.000 \mu\text{m}$

5. Análise e Caracterização

5.1 Características físicas das pastilhas sinterizadas de UO_2

Como um dos objetivos do trabalho é obter pastilhas de $(\text{U-Gd})\text{O}_2$ utilizando as mesmas condições de processo da linha de produção de UO_2 , produziu-se um lote de pastilhas a partir de UO_2 puro (isto é, sem Gd_2O_3 , sem reciclo e sem o aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$) nas mesmas condições de homogeneização, prensagem e sinterização citadas no item **4.3.1**, com o objetivo de confirmar se

essas condições são também suficientes para produção de pastilhas de UO_2 . Os resultados médios e seus desvios padrão, obtidos estão listados a seguir:

- * densidade geométrica: $10,59 \pm 0,01 \text{ g/cm}^3$
- * densidade hidrostática: $10,52 \pm 0,01 \text{ g/cm}^3$ (especificação $10,40 \pm 0,15 \text{ g/cm}^3$)
- * porosidade aberta: $0,07 \pm 0,13 \%$
- diâmetro médio de grão: $11,03 \pm 6,29 \mu\text{m}$
- diâmetro médio de poros: $5,12 \pm 5,40 \mu\text{m}$

obs.: - * valores médios de 20 pastilhas

- Valores obtidos estão de acordo com os especificados (RIELLA, 1985)

Na **Figura 15** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 puro produzido nas condições de processo pré-estabelecidas no item **4.3.1**.

Figura 15 - Pastilha de UO_2 puro

5.2 Planilhas com o dimensional e características físicas das pastilhas verdes e sinterizadas utilizando $\text{Al}(\text{OH})_3$ e os ciclos

A partir da obtenção de todas as misturas citadas no item 4.2 produziram-se pastilhas de veneno queimável integrado $(\text{U-Gd})\text{O}_2$ nas condições de processo citadas no item 4.3.1.

Nas **Tabelas 14, 15, 16, 17 e 18** estão mostradas o dimensional das pastilhas verdes e sinterizadas. Para pastilhas sinterizadas estão também estão indicadas as densidades geométricas e hidrostáticas além da porosidade aberta. Os valores médios se referem a análise de três pastilhas para cada condição com seus respectivos desvios padrão.

Considerando a **Tabela 14**, observa-se que na condição de 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ com 10 % de U_3O_8 pv, não foi alcançada a densidade especificada (valores em vermelho). Obteve-se $9,94 \pm 0,02 \text{ g/cm}^3$, enquanto que densidade hidrostática deve estar no intervalo de 9,98 a $10,28 \text{ g/cm}^3$. Novamente na **Tabela 18**, também se observa uma não conformidade, quanto a densidade hidrostática, para a seguinte condição: 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ com 10 % de U_3O_8 pv (valores em vermelho).

Tabela 14 – Valores dimensionais, de densidades e porosidade aberta das pastilhas de $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ com o uso de reciclós e 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

pastilha verde	h mm	d mm	m g	d.v. g/cm ³	p.c tf/cm ²	pastilha sinterizada	h mm	d mm	m g	d.g. g/cm ³	d. h. g/cm ³	p.a %	d.g. M/S	d.h. M/S	p.a M/S
61 MM10	12,320	11,315	7,0190	5,76	4,0 ton	61 MM10	10,020	9,290	6,8085	10,17	10,12	0,0290	10,18	10,12	0,20
62 MM10	12,425	11,315	7,0000	5,69	4,0 ton	62 MM10	10,045	9,260	6,7930	10,19	10,10	0,1342	0,01	0,02	0,22
63 MM10	12,410	11,310	7,0200	5,72	4,0 ton	63 MM10	10,060	9,270	6,8151	10,19	10,13	0,4470			
64 MM10+3% U_3O_8 ps	12,625	11,300	7,1470	5,74	4,0 ton	64 MM10+3% U_3O_8 ps	10,210	9,270	6,9376	10,22	10,09	0,0146	10,19	10,08	0,08
65 MM10+3% U_3O_8 ps	12,560	11,300	7,1590	5,78	4,0 ton	65 MM10+3% U_3O_8 ps	10,250	9,285	6,9470	10,16	10,05	0,1306	0,03	0,02	0,06
66 MM10+3% U_3O_8 ps	12,560	11,300	7,1480	5,77	4,0 ton	66 MM10+3% U_3O_8 ps	10,175	9,290	6,9346	10,20	10,09	0,1021			
67 MM10+7% U_3O_8 ps	12,565	11,305	7,1820	5,79	4,0 ton	67 MM10+7% U_3O_8 ps	10,260	9,290	6,9640	10,16	10,07	0,1450	10,16	10,07	0,13
68 MM10+7% U_3O_8 ps	12,610	11,305	7,1710	5,76	4,0 ton	68 MM10+7% U_3O_8 ps	10,245	9,290	6,9570	10,16	10,06	0,1161	0,00	0,01	0,02
69 MM10+7% U_3O_8 ps	12,570	11,300	7,1650	5,78	4,0 ton	69 MM10+7% U_3O_8 ps	10,230	9,290	6,9479	10,17	10,07	0,1163			
70 MM10+10% U_3O_8 ps	12,625	11,300	7,1840	5,77	4,0 ton	70 MM10+10% U_3O_8 ps	10,270	9,280	6,9626	10,17	10,03	0,1301	10,14	10,05	0,13
71 MM10+10% U_3O_8 ps	12,530	11,300	7,1250	5,76	4,0 ton	71 MM10+10% U_3O_8 ps	10,220	9,290	6,9080	10,12	10,07	0,0877	0,03	0,02	0,04
72 MM10+10% U_3O_8 ps	12,640	11,300	7,1900	5,76	4,0 ton	72 MM10+10% U_3O_8 ps	10,305	9,285	6,9710	10,14	10,05	0,1591			
73 MM10+3% U_3O_8 pv	12,590	11,300	7,1740	5,77	4,0 ton	73 MM10+3% U_3O_8 pv	10,270	9,310	6,9591	10,10	10,07	0,1016	10,12	10,07	0,18
74 MM10+3% U_3O_8 pv	12,570	11,300	7,1350	5,75	4,0 ton	74 MM10+3% U_3O_8 pv	10,200	9,305	6,9245	10,13	10,07	0,3502	0,02	0,01	0,15
75 MM10+3% U_3O_8 pv	12,670	11,300	7,1610	5,73	4,0 ton	75 MM10+3% U_3O_8 pv	10,260	9,295	6,9505	10,13	10,06	0,0871			
76 MM10+7% U_3O_8 pv	12,625	11,300	7,1370	5,73	4,0 ton	76 MM10+7% U_3O_8 pv	10,230	9,300	6,9002	10,07	10,04	0,2042	10,07	10,00	0,27
77 MM10+7% U_3O_8 pv	12,750	11,295	7,1810	5,71	4,0 ton	77 MM10+7% U_3O_8 pv	10,360	9,290	6,9641	10,06	9,98	0,3307	0,01	0,03	0,06
78 MM10+7% U_3O_8 pv	12,770	11,295	7,1730	5,69	4,0 ton	78 MM10+7% U_3O_8 pv	10,350	9,285	6,9599	10,08	9,99	0,2735			
79 MM 0+10% U_3O_8 pv	12,815	11,290	7,1450	5,66	4,0 ton	79 MM 0+10% U_3O_8 pv	10,390	9,280	6,9298	10,00	9,96	0,5189	10,01	9,94	0,69
80 MM 0+10% U_3O_8 pv	12,720	11,290	7,1530	5,71	4,0 ton	80 MM 0+10% U_3O_8 pv	10,310	9,300	6,9306	10,04	9,94	0,6906	0,02	0,02	0,16
81 MM10+10% U_3O_8 pv	12,900	11,305	7,1560	5,61	4,0 ton	81 MM10+10% U_3O_8 pv	10,455	9,260	6,9362	9,99	9,92	0,8462			
82 MM10+3%(U,Gd) O_2 cp	12,610	11,305	7,1400	5,73	4,0 ton	82 MM10+3%(U,Gd) O_2 cp	10,210	9,300	6,9380	10,15	10,11	0,1690	10,16	10,09	0,22
83 MM10+3%(U,Gd) O_2 cp	12,640	11,305	7,1790	5,75	4,0 ton	83 MM10+3%(U,Gd) O_2 cp	10,260	9,295	6,9743	10,16	10,07	0,3910	0,01	0,02	0,16
84 MM10+3%(U,Gd) O_2 cp	12,585	11,300	7,1690	5,77	4,0 ton	84 MM10+3%(U,Gd) O_2 cp	10,220	9,300	6,9626	10,18	10,10	0,0873			
85 MM10+7%(U,Gd) O_2 cp	11,970	11,295	6,8140	5,78	4,0 ton	85 MM10+7%(U,Gd) O_2 cp	9,720	9,280	6,6233	10,23	10,18	0,1234	10,25	10,17	0,08
86 MM10+7%(U,Gd) O_2 cp	12,715	11,300	7,5070	5,98	4,0 ton	86 MM10+7%(U,Gd) O_2 cp	10,735	9,250	7,3004	10,26	10,19	0,0280	0,02	0,03	0,05
87 MM10+7%(U,Gd) O_2 cp	12,700	11,300	7,1840	5,73	4,0 ton	87 MM10+7%(U,Gd) O_2 cp	10,280	9,260	6,9902	10,24	10,14	0,1019			
88 MM10+10%(U,Gd) O_2 cp	12,645	11,290	7,1800	5,76	4,0 ton	88 MM10+10%(U,Gd) O_2 cp	10,290	9,260	6,9874	10,23	10,17	0,1606	10,25	10,18	0,13
89 MM10+10%(U,Gd) O_2 cp	12,645	11,300	7,1420	5,72	4,0 ton	89 MM10+10%(U,Gd) O_2 cp	10,240	9,245	6,9491	10,26	10,19	0,1176	0,02	0,01	0,03
90 MM10+10%(U,Gd) O_2 cp	12,665	11,295	7,1710	5,74	4,0 ton	90 MM10+10%(U,Gd) O_2 cp	10,240	9,260	6,9750	10,26	10,19	0,1026			

Tabela 15 – Valores dimensionais, de densidades e porosidade aberta das pastilhas de $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ com o uso de reciclós e 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

pastilha verde	h mm	d mm	m g	d.v. g/cm ³	p.c. tf/cm ²	pastilha sinterizada	h mm	d mm	m g	d.g. g/cm ³	d.h. g/cm ³	p.a. %	d.g. M/S	d.h. M/S	p.a. M/S
1 MM15	12,580	11,305	7,1250	5,73	4,0 ton	1 MM15	10,210	9,275	6,9173	10,17	10,12	0,1761	10,20	10,13	0,11
2 MM15	12,690	11,305	7,1820	5,73	4,0 ton	2 MM15	10,270	9,265	6,9752	10,22	10,17	0,0731	0,02	0,03	0,06
3 MM15	12,575	11,300	7,1550	5,76	4,0 ton	3 MM15	10,220	9,280	6,9436	10,19	10,11	0,0876			
4 MM15+3% U_3O_8 ps	12,670	11,300	7,1810	5,74	4,0 ton	4 MM15+3% U_3O_8 ps	10,305	9,290	6,9666	10,12	10,09	0,1889	10,15	10,11	0,16
5 MM15+3% U_3O_8 ps	12,685	11,305	7,1650	5,72	4,0 ton	5 MM15+3% U_3O_8 ps	10,275	9,265	6,9533	10,18	10,12	0,1897	0,03	0,02	0,06
6 MM15+3% U_3O_8 ps	12,695	11,300	7,1790	5,73	4,0 ton	6 MM15+3% U_3O_8 ps	10,295	9,290	6,9711	10,13	10,11	0,0870			
7 MM15+7% U_3O_8 ps	12,670	11,300	7,1810	5,74	4,0 ton	7 MM15+7% U_3O_8 ps	10,305	9,310	6,9621	10,07	10,06	0,1593	10,13	10,10	0,12
8 MM15+7% U_3O_8 ps	12,650	11,300	7,1400	5,72	4,0 ton	8 MM15+7% U_3O_8 ps	10,265	9,280	6,9277	10,12	10,11	0,0146	0,07	0,04	0,09
9 MM15+7% U_3O_8 ps	12,840	11,300	7,1200	5,62	4,0 ton	9 MM15+7% U_3O_8 ps	10,250	9,240	6,9078	10,20	10,14	0,1768			
10 MM15+10% U_3O_8 ps	13,050	11,300	7,1850	5,58	4,0 ton	10 MM15+10% U_3O_8 ps	10,530	9,190	6,9706	10,12	10,08	0,0870	10,11	10,05	0,48
11 MM15+10% U_3O_8 ps	12,630	11,295	7,1590	5,75	4,0 ton	11 MM15+10% U_3O_8 ps	10,310	9,275	6,9383	10,11	9,99	1,1986	0,01	0,05	0,63
12 MM15+10% U_3O_8 ps	12,700	11,300	7,1690	5,72	4,0 ton	12 MM15+10% U_3O_8 ps	10,335	9,270	6,9533	10,11	10,08	0,1454			
13 MM15+3% U_3O_8 pv	12,785	11,300	7,1160	5,64	4,0 ton	13 MM15+3% U_3O_8 pv	10,315	9,300	6,9115	10,01	10,09	0,1456	10,03	10,10	0,33
14 MM15+3% U_3O_8 pv	12,970	11,300	7,1520	5,58	4,0 ton	14 MM15+3% U_3O_8 pv	10,430	9,245	6,9376	10,05	10,11	0,2330	0,02	0,01	0,25
15 MM15+3% U_3O_8 pv	12,880	11,300	7,1880	5,65	4,0 ton	15 MM15+3% U_3O_8 pv	10,425	9,280	6,9749	10,03	10,10	0,6203			
16 MM15+7% U_3O_8 pv	12,760	11,295	7,1410	5,67	4,0 ton	16 MM15+7% U_3O_8 pv	10,320	9,285	6,9233	10,05	10,06	0,2768	10,05	10,08	0,20
17 MM15+7% U_3O_8 pv	12,850	11,290	7,1330	5,63	4,0 ton	17 MM15+7% U_3O_8 pv	10,380	9,280	6,9210	10,00	10,08	0,1314	0,05	0,02	0,07
18 MM15+7% U_3O_8 pv	12,850	11,290	7,1950	5,68	4,0 ton	18 MM15+7% U_3O_8 pv	10,460	9,240	6,9816	10,10	10,09	0,2028			
19 MM15+10% U_3O_8 pv	12,940	11,290	7,1930	5,64	4,0 ton	19 MM15+10% U_3O_8 pv	10,420	9,230	6,9757	10,15	10,09	0,1885	10,14	10,07	0,16
20 MM15+10% U_3O_8 pv	12,920	11,290	7,1860	5,64	4,0 ton	20 MM15+10% U_3O_8 pv	10,450	9,235	6,9719	10,10	10,06	0,1158	0,03	0,02	0,04
21 MM15+10% U_3O_8 pv	12,820	11,190	7,1220	5,74	4,0 ton	21 MM15+10% U_3O_8 pv	10,320	9,230	6,9075	10,15	10,07	0,1609			
22 MM15+3%(U,Gd) O_2 cp	12,605	11,300	7,1620	5,76	4,0 ton	22 MM15+3%(U,Gd) O_2 cp	10,240	9,270	6,9580	10,22	10,17	0,2198	10,19	10,17	0,09
23 MM15+3%(U,Gd) O_2 cp	12,695	11,300	7,1530	5,71	4,0 ton	23 MM15+3%(U,Gd) O_2 cp	10,280	9,270	6,9489	10,16	10,19	0,0147	0,03	0,02	0,11
24 MM15+3%(U,Gd) O_2 cp	12,650	11,300	7,1460	5,72	4,0 ton	24 MM15+3%(U,Gd) O_2 cp	10,280	9,255	6,9447	10,19	10,16	0,0443			
25 MM15+7%(U,Gd) O_2 cp	12,675	11,300	7,1850	5,74	4,0 ton	25 MM15+7%(U,Gd) O_2 cp	10,290	9,250	6,9841	10,25	10,18	0,1608	10,21	10,17	0,22
26 MM15+7%(U,Gd) O_2 cp	12,810	11,305	7,1950	5,68	4,0 ton	26 MM15+7%(U,Gd) O_2 cp	10,360	9,280	6,9958	10,13	10,18	0,2626	0,07	0,01	0,06
27 MM15+7%(U,Gd) O_2 cp	12,660	11,295	7,1480	5,73	4,0 ton	27 MM15+7%(U,Gd) O_2 cp	10,260	9,245	6,9509	10,24	10,16	0,2491			
28 MM15+10%(U,Gd) O_2 cp	12,985	11,300	7,1720	5,59	4,0 ton	28 MM15+10%(U,Gd) O_2 cp	10,450	9,200	6,9771	10,19	10,21	0,1321	10,20	10,22	0,13
29 MM15+10%(U,Gd) O_2 cp	12,930	11,300	7,1830	5,63	4,0 ton	29 MM15+10%(U,Gd) O_2 cp	10,420	9,200	6,9860	10,23	10,22	0,1467	0,04	0,01	0,02
30 MM15+10%(U,Gd) O_2 cp	13,300	11,300	7,1520	5,44	4,0 ton	30 MM15+10%(U,Gd) O_2 cp	10,590	9,140	6,9591	10,16	10,23	0,1032			

Tabela 16 – Valores dimensionais, de densidades e porosidade aberta das pastilhas de $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ com o uso de reciclós e 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

pastilha verde	h mm	d mm	m g	d.v. g/cm ³	p.c. tf/cm ²	pastilha sinterizada	h mm	d mm	m g	d.g. g/cm ³	d.h. g/cm ³	p.a. %	d.g. M/S	d.h. M/S	p.a. M/S
931 MM20	12,820	11,300	7,1970	5,69	4,0 ton	931 MM20	10,320	9,230	6,9869	10,27	10,18	0,0584	10,26	10,18	0,15
932 MM20	12,710	11,300	7,1460	5,70	4,0 ton	932 MM20	10,250	9,225	6,9352	10,27	10,21	0,1476	0,02	0,03	0,09
933 MM20	12,700	11,300	7,1250	5,68	4,0 ton	933 MM20	10,260	9,220	6,9154	10,24	10,16	0,2357			
934 MM20+3% U_3O_8 ps	12,645	11,300	7,1530	5,73	4,0 ton	934 MM20+3% U_3O_8 ps	10,260	9,250	6,9368	10,21	10,15	0,2494	10,19	10,14	0,17
935 MM20+3% U_3O_8 ps	12,670	11,305	7,1280	5,69	4,0 ton	935 MM20+3% U_3O_8 ps	10,270	9,255	6,9205	10,16	10,14	0,1469	0,03	0,01	0,07
936 MM20+3% U_3O_8 ps	12,690	11,305	7,1330	5,69	4,0 ton	936 MM20+3% U_3O_8 ps	10,270	9,240	6,9226	10,20	10,13	0,1174			
937 MM20+7% U_3O_8 ps	12,635	11,300	7,1240	5,71	4,0 ton	937 MM20+7% U_3O_8 ps	10,265	9,245	6,9119	10,18	10,13	0,0882	10,18	10,12	0,12
938 MM20+7% U_3O_8 ps	12,700	11,305	7,1640	5,71	4,0 ton	938 MM20+7% U_3O_8 ps	10,520	9,160	6,9482	10,17	10,10	0,1312	0,01	0,02	0,03
939 MM20+7% U_3O_8 ps	12,750	11,305	7,1450	5,67	4,0 ton	939 MM20+7% U_3O_8 ps	10,325	9,230	6,9310	10,18	10,12	0,1464			
940 MM 0+10% U_3O_8 ps	12,795	11,300	7,1500	5,66	4,0 ton	940 MM 0+10% U_3O_8 ps	10,305	9,245	6,9311	10,17	10,07	0,1602	10,15	10,09	0,14
941 MM20+10% U_3O_8 ps	12,920	11,300	7,1490	5,60	4,0 ton	941 MM20+10% U_3O_8 ps	10,425	9,210	6,9331	10,13	10,09	0,0584	0,02	0,02	0,07
942 MM20+10% U_3O_8 ps	12,640	11,300	7,1680	5,75	4,0 ton	942 MM20+10% U_3O_8 ps	10,315	9,265	6,9487	10,14	10,10	0,1895			
943 MM20+3% U_3O_8 pv	12,725	11,300	7,1410	5,68	4,0 ton	943 MM20+3% U_3O_8 pv	10,275	9,240	6,9307	10,21	10,15	0,1469	10,22	10,16	0,15
944 MM20+3% U_3O_8 pv	12,830	11,290	7,1960	5,69	4,0 ton	944 MM20+3% U_3O_8 pv	10,315	9,240	6,9846	10,25	10,15	0,1749	0,03	0,01	0,02
945 MM20+3% U_3O_8 pv	12,745	11,295	7,1840	5,72	4,0 ton	945 MM20+3% U_3O_8 pv	10,325	9,245	6,9650	10,20	10,17	0,1318			
946 MM20+7% U_3O_8 pv	12,825	11,290	7,1580	5,66	4,0 ton	946 MM20+7% U_3O_8 pv	10,330	9,230	6,9445	10,19	10,16	0,1614	10,22	10,15	0,24
947 MM20+7% U_3O_8 pv	12,830	11,295	7,1940	5,68	4,0 ton	947 MM20+7% U_3O_8 pv	10,320	9,235	6,9736	10,24	10,13	0,2476	0,03	0,02	0,08
948 MM20+7% U_3O_8 pv	12,800	11,300	7,1580	5,66	4,0 ton	948 MM20+7% U_3O_8 pv	10,295	9,230	6,9427	10,23	10,15	0,3215			
949 MM20+10% U_3O_8 pv	12,850	11,300	7,1420	5,63	4,0 ton	949 MM20+10% U_3O_8 pv	10,310	9,215	6,9165	10,21	10,11	0,3079	10,18	10,14	0,20
950 MM20+10% U_3O_8 pv	12,970	11,295	7,1740	5,61	4,0 ton	950 MM20+10% U_3O_8 pv	10,415	9,220	6,9567	10,15	10,15	0,2632	0,03	0,03	0,16
951 MM20+10% U_3O_8 pv	12,880	11,290	7,1540	5,64	4,0 ton	951 MM20+10% U_3O_8 pv	10,370	9,215	6,9369	10,18	10,17	0,0147			
952 MM 20+3%(U,Gd) O_2 cp	12,640	11,300	7,1350	5,72	4,0 ton	952 MM 20+3%(U,Gd) O_2 cp	10,210	9,240	6,9289	10,27	10,24	0,1926	10,25	10,23	0,18
953 MM20+3%(U,Gd) O_2 cp	12,920	11,310	7,1730	5,61	4,0 ton	953 MM20+3%(U,Gd) O_2 cp	10,405	9,200	6,9708	10,23	10,24	0,1326	0,02	0,02	0,04
954 MM20+3%(U,Gd) O_2 cp	12,655	11,310	7,1240	5,69	4,0 ton	954 MM20+3%(U,Gd) O_2 cp	10,200	9,240	6,9182	10,26	10,21	0,2072			
955 MM20+7%(U,Gd) O_2 cp	12,630	11,310	7,1390	5,72	4,0 ton	955 MM20+7%(U,Gd) O_2 cp	10,200	9,235	6,9297	10,29	10,25	0,2226	10,28	10,25	0,17
956 MM20+7%(U,Gd) O_2 cp	12,800	11,305	7,2010	5,69	4,0 ton	956 MM20+7%(U,Gd) O_2 cp	10,330	9,230	6,9979	10,27	10,26	0,1029	0,01	0,02	0,06
957 MM20+7%(U,Gd) O_2 cp	12,710	11,305	7,1590	5,70	4,0 ton	957 MM20+7%(U,Gd) O_2 cp	10,265	9,230	6,9612	10,28	10,23	0,1768			
958 MM20+10%(U,Gd) O_2 cp	12,760	11,300	7,2100	5,72	4,0 ton	958 MM20+10%(U,Gd) O_2 cp	10,315	9,235	7,0083	10,29	10,26	0,1616	10,29	10,26	0,14
959 MM20+10%(U,Gd) O_2 cp	12,650	11,300	7,1230	5,70	4,0 ton	959 MM20+10%(U,Gd) O_2 cp	10,215	9,235	6,9288	10,28	10,26	0,1336	0,01	0,01	0,02
960 MM20+10%(U,Gd) O_2 cp	12,610	11,290	7,1240	5,73	4,0 ton	960 MM20+10%(U,Gd) O_2 cp	10,190	9,240	6,9297	10,29	10,25	0,1187			

Tabela 17 – Valores dimensionais, de densidades e porosidade aberta das pastilhas de $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ com o uso de reciclós e 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

pastilha verde	h mm	d mm	m g	d.v. g/cm ³	p.c. tf/cm ²	pastilha sinterizada	h mm	d mm	m g	d.g. g/cm ³	d.h. g/cm ³	p.a %	d.g. M/S	d.h. M/S	p.a. M/S
31 MM25	12,760	11,300	7,1610	5,68	4,0 ton	31 MM25	10,310	9,240	6,9499	10,20	10,17	0,1908	10,20	10,17	0,20
32 MM25	12,810	11,300	7,1800	5,68	4,0 ton	32 MM25	10,370	9,225	6,9683	10,20	10,15	0,0438	0,00	0,02	0,16
33 MM25	12,635	11,300	7,1800	5,76	4,0 ton	33 MM25	10,250	9,250	6,9268	10,20	10,18	0,3684			
34 MM25+3% U_3O_8 ps	12,770	11,300	7,1710	5,69	4,0 ton	34 MM25+3% U_3O_8 ps	10,350	9,250	6,9547	10,15	10,14	0,2486	10,16	10,11	0,19
35 MM25+3% U_3O_8 ps	12,610	11,300	7,1400	5,74	4,0 ton	35 MM25+3% U_3O_8 ps	10,250	9,265	6,9212	10,16	10,10	0,1171	0,01	0,02	0,07
36 MM25+3% U_3O_8 ps	12,710	11,300	7,1570	5,70	4,0 ton	36 MM25+3% U_3O_8 ps	10,310	9,245	6,9401	10,17	10,10	0,2043			
37 MM25+7% U_3O_8 os	12,605	11,300	7,1570	5,75	4,0 ton	37 MM25+7% U_3O_8 os	10,290	9,270	6,9339	10,13	10,10	0,1461	10,15	10,08	0,33
38 MM25+7% U_3O_8 ps	12,770	11,300	7,1800	5,70	4,0 ton	38 MM25+7% U_3O_8 ps	10,380	9,235	6,9610	10,16	10,06	0,4930	0,02	0,02	0,17
39 M 25+7% U_3O_8 ps	12,640	11,300	7,1540	5,73	4,0 ton	39 M 25+7% U_3O_8 ps	10,270	9,265	6,9335	10,16	10,07	0,3495			
40 MM25+10% U_3O_8 ps	12,680	11,295	7,1800	5,74	4,0 ton	40 MM25+10% U_3O_8 ps	10,340	9,265	6,9547	10,12	10,05	0,1450	10,16	10,07	0,12
41 MM25+10% U_3O_8 ps	12,640	11,310	7,1460	5,72	4,0 ton	41 MM25+10% U_3O_8 ps	10,260	9,260	6,9255	10,17	10,09	0,0732	0,03	0,02	0,04
42 MM25+10% U_3O_8 ps	12,635	11,295	7,1800	5,76	4,0 ton	42 MM25+10% U_3O_8 ps	10,315	9,250	6,9604	10,19	10,08	0,1307			
43 MM25+3% U_3O_8 pv	12,685	11,290	7,1660	5,73	4,0 ton	43 MM25+3% U_3O_8 pv	10,275	9,240	6,9517	10,24	10,17	0,0440	10,20	10,15	0,15
44 MM25+3% U_3O_8 pv	12,780	11,295	7,1840	5,70	4,0 ton	44 MM25+3% U_3O_8 pv	10,340	9,250	6,9632	10,17	10,12	0,2333	0,04	0,03	0,10
45 MM25+3% U_3O_8 pv	12,740	11,350	7,1690	5,65	4,0 ton	45 MM25+3% U_3O_8 pv	10,345	9,245	6,9676	10,18	10,16	0,1608			
46 MM25+7% U_3O_8 pv	12,830	11,295	7,1840	5,68	4,0 ton	46 MM25+7% U_3O_8 pv	10,360	9,225	6,9605	10,20	10,13	0,2626	10,18	10,11	0,32
47 MM25+7% U_3O_8 pv	12,860	11,290	7,1990	5,68	4,0 ton	47 MM25+7% U_3O_8 pv	10,400	9,235	6,9803	10,17	10,10	0,3480	0,02	0,02	0,05
48 MM25+7% U_3O_8 pv	12,835	11,295	7,1650	5,66	4,0 ton	48 MM25+7% U_3O_8 pv	10,380	9,220	6,9475	10,17	10,09	0,3349			
49 MM25+10% U_3O_8 pv	12,925	11,290	7,1820	5,64	4,0 ton	49 MM25+10% U_3O_8 pv	10,430	9,210	6,9580	10,16	10,10	0,1601	10,18	10,10	0,18
50 MM25+10% U_3O_8 pv	12,830	11,290	7,0000	5,54	4,0 ton	50 MM25+10% U_3O_8 pv	10,345	9,220	6,9392	10,19	10,11	0,1753	0,02	0,01	0,02
51 MM25+10% U_3O_8 pv	12,920	11,350	7,1580	5,56	4,0 ton	51 MM25+10% U_3O_8 pv	10,370	9,215	6,9375	10,18	10,10	0,2047			
52 MM25+3%(U,Gd) O_2 cp	12,670	11,300	7,1680	5,73	4,0 ton	52 MM25+3%(U,Gd) O_2 cp	10,280	9,230	6,9619	10,27	10,22	0,2061	10,26	10,20	0,22
53 MM25+3%(U,Gd) O_2 cp	12,640	11,295	7,1450	5,73	4,0 ton	53 MM25+3%(U,Gd) O_2 cp	10,235	9,250	6,9358	10,23	10,18	0,1619	0,02	0,02	0,07
54 MM25+3%(U,Gd) O_2 cp	12,590	11,295	7,1640	5,77	4,0 ton	54 MM25+3%(U,Gd) O_2 cp	10,220	9,250	6,9556	10,28	10,19	0,2938			
55 MM25+7%(U,Gd) O_2 cp	12,665	11,290	7,1800	5,75	4,0 ton	55 MM25+7%(U,Gd) O_2 cp	10,255	9,240	6,9767	10,30	10,22	0,2350	10,26	10,21	0,20
56 MM25+7%(U,Gd) O_2 cp	12,660	11,295	7,1790	5,75	4,0 ton	56 MM25+7%(U,Gd) O_2 cp	10,265	9,250	6,9746	10,26	10,21	0,1468	0,03	0,01	0,05
57 MM25+7%(U,Gd) O_2 cp	12,605	11,290	7,1140	5,73	4,0 ton	57 MM25+7%(U,Gd) O_2 cp	10,190	9,255	6,9103	10,23	10,20	0,2072			
58 MM25+10%(U,Gd) O_2 cp	12,670	11,290	7,1900	5,76	4,0 ton	58 MM25+10%(U,Gd) O_2 cp	10,270	9,250	6,9865	10,27	10,23	0,3084	10,28	10,22	0,35
59 MM25+10%(U,Gd) O_2 cp	12,710	11,290	7,1650	5,72	4,0 ton	59 MM25+10%(U,Gd) O_2 cp	10,240	9,250	6,9635	10,27	10,21	0,2940	0,01	0,01	0,08
60 MM25+10%(U,Gd) O_2 cp	12,550	11,290	7,1330	5,77	4,0 ton	60 MM25+10%(U,Gd) O_2 cp	10,195	9,240	6,9337	10,29	10,21	0,4430			

Tabela 18 – Valores dimensionais, de densidades e porosidade aberta das pastilhas de $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ com o uso de reciclós e 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

pastilha verde	h mm	d mm	m g	d.v. g/cm ³	p.c. tf/cm ²	pastilha sinterizada	h mm	d mm	m g	d.g. g/cm ³	d.h. g/cm ³	p.a. %	d.g. M/S	d.h. M/S	p.a. M/S
91 MM30	12,680	11,300	7,1960	5,75	4,0 ton	91 MM30	10,270	9,245	6,9764	10,27	10,17	0,1317	10,28	10,17	0,20
92 MM30	12,710	11,300	7,1810	5,72	4,0 ton	92 MM30	10,295	9,230	6,9690	10,27	10,19	0,1617	0,02	0,02	0,09
93 MM30	12,555	11,300	7,1220	5,75	4,0 ton	93 MM30	10,170	9,230	6,9099	10,31	10,16	0,2957			
94 MM30+3% U_3O_8 ps	12,690	11,315	7,1700	5,71	4,0 ton	94 MM30+3% U_3O_8 ps	10,280	9,290	6,9509	10,12	10,10	0,1457	10,11	10,07	0,13
95 MM30+3% U_3O_8 ps	12,570	11,300	7,1310	5,75	4,0 ton	95 MM30+3% U_3O_8 ps	10,220	9,285	6,9120	10,13	10,11	0,1321	0,03	0,06	0,01
96 MM30+3% U_3O_8 ps	12,620	11,300	7,1270	5,72	4,0 ton	96 MM30+3% U_3O_8 ps	10,275	9,285	6,9091	10,08	10,01	0,1162			
97 MM30+7% U_3O_8 ps	12,800	11,315	7,1590	5,65	4,0 ton	97 MM30+7% U_3O_8 ps	10,360	9,275	6,9190	10,03	9,99	0,3040	10,02	10,03	0,21
98 MM30+7% U_3O_8 ps	12,870	11,300	7,1160	5,60	4,0 ton	98 MM30+7% U_3O_8 ps	10,385	9,260	6,8968	10,00	10,04	0,1752	0,01	0,04	0,08
99 MM30+7% U_3O_8 ps	12,785	11,295	7,1680	5,68	4,0 ton	99 MM30+7% U_3O_8 ps	10,390	9,280	6,9448	10,02	10,06	0,1597			
100 MM30+10% U_3O_8 ps	12,620	11,310	7,1220	5,71	4,0 ton	100 MM30+10% U_3O_8 ps	10,275	9,270	6,9014	10,10	10,02	0,4806	10,11	10,03	0,35
101 MM30+10% U_3O_8 ps	12,575	11,305	7,1420	5,75	4,0 ton	101 MM30+10% U_3O_8 ps	10,245	9,275	6,9166	10,14	10,06	0,2191	0,02	0,02	0,13
102 MM30+10% U_3O_8 ps	12,465	11,270	7,1080	5,81	4,0 ton	102 MM30+10% U_3O_8 ps	10,220	9,285	6,8893	10,10	10,02	0,3503			
103 MM30+3% U_3O_8 pv	12,745	11,300	7,1760	5,70	4,0 ton	103 MM30+3% U_3O_8 pv	10,330	9,240	6,9572	10,19	10,11	0,3351	10,18	10,14	0,17
104 MM30+3% U_3O_8 pv	12,695	11,300	7,1810	5,73	4,0 ton	104 MM30+3% U_3O_8 pv	10,285	9,250	6,9612	10,22	10,16	0,1611	0,04	0,03	0,16
105 MM30+3% U_3O_8 pv	12,720	11,300	7,1810	5,72	4,0 ton	105 MM30+3% U_3O_8 pv	10,360	9,230	6,9238	10,13	10,14	0,0147			
106 MM30+7% U_3O_8 pv	12,610	11,290	7,1440	5,75	4,0 ton	106 MM30+7% U_3O_8 pv	10,265	9,265	6,9274	10,16	10,10	0,2779	10,14	10,09	0,24
107 MM30+7% U_3O_8 pv	12,580	11,300	7,1590	5,77	4,0 ton	107 MM30+7% U_3O_8 pv	10,260	9,280	6,9350	10,14	10,08	0,1604	0,01	0,01	0,07
108 MM30+7% U_3O_8 pv	12,730	11,300	7,1740	5,71	4,0 ton	108 MM30+7% U_3O_8 pv	10,370	9,250	6,9563	10,13	10,09	0,2909			
109 MM30+10% U_3O_8 pv	12,960	11,290	7,1890	5,63	4,0 ton	109 MM30+10% U_3O_8 pv	10,490	9,345	6,9678	9,82	9,87	0,4687	9,89	9,94	0,42
110 MM30+10% U_3O_8 pv	12,920	11,295	7,1530	5,61	4,0 ton	110 MM30+10% U_3O_8 pv	10,470	9,260	6,9286	9,97	10,08	0,1898	0,07	0,12	0,21
111 MM30+10% U_3O_8 pv	12,910	11,300	7,1860	5,64	4,0 ton	111 MM30+10% U_3O_8 pv	10,465	9,330	6,9616	9,87	9,88	0,5977			
112 MM30+3%(U,Gd) O_2 cp	12,635	11,300	7,1670	5,75	4,0 ton	112 MM30+3%(U,Gd) O_2 cp	10,270	9,300	6,9565	10,12	10,11	0,0000	10,06	10,11	0,13
113 MM 0+3%(U,Gd) O_2 cp	12,675	11,300	7,1600	5,72	4,0 ton	113 MM 0+3%(U,Gd) O_2 cp	10,310	9,330	6,9562	10,01	10,11	0,0650	0,05	0,01	0,18
114 MM30+3%(U,Gd) O_2 cp	12,575	11,295	7,1230	5,74	4,0 ton	114 MM30+3%(U,Gd) O_2 cp	10,195	9,340	6,9209	10,05	10,10	0,3334			
115 MM30+7%(U,Gd) O_2 cp	12,695	11,300	7,1640	5,72	4,0 ton	115 MM30+7%(U,Gd) O_2 cp	10,260	9,215	6,9567	10,32	10,15	0,1184	10,31	10,16	0,15
116 MM30+7%(U,Gd) O_2 cp	12,715	11,310	7,1860	5,71	4,0 ton	116 MM30+7%(U,Gd) O_2 cp	10,265	9,230	6,9746	10,30	10,16	0,1329	0,01	0,01	0,04
117 MM 0+7%(U,Gd) O_2 cp	12,735	11,300	7,1670	5,70	4,0 ton	117 MM 0+7%(U,Gd) O_2 cp	10,290	9,210	6,9614	10,31	10,17	0,1928			
118 MM30+10%(U,Gd) O_2 cp	12,705	11,300	7,2010	5,74	4,0 ton	118 MM30+10%(U,Gd) O_2 cp	10,305	9,290	6,9982	10,16	10,16	0,0437	10,18	10,17	0,13
119 MM30+10%(U,Gd) O_2 cp	12,560	11,305	7,1090	5,73	4,0 ton	119 MM30+10%(U,Gd) O_2 cp	10,150	9,310	6,9099	10,15	10,17	0,1470	0,05	0,01	0,08
120 MM30+10%(U,Gd) O_2 cp	12,630	11,290	7,1300	5,73	4,0 ton	120 MM30+10%(U,Gd) O_2 cp	10,180	9,270	6,9318	10,24	10,17	0,1912			

5.3 Características físicas das pastilhas sinterizadas de (U-Gd)O₂ com o aditivo Al(OH)₃ e sem reciclo.

Quando se inicia uma produção, praticamente não existem rejeitos para serem reutilizados ou sua quantidade é muito pequena. Por causa disto é que nas **Tabelas 14, 15, 16, 17 e 18** também possuem informações sobre as características físicas de pastilhas de UO₂-7%Gd₂O₃ obtidas fazendo-se uso somente do aditivo Al(OH)₃ nas concentrações de 0,10; 0,15; 0,20; 0,25 e 0,30 %. Essas informações também são importantes por servirem de referência na comparação com as pastilhas de UO₂-7%Gd₂O₃ nas quais se utilizaram os reciclos. Os resultados das análises, com seus desvios padrão, e as concentrações de Al(OH)₃ utilizadas estão mostrados resumidamente na **Tabela 19**.

Tabela 19 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO₂-7%Gd₂O₃ somente com o uso do aditivo Al(OH)₃.

Al(OH) ₃ (%)	densidade geométrica (g/cm ³)	densidade hidrostática (g/cm ³)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
0,10	10,18 ± 0,01	10,12 ± 0,02	0,20 ± 0,22	4,5 ± 3,7	10,0 ± 8,4
0,15	10,20 ± 0,02	10,13 ± 0,03	0,11 ± 0,06	5,2 ± 4,1	8,6 ± 6,4
0,20	10,26 ± 0,01	10,18 ± 0,03	0,15 ± 0,09	4,9 ± 4,4	10,4 ± 6,8
0,25	10,20 ± 0,00	10,17 ± 0,02	0,20 ± 0,16	5,9 ± 4,3	10,9 ± 8,0
0,30	10,28 ± 0,02	10,17 ± 0,02	0,20 ± 0,09	5,3 ± 4,9	9,9 ± 9,1

Todas as pastilhas de UO₂-7%Gd₂O₃ possuam características físicas em conformidade com a especificação. Apresenta-se, ilustrativamente, uma micrografia de uma pastilha com 0,20 % de Al(OH)₃, uma vez que nesta concentração se tem, em valores médios, uma maior densificação (densidade hidrostática = 10,18 g/cm³). Ressalta-se a uniformidade do tamanho de grão e uma porosidade preferencialmente intersticial.

Na **Figura 16** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$.

Figura 16 - Pastilha de UO_2 -7% Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$
(sem a adição de reciclo)

Ensaio dilatométricos foram realizados como ensaios complementares objetivando avaliar o comportamento dimensional das pastilhas em função do tempo, da temperatura e da concentração de $\text{Al}(\text{OH})_3$. Os ensaios foram realizados para as cinco concentrações do aditivo de $\text{Al}(\text{OH})_3$: 0,10; 0,15; 0,20; 0,25 e 0,30 %. Fez-se também um ensaio utilizando uma pastilha na qual não se usou o aditivo. O gás utilizado foi o H_2 ultrapuro. Na **Figura 17** estão ilustradas as curvas obtidas.

Figura 17 – Efeito da concentração do aditivo $Al(OH)_3$ na sinterização das pastilhas de UO_2 -7% Gd_2O_3

Pela análise da **Figura 17**, observa-se que as curvas dilatométricas para todas as concentrações de $Al(OH)_3$ estão muito próximas e que a curva referente a pastilha sem $Al(OH)_3$ indica que esta, foi a que menos contraiu. Esta informação está de acordo com o que foi obtido nos testes de sinterização os quais mostraram que, sem o uso do aditivo, não se consegue obter a densidade mínima especificada. Nota-se também que a partir de aproximadamente 1.200 $^{\circ}C$ ocorre uma diminuição da taxa de sinterização devido ao início da formação da solução sólida. A solução sólida é formada pela interdifusão do íon Gd^{+3} para rede cristalina do UO_2 e pela interdifusão do U^{+4} para a rede cristalina do Gd_2O_3 (MANZEL, 1980). A curva que corresponde à concentração de 0,30 % de $Al(OH)_3$ também ficou um pouco afastada das demais como no caso da curva sem aditivo. Este fato está de acordo com a literatura (MATSUDA, 1996) que diz que o excesso de aditivo provoca uma diminuição da densidade sinterizada devido a volatilização desse aditivo, neste caso o $Al(OH)_3$.

A densidade hidrostática foi o primeiro parâmetro que se procurou alcançar quando do início dos trabalhos de desenvolvimento do processo de

obtenção do veneno queimável integrado UO_2 -7% Gd_2O_3 . A partir do momento que se obtiveram as pastilhas na faixa de densidade especificada é que se fez a caracterização das outras propriedades físico-química das pastilhas como tamanho de poros, tamanho de grãos, pureza química, etc.

Nos itens que se seguem, **5.4**, **5.5**, **5.6**, **5.7** e **5.8** apresentam-se as características físicas das pastilhas de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 variando-se o teor do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ (0,10 – 0,30 %) e o reciclo de U_3O_8 ps (3 – 10 %)

5.4 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 10 com reciclo U_3O_8 ps

Na **Tabela 20** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM10 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,10 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo de U_3O_8 ps nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 20 – Características físicas das pastilhas sinterizadas de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 ps.

U_3O_8 ps (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,19 \pm 0,02$	$10,08 \pm 0,02$	$0,21 \pm 0,11$	$4,4 \pm 3,6$	$9,3 \pm 7,6$
7,0	$10,16 \pm 0,01$	$10,07 \pm 0,01$	$0,16 \pm 0,06$	$4,3 \pm 3,6$	$8,9 \pm 7,6$
10,0	$10,14 \pm 0,04$	$10,05 \pm 0,02$	$0,14 \pm 0,05$	$4,6 \pm 3,8$	$8,5 \pm 7,7$

Na **Figura 18** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de U_3O_8 ps.

Figura 18 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 ps

5.5 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 15 com reciclo U_3O_8 ps

Na **Tabela 21** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM15 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,15 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo de U_3O_8 ps nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 21 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 ps.

U_3O_8 ps (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,15 \pm 0,03$	$10,11 \pm 0,02$	$0,16 \pm 0,06$	$5,1 \pm 4,1$	$7,8 \pm 6,07$
7,0	$10,13 \pm 0,07$	$10,10 \pm 0,05$	$0,12 \pm 0,06$	$5,2 \pm 3,9$	$8,9 \pm 9,28$
10,0	$10,11 \pm 0,01$	$10,05 \pm 0,06$	$0,48 \pm 0,63$	$5,1 \pm 4,0$	$8,5 \pm 5,99$

Na **Figura 19** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de U_3O_8 ps.

Figura 19 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 ps

5.6 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 20 com reciclo U_3O_8 ps

Na **Tabela 22** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM20 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,20 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo de U_3O_8 ps nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 22 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 ps.

U_3O_8 ps (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,19 \pm 0,02$	$10,14 \pm 0,01$	$0,17 \pm 0,07$	$4,9 \pm 4,59$	$9,5 \pm 7,0$
7,0	$10,18 \pm 0,07$	$10,12 \pm 0,05$	$0,12 \pm 0,03$	$5,1 \pm 4,57$	$9,3 \pm 6,4$
10,0	$10,14 \pm 0,02$	$10,09 \pm 0,02$	$0,14 \pm 0,07$	$5,2 \pm 4,51$	$9,6 \pm 6,7$

Na **Figura 20** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de U_3O_8 ps.

Figura 20 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 ps

5.7 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 25 com reciclo U_3O_8 ps

Na **Tabela 23** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM25 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,25 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo U_3O_8 ps nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 23 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 ps.

U_3O_8 ps (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,16 \pm 0,01$	$10,11 \pm 0,02$	$0,19 \pm 0,07$	$6,1 \pm 4,56$	$10,4 \pm 8,17$
7,0	$10,15 \pm 0,02$	$10,08 \pm 0,02$	$0,33 \pm 0,17$	$5,9 \pm 4,41$	$9,7 \pm 7,92$
10,0	$10,16 \pm 0,03$	$10,07 \pm 0,03$	$0,12 \pm 0,04$	$5,9 \pm 4,39$	$10,6 \pm 7,77$

Na **Figura 21** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de U_3O_8 ps.

Figura 21 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 ps

5.8 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM 30 com reciclo U_3O_8 ps

Na **Tabela 24** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM30 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,30 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo U_3O_8 ps nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 24 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 ps.

U_3O_8 ps (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,11 \pm 0,03$	$10,07 \pm 0,06$	$0,13 \pm 0,01$	$4,9 \pm 4,5$	$9,5 \pm 7,2$
7,0	$10,02 \pm 0,01$	$10,03 \pm 0,04$	$0,21 \pm 0,18$	$5,2 \pm 4,6$	$8,5 \pm 6,3$
10,0	$10,11 \pm 0,02$	$10,03 \pm 0,03$	$0,35 \pm 0,13$	$6,3 \pm 6,4$	$9,4 \pm 5,4$

Na **Figura 22** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de U_3O_8 ps.

Figura 22 – Pastilha de UO_2 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 ps

5.9 Gráfico: densidade hidrostática x $\text{Al}(\text{OH})_3$ para o reciclo U_3O_8 ps

Com base nos dados das **Tabelas 4, 20, 21, 22, 23 e 24** elaborou-se um gráfico, **Figura 23**, no qual está indicado a variação da densidade hidrostática em função da concentração de $\text{Al}(\text{OH})_3$ para as várias misturas propostas utilizando o reciclo U_3O_8 ps. Fez-se também uma tabela - **Tabela 25**, que apresenta a variação do tamanho médio poros e do tamanho médio de grãos médios, com seus respectivos desvios padrão, em função da concentração do reciclo U_3O_8 ps e da concentração do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$.

Figura 23 – Variação da densidade hidrostática (g/cm³) em função da % do aditivo Al(OH)₃ e da % do reciclo U₃O₈ ps

Observa-se do gráfico da **Figura 23** que para os valores médios de densidade hidrostática a adição do reciclo na forma de U₃O₈, obtido a partir da calcinação das pastilhas sinterizadas, provoca uma leve diminuição do seu valor, ou seja, para uma mesma concentração de Al(OH)₃, quando se aumenta a concentração do reciclo, diminui-se a densidade hidrostática. Deve-se salientar que essa é uma tendência, pois ao se considerar a barra de desvios padrão, como a variação é muito pequena há a sobreposição de valores em alguns casos. Observa-se também que mesmo ao se adicionar 10 % do reciclo U₃O₈ ps, os valores da densidade ficam dentro da faixa especificada.

Por meio do apresentado na **Figura 23**, pode-se observar que para a concentração de 0,20 % de Al(OH)₃ é que se obtém as maiores valores médios de densidade hidrostática.

A **Tabela 25** ilustra a variação do tamanho médio de poros e grãos para as cinco concentrações do Al(OH)₃ e para as três concentrações do reciclo U₃O₈ ps. Pela análise dessa tabela, pode-se considerar que a variação do tamanho de poros

em função da variação da concentração do reciclo e da concentração do $\text{Al}(\text{OH})_3$ é muito pequena. Os resultados estão de acordo com a especificação (RIELLA, 1985).

Tabela 25: Tamanho médio de poros e grãos em função da concentração do reciclo U_3O_8 ps e do aditivo de densificação

Nº da pastilha	composição	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grãos (μm)
61	MM 10	$4,5 \pm 3,7$	$10,0 \pm 8,4$
64	MM10 + 3 % U_3O_8 ps	$4,4 \pm 3,6$	$9,3 \pm 7,6$
67	MM10 + 7 % U_3O_8 ps	$4,3 \pm 3,6$	$8,9 \pm 7,6$
71	MM10 + 10 % U_3O_8 ps	$4,6 \pm 3,8$	$8,5 \pm 7,7$
01	MM15	$5,2 \pm 4,1$	$8,6 \pm 6,4$
05	MM15 + 3 % U_3O_8 ps	$5,1 \pm 4,1$	$7,8 \pm 6,1$
09	MM15 + 7 % U_3O_8 ps	$5,2 \pm 3,9$	$8,9 \pm 9,3$
12	MM15 + 10 % U_3O_8 ps	$5,1 \pm 4,0$	$8,5 \pm 6,0$
932	MM20	$4,9 \pm 4,4$	$10,4 \pm 6,8$
934	MM20 + 3 % U_3O_8 ps	$4,9 \pm 4,6$	$9,5 \pm 7,0$
938	MM20 + 7 % U_3O_8 ps	$5,1 \pm 4,6$	$9,3 \pm 6,4$
940	MM 20 + 10 % U_3O_8 ps	$5,2 \pm 4,5$	$9,6 \pm 6,7$
33	MM25	$5,9 \pm 4,3$	$10,9 \pm 8,0$
35	MM25 + 3 % U_3O_8 ps	$6,1 \pm 4,6$	$10,4 \pm 8,2$
37	MM25 + 7 % U_3O_8 ps	$5,9 \pm 4,4$	$9,7 \pm 7,9$
41	MM25 + 10 % U_3O_8 ps	$5,9 \pm 4,4$	$10,6 \pm 7,8$
92	MM30	$5,3 \pm 4,9$	$9,9 \pm 9,1$
95	MM30 + 3 % U_3O_8 ps	$4,9 \pm 4,5$	$9,5 \pm 7,2$
99	MM30 + 7 % U_3O_8 ps	$5,2 \pm 4,6$	$8,5 \pm 6,3$
102	MM30 + 10 % U_3O_8 ps	$6,3 \pm 6,4$	$9,4 \pm 5,4$

Como já mencionado anteriormente a medida do tamanho de poros e grãos é o resultado da média da análise de imagem de no mínimo 10 campos de cada superfície de corte sendo que, o tamanho médio de grão deve estar entre 7 e 35 μm e tamanho dos poros deve apresentar um valor inferior a 100 μm em no mínimo 90 % da superfície de corte. Inclusões de poros com diâmetros superiores a 300 μm não são permitidas. Considerando a **Tabela 25**, observa-se que as pastilhas obtidas a partir de todas as misturas com o reciclo U_3O_8 ps apresentam tamanho de poros e grãos dentro da especificação.

Nos itens que se seguem, **5.10**, **5.11**, **5.12**, **5.13** e **5.14** apresentam-se as características físicas das pastilhas de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 variando-se o teor do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ (0,10 – 0,30 %) e o reciclo de U_3O_8 pv (3 – 10 %)

5.10 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM10 com reciclo U_3O_8 pv

Na **Tabela 26** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM10 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,10 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo U_3O_8 pv nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 26 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 pv.

U_3O_8 pv (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,12 \pm 0,02$	$10,07 \pm 0,01$	$0,18 \pm 0,15$	$4,6 \pm 4,2$	$9,8 \pm 8,2$
7,0	$10,07 \pm 0,01$	$10,00 \pm 0,03$	$0,27 \pm 0,06$	$4,7 \pm 4,2$	$9,2 \pm 7,3$
10,0	$10,01 \pm 0,02$	$9,94 \pm 0,02$	$0,69 \pm 0,16$	$4,7 \pm 4,0$	$8,7 \pm 6,7$

Considerando a **Tabela 26**, observa-se que a pastilha sinterizada na condição UO_2 - 7 % Gd_2O_3 + 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ + 10 % de U_3O_8 pv não atingiu a densidade especificada (valor em vermelho). Com base na micrografia desta pastilha, **Figura 24**, observa-se poros intragranulares devido a um bloqueio no processo de densificação causado pelo elevado teor de U_3O_8 proveniente da calcinação de uma pastilha verde. O U_3O_8 obtido desta calcinação apresenta elevada atividade e pode alterar o potencial de oxigênio local, transformando íons de U^{+4} em U^{+5} e aumentando assim a difusividade do urânio. Como resultado tem-se o efeito Kirkendall, conforme observado em trabalhos publicados (DURAZZO, 2001). Ressalta-se que o teor de 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ não foi o suficiente para minimizar este efeito.

Na **Figura 24** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 10% de U_3O_8 pv.

Figura 24 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 10 % U_3O_8 pv

5.11 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM15 com reciclo U_3O_8 pv

Na **Tabela 27** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM15 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,15 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo U_3O_8 pv nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 27 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 pv.

U_3O_8 pv (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,03 \pm 0,02$	$10,10 \pm 0,02$	$0,33 \pm 0,25$	$5,2 \pm 4,2$	$8,9 \pm 5,84$
7,0	$10,05 \pm 0,05$	$10,08 \pm 0,02$	$0,20 \pm 0,07$	$5,0 \pm 4,0$	$9,2 \pm 5,95$
10,0	$10,14 \pm 0,02$	$10,07 \pm 0,02$	$0,16 \pm 0,04$	$4,8 \pm 4,0$	$9,1 \pm 6,03$

Na **Figura 25** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de U_3O_8 pv.

Figura 25 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 pv

5.12 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM20 com reciclo U_3O_8 pv

Na **Tabela 28** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM20 (93 % - UO_2 ; 7 % - Gd_2O_3 ; 0,20 % - $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo U_3O_8 pv nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 28 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 pv.

U_3O_8 pv (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,22 \pm 0,03$	$10,16 \pm 0,01$	$0,15 \pm 0,02$	$5,3 \pm 4,88$	$10,3 \pm 7,0$
7,0	$10,22 \pm 0,02$	$10,15 \pm 0,02$	$0,24 \pm 0,08$	$5,9 \pm 4,75$	$9,0 \pm 6,9$
10,0	$10,18 \pm 0,03$	$10,14 \pm 0,04$	$0,20 \pm 0,16$	$5,1 \pm 4,10$	$8,0 \pm 6,0$

Na **Figura 26** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de U_3O_8 pv.

Figura 26 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 pv

5.13 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM25 com reciclo U_3O_8 pv

Na **Tabela 29** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, obtidos da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM25 (93 % - UO_2 ; 7 % - Gd_2O_3 ; 0,25 % - $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo U_3O_8 pv nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 29 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 pv.

U_3O_8 pv (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,20 \pm 0,04$	$10,15 \pm 0,03$	$0,15 \pm 0,10$	$6,0 \pm 4,5$	$10,8 \pm 8,1$
7,0	$10,18 \pm 0,02$	$10,11 \pm 0,02$	$0,32 \pm 0,05$	$5,9 \pm 4,7$	$10,4 \pm 8,1$
10,0	$10,18 \pm 0,03$	$10,10 \pm 0,01$	$0,18 \pm 0,02$	$6,0 \pm 4,5$	$10,6 \pm 7,7$

Na **Figura 27** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de U_3O_8 pv.

Figura 27 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8 pv

5.14 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM30 com reciclo U_3O_8 pv

Na **Tabela 30** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM30 (93 % - UO_2 ; 7 % - Gd_2O_3 ; 0,30 % - $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo U_3O_8 pv nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 30 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de U_3O_8 pv.

U_3O_8 pv (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,18 \pm 0,04$	$10,14 \pm 0,03$	$0,17 \pm 0,16$	$4,4 \pm 3,6$	$8,4 \pm 6,4$
7,0	$10,14 \pm 0,01$	$10,09 \pm 0,01$	$0,24 \pm 0,07$	$6,5 \pm 5,7$	$8,2 \pm 7,0$
10,0	$9,89 \pm 0,07$	$9,94 \pm 0,12$	$0,42 \pm 0,21$	$6,3 \pm 4,9$	$7,6 \pm 5,8$

Novamente na **Tabela 30**, observa-se que para a condição UO_2 - 7 % Gd_2O_3 + 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ + 10 % de U_3O_8 pv (valor em vermelho) a densidade hidrostática está abaixo do valor especificado (RIELLA, 1985). Neste caso devemos considerar um efeito adicional para explicar a redução da densidade hidrostática, isto é, o elevado teor de $\text{Al}(\text{OH})_3$. Um excesso de aditivo não compromete o crescimento do tamanho de grão, mas provoca a redução da densidade devido a volatilização do $\text{Al}(\text{OH})_3$ (MATSUDA, 1996). Ressalta-se, que a pastilha sinterizada, UO_2 - 7 % Gd_2O_3 + 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ + 10 % de U_3O_8 pv apresenta poros intragranulares, fundamentando o fenômeno de coalescência de poros: efeito Kirkendall.

Na **Figura 28** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 10 % de U_3O_8 pv.

Figura 28 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 10 % U_3O_8 pv

5.15 Gráfico: densidade hidrostática x $\text{Al}(\text{OH})_3$ para o reciclo U_3O_8 pv

Com base nos dados das **Tabelas 4, 26, 27, 28, 29 e 30** elaborou-se um gráfico - **Figura 29**, no qual está indicado a variação da densidade hidrostática em função da concentração de $\text{Al}(\text{OH})_3$, para as várias misturas propostas utilizando o reciclo U_3O_8 pv. Fez-se também uma tabela - **Tabela 31**, na qual está mostrado

como varia o tamanho médio de poros e o tamanho médio de grãos, com seus respectivos desvios padrão, em função da concentração do reciclo U_3O_8 pv e da concentração do aditivo $Al(OH)_3$.

Figura 29 – Variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $Al(OH)_3$ e da % do reciclo U_3O_8 pv

Na **Figura 29** pode-se observar que para os valores médios da densidade hidrostática o aumento da adição do reciclo U_3O_8 pv faz com que haja uma pequena redução do seu valor para uma mesma concentração de $Al(OH)_3$. Nota-se também que quando se adiciona 10 % do reciclo nas misturas com 0,10 e 0,30 % de $Al(OH)_3$ os valores médios da densidade não atendem os limites especificados. Pela análise do gráfico observa-se que, também neste caso as barras de desvios padrão se sobrepõem e que as maiores densidades são alcançadas quando se usa 0,20 % de $Al(OH)_3$.

Tabela 31: Tamanho médio de poros e grãos em função da concentração do reciclo U_3O_8 pv e do aditivo de densificação $Al(OH)_3$

Nº da pastilha	composição	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grãos (μm)
73	MM10 + 3 % U_3O_8 pv	$4,6 \pm 4,2$	$9,8 \pm 8,2$
76	MM10 + 7 % U_3O_8 pv	$4,7 \pm 4,2$	$9,2 \pm 7,3$
80	MM10 + 10 % U_3O_8 pv	$4,7 \pm 4,0$	$8,7 \pm 6,7$
14	MM15 + 3 % U_3O_8 pv	$5,2 \pm 4,2$	$8,9 \pm 5,8$
18	MM15 + 7 % U_3O_8 pv	$5,0 \pm 4,0$	$9,2 \pm 6,0$
19	MM15 + 10 % U_3O_8 pv	$4,8 \pm 4,0$	$9,1 \pm 6,0$
945	MM20 + 3 % U_3O_8 pv	$5,3 \pm 4,9$	$10,3 \pm 7,0$
948	MM20 + 7 % U_3O_8 pv	$5,9 \pm 4,8$	$9,0 \pm 6,9$
950	MM20 + 10 % U_3O_8 pv	$5,1 \pm 4,1$	$8,0 \pm 6,0$
44	MM25 + 3 % U_3O_8 pv	$6,0 \pm 4,5$	$10,8 \pm 8,1$
46	MM25 + 7 % U_3O_8 pv	$5,9 \pm 4,7$	$10,4 \pm 8,1$
51	MM25 + 10 % U_3O_8 pv	$6,0 \pm 4,5$	$10,6 \pm 7,7$
104	MM30 + 3 % U_3O_8 pv	$4,4 \pm 3,6$	$8,4 \pm 6,4$
107	MM30 + 7 % U_3O_8 pv	$6,5 \pm 5,7$	$8,2 \pm 7,0$
110	MM30 + 10 % U_3O_8 pv	$6,3 \pm 4,9$	$7,6 \pm 5,8$

A **Tabela 31** ilustra a variação do tamanho médio dos poros e grãos para as cinco concentrações do $Al(OH)_3$ e para as três concentrações do reciclo U_3O_8 pv. Cada valor corresponde a média de análise de imagem de pelo menos 10 campos da superfície de corte da pastilha, tanto para poros como para grãos. Como no caso em que se utiliza o reciclo U_3O_8 ps, o uso do reciclo U_3O_8 pv também não promove variações acentuadas no tamanho médio de poros e grãos, e os resultados estão de acordo com a especificação (RIELLA, 1985)

Nos itens que se seguem, **5.16**, **5.17**, **5.18**, **5.19** e **5.20** apresentam-se as características físicas das pastilhas de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 variando-se o teor do aditivo $Al(OH)_3$ (0,10 – 0,30 %) e o reciclo de $(U,Gd)O_2$ cp (3 – 10 %)

5.16 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM10 com reciclo (U,Gd)O₂ cp

No caso de ocorrer um acidente na área de produção do combustível nuclear, resultando na contaminação do pó ou pastilha de UO₂-Gd₂O₃, o material poderá ser reutilizado transformando-o, por exemplo, numa solução de nitrato uranilo e gadolínio, seguida da purificação e precipitação para posterior redução a (U,Gd)O₂. No presente trabalho também foi considerado essa variável que foi denominada como reciclo (U,Gd)O₂ cp.

Na **Tabela 32** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM10 (93 % de UO₂; 7 % Gd₂O₃; 0,10 % Al(OH)₃) com o reciclo (U,Gd)O₂ cp nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 32 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO₂ - 7 % Gd₂O₃ com 0,10 % de Al(OH)₃ e reciclo de (U,Gd)O₂ cp.

(U,Gd)O ₂ cp (%)	densidade geométrica (g/cm ³)	densidade hidrostática (g/cm ³)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	10,16 ± 0,01	10,09 ± 0,02	0,22 ± 0,16	4,2 ± 3,7	10,2 ± 8,2
7,0	10,25 ± 0,02	10,17 ± 0,03	0,08 ± 0,05	4,4 ± 3,9	9,3 ± 7,7
10,0	10,25 ± 0,02	10,18 ± 0,01	0,13 ± 0,03	4,4 ± 3,9	9,3 ± 8,0

Na **Figura 30** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO₂ - 7 % Gd₂O₃ com 0,10 % de Al(OH)₃ e com reciclo de 7 % de (U,Gd)O₂ cp.

Figura 30 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

5.17 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM15 com reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

Na **Tabela 33** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM15 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,15 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 33 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp.

$(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	diâmetro médio de poros (μm)	diâmetro médio de grão (μm)
3,0	$10,19 \pm 0,03$	$10,17 \pm 0,02$	$0,09 \pm 0,11$	$4,8 \pm 3,7$	$9,7 \pm 5,9$
7,0	$10,21 \pm 0,07$	$10,17 \pm 0,01$	$0,22 \pm 0,06$	$5,5 \pm 4,1$	$10,0 \pm 7,5$
10,0	$10,20 \pm 0,04$	$10,22 \pm 0,01$	$0,13 \pm 0,02$	$5,4 \pm 3,9$	$10,2 \pm 7,7$

Na **Figura 31** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp.

Figura 31 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

5.18 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM20 com reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

Na **Tabela 34** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM 20 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,20 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 34 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp.

$(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,25 \pm 0,02$	$10,23 \pm 0,02$	$0,18 \pm 0,04$	$4,9 \pm 3,9$	$8,0 \pm 6,0$
7,0	$10,28 \pm 0,01$	$10,25 \pm 0,02$	$0,17 \pm 0,06$	$4,8 \pm 3,8$	$8,3 \pm 6,5$
10,0	$10,29 \pm 0,01$	$10,26 \pm 0,01$	$0,14 \pm 0,02$	$4,2 \pm 3,5$	$9,8 \pm 6,5$

Na **Figura 32** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp.

Figura 32 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

5.19 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM25 com reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

Na **Tabela 35** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM 25 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,25 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 35 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp.

$(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,26 \pm 0,02$	$10,20 \pm 0,02$	$0,22 \pm 0,07$	$5,4 \pm 4,1$	$10,8 \pm 8,1$
7,0	$10,26 \pm 0,03$	$10,21 \pm 0,01$	$0,20 \pm 0,05$	$5,3 \pm 4,0$	$10,3 \pm 8,1$
10,0	$10,28 \pm 0,01$	$10,22 \pm 0,01$	$0,35 \pm 0,08$	$5,2 \pm 4,0$	$11,6 \pm 8,4$

Na **Figura 33** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp.

Figura 33 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

5.20 Características das pastilhas sinterizadas obtidas a partir da mistura matriz MM30 com reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

Na **Tabela 36** estão ilustrados os resultados médios, com seus respectivos desvios padrão, da análise de pastilhas obtidas a partir da mistura MM 30 (93 % de UO_2 ; 7 % Gd_2O_3 ; 0,30 % $\text{Al}(\text{OH})_3$) com o reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp nas concentrações 3, 7 e 10 %.

Tabela 36 – Características físicas das pastilhas sinterizadas UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e reciclo de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp.

$(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp (%)	densidade geométrica (g/cm^3)	densidade hidrostática (g/cm^3)	porosidade aberta (%)	tamanho médio de poros (μm)	tamanho médio de grão (μm)
3,0	$10,06 \pm 0,05$	$10,11 \pm 0,06$	$0,13 \pm 0,18$	$6,5 \pm 4,9$	$6,9 \pm 5,4$
7,0	$10,31 \pm 0,01$	$10,16 \pm 0,01$	$0,15 \pm 0,04$	$5,6 \pm 4,5$	$9,8 \pm 7,3$
10,0	$10,18 \pm 0,05$	$10,17 \pm 0,02$	$0,13 \pm 0,08$	$5,5 \pm 5,0$	$7,9 \pm 5,7$

Na **Figura 34** está ilustrada uma micrografia de uma pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com reciclo de 7 % de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp.

Figura 34 – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

5.21 Gráfico: densidade hidrostática x $\text{Al}(\text{OH})_3$ para o reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

Com base nos dados das **Tabelas 4, 32, 33, 34, 35 e 36** elaborou-se um gráfico - **Figura 35**, no qual está indicado como varia a densidade hidrostática em função da concentração de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e da concentração do reciclo obtido a partir da coprecipitação. A **Tabela 37** apresenta a variação do tamanho médio de poros e o tamanho médio de grãos em função da concentração do o reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp e da concentração do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$.

Figura 35 – Variação da densidade hidrostática (g/cm³) em função da % do aditivo Al(OH)₃ e da % do resíduo (U,Gd)O₂ cp

Como no caso quando se usa o resíduo U₃O₈, pela **Figura 35** pode-se observar que, para os valores médios da densidade hidrostática, o aumento da adição do resíduo (U,Gd)O₂ cp não provoca significativas variações nas densidades para uma mesma concentração de Al(OH)₃. Porém, neste caso, ao contrário dos casos com resíduo de U₃O₈, a adição do resíduo (U,Gd)O₂ cp faz com a curva dos valores médios fique acima da curva quando não se utiliza o resíduo. Ainda considerando-se os valores médios de densidade da pastilha, observa-se que a curva para 10% de resíduo (U,Gd)O₂ cp está acima da curva 7 % que, por sua vez, está acima da curva 3%, para uma mesma concentração de Al(OH)₃. Este fato ocorre, provavelmente, devido a alta sinterabilidade do pó de (U,Gd)O₂ coprecipitado (DURAZZO, 2001).

Como nos casos anteriores também ocorre uma sobreposição das barras de desvios padrão em várias misturas comprovando que as variações de densificação são muito pequenas.

Igualmente como nos casos da utilização do resíduo de U₃O₈, também neste as maiores densidades são alcançadas quando se utiliza 0,20 % de Al(OH)₃.

Tabela 37: Tamanho médio de poros e grãos em função da concentração do reciclo (U,Gd)O₂ cp e do aditivo de densificação

Nº da pastilha	composição	tamanho médio de poros (µm)	tamanho médio de grãos (µm)
82	MM10 + 3% (U,Gd)O ₂ cp	4,2 ± 3,7	10,2 ± 8,0
86	MM10 + 7% (U,Gd)O ₂ cp	4,4 ± 3,9	9,3 ± 7,7
89	MM10 + 10% (U,Gd)O ₂ cp	4,4 ± 3,9	9,3 ± 8,0
24	MM15 + 3 % (U,Gd)O ₂ cp	4,8 ± 3,7	7,7 ± 5,9
27	MM15 + 7 % (U,Gd)O ₂ cp	5,5 ± 4,1	10,0 ± 7,5
28	MM15 + 10% (U,Gd)O ₂ cp	5,4 ± 3,9	10,2 ± 7,7
952	MM20 + 3 % (U,Gd)O ₂ cp	4,9 ± 3,9	8,0 ± 6,0
955	MM20 + 7 % (U,Gd)O ₂ cp	4,8 ± 3,8	8,3 ± 6,5
958	MM20 + 10% (U,Gd)O ₂ cp	4,2 ± 3,5	9,8 ± 6,5
52	MM25 + 3% (U,Gd)O ₂ cp	5,4 ± 4,1	10,8 ± 8,1
55	MM25 + 7% (U,Gd)O ₂ cp	5,3 ± 4,0	10,3 ± 8,1
58	MM25 + 10% (U,Gd)O ₂ cp	5,2 ± 4,0	11,6 ± 8,4
112	MM30 + 3% (U,Gd)O ₂ cp	6,5 ± 4,9	7,9 ± 5,4
115	MM30 + 7% (U,Gd)O ₂ cp	5,6 ± 4,5	9,8 ± 7,3
120	MM30 + 10% (U,Gd)O ₂ cp	5,5 ± 5,0	7,9 ± 5,7

Na **Tabela 37** cada valor corresponde à média de análise de imagem de pelo menos dez campos da superfície de corte da pastilha, tanto para poros como para grãos. Como no caso em que se utiliza o reciclo U₃O₈, o uso do reciclo (U,Gd)O₂ cp também não promove variações acentuadas no tamanho médio de poros e grãos, e os resultados também estão de acordo com a especificação (RIELLA, 1985).

5.22 Métodos de superfície de resposta

A metodologia da superfície de resposta (MONTGOMERY, 2002), também chamada de MRS, é uma coleção de técnicas matemáticas e estatísticas

que são muito úteis nas situações em que a resposta de interesse é influenciada por muitas variáveis e que tenha como objetivo otimizar esta resposta. Como exemplo pode-se citar a situação em que se queira otimizar o rendimento (**y**) de um processo o qual é influenciado pela temperatura (**t**) e concentração (**c**) dos reagentes. O rendimento é uma função da temperatura e da concentração como:

$$y = f(t,c) + \varepsilon,$$

onde ε representa o erro observado na resposta **y**. Fazendo-se uma correlação com a situação do presente trabalho pode-se dizer que **y** representa a densidade hidrostática, **t** a variação da concentração do reciclo (U_3O_8 ps, U_3O_8 pv ou $(U,Gd)O_2$) e **c** a variação da concentração do aditivo de densificação $Al(OH)_3$.

Graficamente a superfície de resposta pode se representado como um gráfico de superfície em um espaço tridimensional ou como um gráfico de curvas de nível.

Utilizando-se os resultados das **Tabelas 4, 14, 15, 16, 17 e 18** elaboraram-se os gráficos de superfície tridimensional de resposta e de curvas de nível da superfície de resposta nos quais pode-se observar como varia a densidade hidrostática em função da variação da concentração dos reciclos e do aditivo de densificação. As **Figuras 36, 37, 38, 39, 40 e 41** ilustram os resultados obtidos para os reciclos U_3O_8 ps, U_3O_8 pv e $(U,Gd)O_2$ respectivamente.

Figura 36 – Gráfico das curvas de nível da superfície de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $Al(OH)_3$ e da % do reciclo U_3O_8 ps

Figura 37 – Gráfico da superfície tridimensional de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $Al(OH)_3$ e da % do reciclo U_3O_8 ps

Figura 38 – Gráfico das curvas de nível da superfície de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $Al(OH)_3$ e da % do reciclo U_3O_8 pv

Figura 39 – Gráfico da superfície tridimensional de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $Al(OH)_3$ e da % do reciclo U_3O_8 pv

Figura 40 – Gráfico das curvas de nível da superfície de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ e % do reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

Figura 41 – Gráfico da superfície tridimensional de resposta mostrando a variação da densidade hidrostática (g/cm^3) em função da % do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ e % do reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp

5.23 Planilha com as características físicas das pastilhas submetidas ao teste de ressinterização

Outro ensaio muito importante a ser realizado com as pastilhas é o teste de ressinterização. Este teste consiste em submeter as pastilhas, já sinterizadas, a uma alta temperatura (próxima a temperatura de sinterização) por um longo tempo, com o objetivo de simular a sua contração quando estas estiverem dentro do núcleo do reator. A análise dessa contração é feita medindo-se a variação da densidade hidrostática. O teste foi realizado a uma temperatura de 1720 °C durante 24 h em atmosfera de hidrogênio. Pela especificação, o aumento da densidade não pode ser maior que 0,142 g/cm³ (RIELLA, 1985).

O teste de ressinterização foi realizado utilizando as três concentrações (3, 7 e 10 %) dos três tipos de reciclo (U_3O_8 ps, U_3O_8 pv e $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp) para a concentração de 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$. Para as demais concentrações de $\text{Al}(\text{OH})_3$ (0,10; 0,15; 0,25 e 0,30 %) utilizou-se somente o valor de 7 % dos três tipos de reciclos por se tratar de um valor médio e também devido ao fato de nos testes simulando uma produção – batelada de 200 kg de UO_2 , não se observou a necessidade de se fazer um reciclo maior que este valor. Na **Tabela 38** mostram-se os resultados obtidos com este ensaio.

Tabela 38 - Comparação da densidade hidrostática antes e após a ressinterização

Corrida R - H ₂ ind	h mm	d mm	m g	d. g. g/cm ³	d. h. g/cm ³	d. h. r. g/cm ³	p. a. %	p. a. r. %	var. máx 0,142 g/cm ³
69 MM 10+7%U ₃ O ₈ ps	10,230	9,290	6,9479	10,17	10,07	10,09	0,1163	0,1309	0,02
78 MM 10+7%U ₃ O ₈ pv	10,350	9,285	6,9599	10,08	9,99	10,00	0,2735	1,7443	0,01
87 MM 10+7%(U,Gd)O ₂ cp	10,280	9,260	6,9902	10,24	10,14	10,12	0,1019	0,0621	0,02
8 MM 15+7% U ₃ O ₈ ps	10,265	9,280	6,9277	10,12	10,11	10,11	0,0146	0,0585	0,00
17 MM 15+7% U ₃ O ₈ pv	10,380	9,280	6,9210	10,00	10,08	10,09	0,1314	0,1022	0,01
27 MM 15+7%(U,Gd)O ₂ cp	10,260	9,245	6,9509	10,24	10,16	10,13	0,2491	0,1358	0,03
931 MM 20	10,320	9,230	6,9869	10,27	10,18	10,18	0,0584	0,1480	0,00
935 MM 20+3% U ₃ O ₈ ps	10,270	9,255	6,9205	10,16	10,14	10,16	0,1469	0,0441	0,02
939 MM 20+7% U ₃ O ₈ ps	10,325	9,230	6,9310	10,18	10,12	10,12	0,1464	0,1064	0,00
941 MM 20+10% U ₃ O ₈ ps	10,425	9,210	6,9331	10,13	10,09	10,11	0,0584	0,0438	0,02
944 MM 20+3% U ₃ O ₈ pv	10,315	9,240	6,9846	10,25	10,15	10,16	0,1749	0,1020	0,01
947 MM 20+7% U ₃ O ₈ pv	10,320	9,235	6,9736	10,24	10,13	10,14	0,2476	0,0583	0,01
951 MM 20+10% U ₃ O ₈ pv	10,370	9,215	6,9369	10,18	10,18	10,18	0,0147	0,1024	0,00
953 MM 20+3%(U,Gd)O ₂ cp	10,405	9,200	6,9708	10,23	10,24	10,24	0,1326	0,0587	0,00
957 MM 20+7%(U,Gd)O ₂ cp	10,265	9,230	6,9612	10,28	10,23	10,25	0,1768	0,0737	0,02
959 MM 20+10%(U,Gd)O ₂ cp	10,215	9,235	6,9288	10,28	10,26	10,26	0,1336	0,0742	0,00
38 MM 25+7% U ₃ O ₈ ps	10,380	9,235	6,9610	10,16	10,06	10,10	0,4930	0,0873	0,04
48 MM 25+7% U ₃ O ₈ pv	10,380	9,220	6,9475	10,17	10,09	10,13	0,3349	0,1023	0,04
56 MM 25+7% (U,Gd)O ₂ cp	10,265	9,250	6,9746	10,26	10,21	10,20	0,1468	0,0921	0,01
98 MM 30+7% U ₃ O ₈ ps	10,385	9,260	6,8968	10,00	10,04	10,07	0,1752	0,3803	0,03
106 MM 30+7% U ₃ O ₈ pv	10,265	9,265	6,9274	10,16	10,10	10,13	0,2779	0,0879	0,03
116 MM 30+7% (U,Gd)O ₂ cp	10,265	9,230	6,9746	10,30	10,27	10,26	0,1329	0,0675	0,01

Analisando a **Tabela 38** observa-se que as contrações foram muito menores do que o especificado (item **4.3**) indicando uma boa estabilidade térmica das pastilhas.

5.24 Planilha com as características físicas das pastilhas após a retificação

Durante o processo de sinterização ocorre um fenômeno conhecido como acinturamento, ou seja, é a contração mais acentuada, no sentido radial, da região central da pastilha em relação as suas extremidades. Isso faz com que haja uma variação no valor do diâmetro entre o centro e as extremidades da mesma. Para uniformizar esse diâmetro e também fornecer à pastilha o diâmetro desejado faz-se a retificação. Esse processo altera a rugosidade e a porosidade aberta das pastilhas além, é claro, do próprio diâmetro. Pela especificação a rugosidade (R_a) deve ser menor ou igual $1,6 \mu\text{m}$, a porosidade aberta $\leq 3 \%$ e o diâmetro deve ser igual a $9,11 \pm 0,013 \text{ mm}$ (RIELLA, 1985). O ensaio de retificação foi realizado somente nas pastilhas com $0,20 \%$ de Al(OH)_3 , porque foi a melhor condição de processo encontrada até o momento e os resultados estão ilustrados na **Tabela 39**.

Tabela 39 - Dimensional e comparação de algumas características das pastilhas antes e após a retificação

corrida 26-H ₂ ind-Retif.	h mm	d mm	m g	d.g. g/cm ³	d. h. g/cm ³	p. a. %	d. g. M/S	d. h. M/S	p.a. %	Rugos. (μm)	d. r. mm
151 MM 20	10,220	9,275	6,9440	10,20	10,27	1,5786	10,20	10,26	1,64	1,22	9,117
152 MM 20	10,230	9,270	6,9580	10,23	10,25	1,7218	0,02	0,01	0,08	1,23	9,115
153 MM 20	10,285	9,270	6,9670	10,18	10,25	1,6097				1,35	9,115
154 MM 20+3% U ₃ O ₈ ps	10,245	9,275	6,9550	10,19	10,22	1,7356	10,18	10,23	1,80	1,12	9,119
155 MM 20+3% U ₃ O ₈ ps	10,250	9,270	6,9340	10,17	10,26	1,8176	0,01	0,02	0,05	1,05	9,116
156 MM 20+3% U ₃ O ₈ ps	10,290	9,270	6,9600	10,17	10,22	1,8357				1,53	9,119
157 MM 20+7% U ₃ O ₈ ps	10,205	9,280	6,9280	10,18	10,20	1,8041	10,18	10,25	1,92	1,43	9,114
158 MM 20+7% U ₃ O ₈ ps	10,220	9,275	6,9230	10,17	10,28	1,9695	0,01	0,04	0,10	1,00	9,119
159 MM 20+7% U ₃ O ₈ ps	10,205	9,270	6,9030	10,17	10,26	1,9716				1,01	9,116
160 MM 20+10% U ₃ O ₈ ps	10,225	9,270	6,9120	10,16	10,22	1,9748	10,13	10,21	2,03	1,20	9,118
161 MM 20+10% U ₃ O ₈ ps	10,230	9,280	6,8860	10,10	10,19	2,0399	0,03	0,02	0,06	0,87	9,114
162 MM 20+10% U ₃ O ₈ ps	10,230	9,270	6,8900	10,13	10,22	2,0856				1,31	9,118
163 MM 20+3% U ₃ O ₈ pv	10,230	9,265	6,9130	10,17	10,25	1,7592	10,18	10,27	1,71	1,21	9,118
164 MM 20+3% U ₃ O ₈ pv	10,275	9,265	6,9590	10,19	10,28	1,6752	0,01	0,02	0,04	1,19	9,117
165 MM 20+3% U ₃ O ₈ pv	10,280	9,265	6,9530	10,18	10,28	1,7067				1,45	9,118
166 MM 20+7% U ₃ O ₈ pv	10,245	9,250	6,9050	10,18	10,28	1,7770	10,16	10,28	1,81	1,26	9,113
167 MM 20+7% U ₃ O ₈ pv	10,275	9,250	6,8970	10,14	10,26	1,8451	0,02	0,02	0,03	1,43	9,112
168 MM 20+7% U ₃ O ₈ pv	10,370	9,240	6,9600	10,16	10,30	1,8037				1,39	9,120
169 MM 20+10% U ₃ O ₈ pv	10,400	9,230	6,9570	10,14	10,24	1,8510	10,15	10,24	1,81	1,36	9,116
170 MM 20+10% U ₃ O ₈ pv	10,370	9,230	6,9280	10,13	10,25	1,7402	0,02	0,02	0,06	1,18	9,116
171 MM 20+10% U ₃ O ₈ pv	10,360	9,235	6,9570	10,17	10,22	1,8244				1,41	9,115
172 MM 20+3% (U,Gd)O ₂ cp	10,230	9,255	6,9400	10,23	10,30	1,5165	10,24	10,28	1,35	1,26	9,110
173 MM 20+3% (U,Gd)O ₂ cp	10,165	9,255	6,8980	10,24	10,26	1,2473	0,01	0,02	0,15	1,29	9,112
174 MM 20+3% (U,Gd)O ₂ cp	10,200	9,260	6,9430	10,26	10,29	1,2754				1,49	9,117
175 MM 20+7% (U,Gd)O ₂ cp	10,250	9,235	6,9630	10,29	10,36	1,0909	10,28	10,34	1,15	1,09	9,110
176 MM 20+7% (U,Gd)O ₂ cp	10,195	9,245	6,9410	10,29	10,34	1,1262	0,02	0,02	0,08	1,07	9,111
177 MM 20+7% (U,Gd)O ₂ cp	10,230	9,240	6,9390	10,27	10,33	1,2420				1,28	9,112
178 MM 20+10% (U,Gd)O ₂ cp	10,250	9,260	6,9600	10,23	10,36	1,1716	10,25	10,36	1,08	1,21	9,112
179 MM 20+10% (U,Gd)O ₂ cp	10,320	9,235	6,9750	10,24	10,38	1,0566	0,03	0,02	0,08	1,10	9,115
180 MM 20+10% (U,Gd)O ₂ cp	10,220	9,230	6,9270	10,28	10,34	1,0107				1,11	9,111

Com base na avaliação dos resultados contidos na **Tabela 39** tem-se que para todas as misturas propostas utilizando 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$, as pastilhas atendem a especificação quanto a porosidade aberta e rugosidade (R_a).

Foram também, realizados ensaios dilatométricos em pastilhas de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e com os três tipos de reciclo: U_3O_8 ps, U_3O_8 pv e $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp. Os ensaios objetivam analisar a cinética de densificação das pastilhas para os diferentes reciclos. Os resultados obtidos estão em concordância com os obtidos no processo normal de sinterização (forno), sendo que o reciclo $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ cp apresenta maior taxa de densificação. Na **Figura 42** está ilustrado o comportamento das pastilhas submetidas ao ensaio.

Figura 42 – Efeito da concentração dos reciclos no processo de sinterização das pastilhas de UO_2 -7% Gd_2O_3

As curvas obtidas neste ensaio e mostradas na **Figura 42** possuem o mesmo perfil entre si e o mesmo perfil que o verificado na **Figura 17**. A posição relativa das curvas concorda com os valores médios das densidades hidrostática

mostradas na **Tabela 16**, onde para a mistura MM 20 + 7 % U_3O_8 ps a densidade hidrostática = 10,12 g/cm³, MM 20 + 7 % U_3O_8 pv a densidade hidrostática = 10,15 g/cm³ e MM 20 + 7 % (U,Gd)O₂ cp a densidade hidrostática = 10,25 g/cm³, posto que, uma maior contração implica numa maior densidade.

5.25 Análise química das pastilhas sinterizadas

A pureza química das pastilhas sinterizadas é um dos parâmetros que pode fazer com que um lote produzido seja aceito ou recusado. Para verificar a pureza dessas pastilhas fez-se a análise química utilizando as técnicas citadas no item 4.1. Os resultados estão sumarizados nas **Tabelas 40, 41 e 42** em valores médios com os desvios padrão correspondentes. Nestas tabelas também estão mencionadas as especificações necessárias para que essas pastilhas possam ser utilizadas como combustível nuclear em reatores PWR. (RIELLA, 1985).

Analisando os resultados presentes nessas tabelas verificou-se que, para todas as concentrações propostas do aditivo $Al(OH)_3$ e dos reciclos, o teor das impurezas ficaram abaixo do valor especificado. Quanto a concentração de Gd_2O_3 , urânio total e a relação O/U os resultados também ficaram dentro dos limites especificados.

Tabela 40 – Análise química das pastilhas sinterizadas produzidas a partir das misturas MM 10 (0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$) e MM 15 (0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$)

Elementos	0,10 % $\text{Al}(\text{OH})_3$	0,15 % $\text{Al}(\text{OH})_3$	Especificação *
Al ($\mu\text{g/gU}$)	$10,209 \pm 0,176$	$11,071 \pm 0,056$	250
Si ($\mu\text{g/gU}$)	$3,448 \pm 0,412$	$5,695 \pm 0,217$	100
Ca ($\mu\text{g/gU}$)	$< 7,021$	$< 7,025$	100
Fe ($\mu\text{g/gU}$)	$1,731 \pm 0,114$	$0,236 \pm 0,010$	250
Ni ($\mu\text{g/gU}$)	$0,464 \pm 0,057$	$< 0,170$	30
Zn ($\mu\text{g/gU}$)	$< 1,223$	$< 1,224$	200
Cl^- ($\mu\text{g/gU}$)	$< 0,006$	$< 0,006$	15
F^- ($\mu\text{g/gU}$)	$< 0,006$	$< 0,006$	10
N ($\mu\text{g/gU}$)	$14,50 \pm 0,00$	$15,45 \pm 0,00$	30
C ($\mu\text{g/gU}$)	$33,01 \pm 5,69$	$35,25 \pm 7,57$	100
Gases residuais ($\text{mm}^3/\text{g UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$)	$31,22 \pm 0,45$	$33,78 \pm 0,47$	40
H equivalente ($\text{mm}^3/\text{g UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$)	$1,90 \pm 0,13$	$2,27 \pm 0,47$	12
Gd_2O_3 (%)	$7,25 \pm 0,06$	$7,36 \pm 0,04$	6,65 – 7,35
U_{Tot} (%)	$87,77 \pm 0,10$	$87,74 \pm 0,15$	$\geq 87,599$
O/U	$2,063 \pm 0,001$	$2,069 \pm 0,001$	$2,056 \pm 0,015$

* Especificação – RIELLA, 1985

Tabela 41 – Análise química das pastilhas sinterizadas produzidas a partir das misturas MM 20 (0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$) e MM 25 (0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$)

Elementos	0,20 % $\text{Al}(\text{OH})_3$	0,25 % $\text{Al}(\text{OH})_3$	Especificação *
Al ($\mu\text{g/gU}$)	$38,326 \pm 1,104$	$112,262 \pm 4,019$	250
Si ($\mu\text{g/gU}$)	$< 0,379$	$< 0,379$	100
Ca ($\mu\text{g/gU}$)	$< 0,327$	$< 0,327$	100
Fe ($\mu\text{g/gU}$)	$0,420 \pm 0,070$	$1,073 \pm 0,034$	250
Ni ($\mu\text{g/gU}$)	$< 0,309$	$< 0,309$	30
Zn ($\mu\text{g/gU}$)	$0,499 \pm 0,101$	$0,792 \pm 0,164$	200
Cl^- ($\mu\text{g/gU}$)	$14,28 \pm 0,50$	$< 0,50$	15
F^- ($\mu\text{g/gU}$)	$0,68 \pm 0,03$	$5,27 \pm 0,05$	10
N ($\mu\text{g/gU}$)	$3,84 \pm 0,09$	$4,33 \pm 0,43$	30
C ($\mu\text{g/gU}$)	$32,02 \pm 1,47$	$30,62 \pm 1,04$	100
Gases residuais ($\text{mm}^3/\text{g UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$)	$29,88 \pm 1,15$	$29,15 \pm 0,49$	40
H equivalente ($\text{mm}^3/\text{g UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$)	$2,82 \pm 0,03$	$2,85 \pm 0,07$	12
Gd_2O_3 (%)	$7,01 \pm 0,02$	$6,97 \pm 0,02$	6,65 – 7,35
U_{Tot} (%)	$87,69 \pm 0,10$	$89,27 \pm 0,49$	$\geq 87,599$
O/U	$2,061 \pm 0,011$	$2,053 \pm 0,001$	$2,056 \pm 0,015$

* Especificação – RIELLA, 1985

Tabela 42 – Análise química das pastilhas sinterizadas produzidas a partir das misturas MM 30 (0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$)

Elementos	0,30 % $\text{Al}(\text{OH})_3$	Especificação *
Al ($\mu\text{g/gU}$)	$151,645 \pm 1,971$	250
Si ($\mu\text{g/gU}$)	$< 0,379$	100
Ca ($\mu\text{g/gU}$)	$< 0,327$	100
Fe ($\mu\text{g/gU}$)	$0,210 \pm 0,086$	250
Ni ($\mu\text{g/gU}$)	$< 0,309$	30
Zn ($\mu\text{g/gU}$)	$0,502 \pm 0,101$	200
Cl^- ($\mu\text{g/gU}$)	$< 0,50$	15
F^- ($\mu\text{g/gU}$)	$2,18 \pm 0,03$	10
N ($\mu\text{g/gU}$)	$4,57 \pm 0,43$	30
C ($\mu\text{g/gU}$)	$42,94 \pm 0,86$	100
Gases residuais ($\text{mm}^3/\text{g UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$)	$38,96 \pm 0,87$	40
H equivalente ($\text{mm}^3/\text{g UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$)	$3,05 \pm 0,07$	12
Gd_2O_3 (%)	$6,89 \pm 0,03$	6,65 – 7,35
U_{Tot} (%)	$87,88 \pm 0,21$	$\geq 87,599$
O/U	$2,050 \pm 0,003$	$2,056 \pm 0,015$

* Especificação – RIELLA, 1985

5.26 Ataque químico

O ataque químico é realizado colocando-se a amostra (pastilha) polida em contato, por alguns segundos, com soluções de $\text{H}_2(\text{SO})_4$ e H_2O_2 aquecidas a uma temperatura inferior a $50\text{ }^\circ\text{C}$. Em seguida a amostra é lavada e seca. O processo pode ser repetido algumas vezes até se obter uma boa revelação das cores.

Este tipo de teste fornece uma foto colorida da superfície analisada e tem como objetivo verificar quais as fases presentes na superfície de corte da pastilha. A fase UO_2 possui a cor azul, a solução sólida $(\text{U-Gd})\text{O}_2$ tem a cor marrom em várias tonalidades e o Gd_2O_3 é branco. O ensaio foi realizado nas pastilhas obtidas com as cinco concentrações de $\text{Al}(\text{OH})_3$. A inspeção se dá por avaliação de fotos ou tomadas em vídeo com aumento de 50 a 100 vezes.

O fato de se encontrar duas fases, solução sólida e UO_2 livre na superfície de corte da pastilha, está perfeitamente de acordo com Manzel e Durazzo (MANZEL, 1980; DURAZZO, 2001).

Nas **Figuras 43, 44, 45, 46 e 47** são apresentadas fotos mostrando as fases encontradas após o ataque químico das pastilhas obtidas utilizando as cinco concentrações do aditivo.

Figura 43 – As imagens **A** e **B** são do ataque químico de uma pastilha obtida com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

C **D**

Figura 44 – As imagens **C** e **D** são do ataque químico de uma pastilha obtida com 0,15 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

E **F**

Figura 45 – As imagens **E** e **F** são do ataque químico de uma pastilha obtida com 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

G **H**

Figura 46 – As imagens **G** e **H** são do ataque químico de uma pastilha obtida com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

Figura 47 – As imagens **I** e **J** são do ataque químico de uma pastilha obtida com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

Observa-se que nas fotos representadas pelas **Figuras 43, 44, 45 e 46** aparecem regiões em azul o que caracteriza a presença de UO_2 livre, porém em quantidades e tamanhos muito aquém do valor especificado (tamanho de 1.000 μm e fração de até 40 % em massa)

Quanto as fotos da **Figura 47**, que representa o ataque químico da pastilha produzida com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$, praticamente não se observou nenhuma partícula azul., isto indica que a superfície de corte é formada principalmente por solução sólida.

Não foi encontrada nenhuma região ou partícula branca nas superfícies de corte de todas as pastilhas atacadas quimicamente, indicando que não há gadolínio livre. Esta observação concorda com as análises espectrometria de energia dispersiva (EDS), pois foi feita pelo menos uma análise micrográfica (MEV/EDS) de toda área da superfície de corte de pelo menos uma pastilha obtida a partir de todas as misturas propostas e em nenhuma delas se encontrou gadolínio livre.

Uma constatação interessante, é que a partir da análise micrográfica, da superfície de corte das pastilhas, há a existência de regiões onde ficam aglomeradas partículas muito pequenas como pode visto na **Figura 48 A, B e C**.

Figura 48 A – Micrografia obtida de uma pastilha obtida a partir da concentração de 0,20 % $\text{Al}(\text{OH})_3$

Figura 48 B – Micrografia obtida de uma pastilha obtida a partir da concentração de 0,15 % $\text{Al}(\text{OH})_3$

Figura 48 C – Micrografia obtida de uma pastilha obtida a partir da concentração de 0,25 % $\text{Al}(\text{OH})_3$

A princípio pensou-se em se tratar de ilhas de Gd_2O_3 , porém a análise por EDS mostrou que não havia concentração de Gd. Depois se investigou a possibilidade de ser Al que também não se confirmou. Somente quando foi feita análise por meio do ataque químico é se verificou que o UO_2 livre se concentra preferencialmente nestas regiões como pode verificado por meio da **Figura 49 A e B**.

Figura 49 A – Imagem do ataque químico em uma pastilha obtida com 0,25 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$

Figura 49 B – Imagem do ataque químico em uma pastilha obtida com 0,15 % de Al(OH)_3

6 Comentários e Conclusão

6.1 Teor de Al residual

Para o teor de Al nas pastilhas de veneno queimável integrado $\text{UO}_2 - 7\%\text{Gd}_2\text{O}_3$ utilizadas nos reatores tipo PWR, está especificado o valor de $250 \mu\text{g/gU}$ como sendo o máximo permitido (RIELLA, 1985). Na **Tabela 43** estão ilustradas os teores de Al adicionados e os teores residuais obtidos, com seus desvios padrão, após a sinterização das pastilhas.

Tabela 43 - Concentrações de Alumínio

Teor de Al(OH)_3 adicionado %	Teor de Al(OH)_3 adicionado $\mu\text{g/g}$	Teor de Al adicionado $\mu\text{g/g}$	Teor de Al residual (após a sinterização) $\mu\text{g/g}$
0,10	1.000	346	$10,209 \pm 0,176$
0,15	1.500	519	$11,071 \pm 0,056$
0,20	2.000	692	$38,326 \pm 1,04$
0,25	2.500	865	$112,262 \pm 4,019$
0,30	3.000	1.038	$152,645 \pm 1,971$

Pela análise da **Tabela 43** observa-se as quantidades de Al adicionadas são, em alguns casos, várias vezes maior que 250 $\mu\text{g/gU}$, todavia após a sinterização o teor residual é sempre menor do que este valor, indicando que ocorre a volatilização do aditivo durante a sinterização (MATSUDA, 1996). Nas **Figuras 50 A e B** estão ilustradas duas micrografias onde se observam que o Al residual se localiza preferencialmente nos contornos de grão.

Figura 50 A – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8
ps ressaltando o Al residual

Figura 50 B – Pastilha de UO_2 - 7 % Gd_2O_3 com 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ e 7 % U_3O_8
ps ressaltando o Al residual

6.2 Comentários finais e sugestões para trabalhos futuros

O desenvolvimento do processo de obtenção do veneno queimável integrado UO_2 -7% Gd_2O_3 proposto por este trabalho foi por via mistura mecânica dos pós de UO_2 , de Gd_2O_3 , dos reciclos e do aditivo de densificação.

Os diferentes tipos de reciclo estudados estavam na forma de U_3O_8 obtidos a partir da calcinação de pastilhas verdes e sinterizadas e forma de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$, produzido a partir da coprecipitação do Gd com U na forma de DUA. A consideração deste tipo de reciclo, pó de $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ foi importante, para o caso de ocorrer alguma anomalia no processo produtivo, principalmente nas etapas da mistura mecânica do UO_2 com Gd_2O_3 ou de compactação, onde pode haver a contaminação do material e/ou dosagem em desacordo com a especificação. Neste caso pode-se promover a recuperação do material por meio deste reciclo.

Basicamente, foram estudados 50 tipos de misturas utilizando como aditivo de densificação o $\text{Al}(\text{OH})_3$ em cinco concentrações: 0,10; 0,15; 0,20; 0,25 e 0,30 % e os reciclos em três concentrações: 3, 7 e 10 %. Primeiramente efetuou-se a caracterização química e física de todos os compostos utilizados. Em seguida estudou-se a variação da densidade hidrostática, porosidade aberta, tamanho de poros e grãos em função da concentração do $\text{Al}(\text{OH})_3$ e do tipo e concentração do reciclo. Na etapa seguinte, realizaram-se os testes de ressinterização e retificação para o acerto dimensional das pastilhas. Na última etapa foram realizadas as análises químicas e ataque químico do produto final - pastilhas sinterizadas.

sem reciclo

Considerando a **Tabela 19**, observa-se que com o aumento do teor de aditivo de densificação $\text{Al}(\text{OH})_3$ nas pastilhas $\text{UO}_2\text{-7\%Gd}_2\text{O}_3$ sem qualquer adição de reciclo, a densidade aumenta até um valor médio máximo de $10,18 \text{ g/cm}^3$. Nesta condição, isto é, sem reciclo, o teor de $\text{Al}(\text{OH})_3$ não está limitado, uma vez que a densidade hidrostática obtida com concentrações de $\text{Al}(\text{OH})_3$ variando de 0,10 a 0,30% atendem a especificação. Conseqüentemente pode-se afirmar que a utilização do aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ apresentou elevada eficiência no fenômeno de densificação evitando os problemas evidenciados por (DURAZZO, 2001). Do ponto de vista tecnológico, quando não se utiliza o reciclo, pode-se sugerir que um teor de $\text{Al}(\text{OH})_3$ deveria ser 0,15%, visto que a densidade hidrostática média obtida foi de $10,13 \text{ g/cm}^3$, que é valor médio entre 9,98 e $10,28 \text{ g/cm}^3$.

reciclo - pastilhas sinterizadas

Considerando-se a adição do reciclo U_3O_8 ps (resultante da calcinação de pastilhas sinterizadas) e analisando-se as **Tabelas 14, 15, 16, 17 e 18** conclui-se que a melhor condição foi 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$, pois é com essa concentração que se obtém densidades hidrostática próxima do valor médio de $10,13 \text{ g/cm}^3$. Ressalta-se que a adição de U_3O_8 , em pastilhas de UO_2 puro ou em pastilhas de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ aumenta o volume de porosidade, conforme observado na **Figura 23**, isto é, com o aumento do teor de U_3O_8 , ocorre uma redução da densidade hidrostática. Contudo, o uso de $\text{Al}(\text{OH})_3$ nas concentrações de 0,10 a 0,30%, torna o processo de produção

de pastilhas de UO_2 -7% Gd_2O_3 bastante flexível e seguro, pois permite adicionar de 3 a 10 % do reciclo U_3O_8 ps sem ocorrer variação considerável da densidade hidrostática.

reciclo - pastilhas verdes

Considerando a adição do reciclo U_3O_8 pv (resultante da calcinação da pastilha verde), observamos que o teor de U_3O_8 pv deverá ser limitado em 7%, para o teor de 0,10 e 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$. Nestas duas condições, como observado nas **Tabelas 26 e 30**, a densidade hidrostática obtida, para o reciclo de 10 % de U_3O_8 pv, foi de $9,94 \text{ g/cm}^3$, sendo que valor mínimo desejado é de $9,98 \text{ g/cm}^3$.

Analisando a micrografia das pastilhas obtidas a partir da mistura UO_2 - 7 % Gd_2O_3 + 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ + 10 % de U_3O_8 pv, observou-se poros intragranulares devido a um bloqueio no processo de densificação causado provavelmente pelo elevado teor de U_3O_8 . Uma explicação possível para este fato é que o U_3O_8 obtido desta calcinação apresenta elevada atividade e pode alterar o potencial de oxigênio local, transformando íons de U^{+4} em U^{+5} e aumentando assim a difusividade do urânio. Como resultado tem-se o efeito Kirkendall, conforme observado em trabalhos publicados (DURAZZO, 2001), que interfere na densificação da pastilha. Ressalta-se que o teor de 0,10 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ não foi o suficiente para minimizar este efeito.

Quanto a mistura UO_2 - 7 % Gd_2O_3 + 0,30 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ + 10 % de U_3O_8 pv, a densidade hidrostática também ficou abaixo do valor mínimo. Neste caso deve-se considerar um efeito adicional para explicar a redução da densidade hidrostática: o elevado teor de $\text{Al}(\text{OH})_3$. O excesso de aditivo provocou a redução da densidade devido a sua volatilização (MATSUDA, 1996). Ressalta-se também que a pastilha sinterizada obtida a partir dessa mistura, apresenta poros intragranulares, fundamentando o fenômeno de coalescência de poros: efeito Kirkendall.

Como no caso do reciclo das pastilhas sinterizadas a concentração de $\text{Al}(\text{OH})_3$ indicada é de 0,20 % pois, é com essa concentração que se obtém densidades hidrostática próxima do valor médio de $10,13 \text{ g/cm}^3$

reciclo - (U,Gd)O₂ coprecipitado

Neste caso, ao contrário do que ocorre com reciclo de U₃O₈, a adição do reciclo (U,Gd)O₂ cp faz com que a curva dos valores médios fique acima da curva quando não se utiliza o reciclo. Considerando-se os valores médios de densidade da pastilha, observa-se que a curva para 10% de reciclo (U,Gd)O₂ cp está acima da curva para 7 % que, por sua vez, está acima da curva para 3 %. Este fato ocorre, provavelmente, devido a alta sinterabilidade do pó de (U,Gd)O₂ coprecipitado (DURAZZO, 2001). Quando se utiliza este tipo de reciclo as concentrações de Al(OH)₃ mais indicadas são 0,10 e 0,30 % pois são com estes valores que se obtém as densidades mais próximas de valor médio de 10,13 g/cm³.

Para trabalhos futuros, seria interessante, para uma determinada condição de combustível, isto é, UO₂- 7% Gd₂O₃ e 0,20% de Al(OH)₃ estudar e avaliar o mecanismo de densificação com a presença do aditivo de densificação.

6.3 Conclusões

1) Quanto à densidade hidrostática:

- para até 10 % do reciclo na forma de U₃O₈ obtido da calcinação de pastilhas sinterizadas ou na forma de (U,Gd)O₂ obtido a partir da coprecipitação do Gd com U na forma de DUA, o processo desenvolvido fornece pastilhas de veneno queimável UO₂-7%Gd₂O₃ com a densidade hidrostática dentro da especificação, para as concentrações do aditivo Al(OH)₃ variando de 0,10 a 0,30 %.

- para até 10 % do reciclo na forma de U₃O₈ obtido da calcinação de pastilhas verdes ou do pó, o processo desenvolvido fornece pastilhas de veneno queimável UO₂-7%Gd₂O₃ dentro da especificação para as concentrações, do aditivo Al(OH)₃, variando de 0,15 a 0,25 %.

2) Quanto à porosidade aberta:

- todas as pastilhas obtidas a partir de todas as misturas propostas

estão dentro da especificação.

3) Tamanho de poros e grãos para todas as misturas propostas não se mostrou dependente do teor do reciclo e do aditivo.

4) Todas as pastilhas submetidas ao teste de ressinterização se mostraram muito estáveis termicamente.

5) As pastilhas submetidas ao teste de retificação apresentaram rugosidade e porosidade aberta dentro da especificação.

6) A análise química do produto final mostrou que a especificação foi atendida.

7) O ataque químico mostrou que a microestrutura das pastilhas satisfaz a especificação quanto ao UO_2 e Gd_2O_3 livres.

8) A concentração de 0,20 % de $\text{Al}(\text{OH})_3$ é o valor indicado em escala industrial. Com essa concentração do aditivo se obteve todas as pastilhas produzidas dentro da especificação utilizando ou não reciclo de até 10 %.

9) O aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ além de muito eficiente no fenômeno de densificação também promove o aumento do tamanho de grão. Ao se comparar a **Tabela 5** com as **Tabelas 25, 31 e 37**, observa-se que o que o diâmetro médio equivalente de grão quando não se usa o aditivo $\text{Al}(\text{OH})_3$ é de aproximadamente 4,5 μm (**Tabela 5**). Para as condições em que se faz uso do aditivo o diâmetro médio equivalente passa para 9,5 μm aproximadamente (**Tabelas 25, 31 e 37**).

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 - ANDERSON, W. K.; THEILACKER, J.S. Neutron absorber materials for reactor control. Naval Reactors Handbooks. USAEC, Washington, DC. 1962.
- 2 - ASOU, M.; PORTA, J. Prospects for poisoning reactor cores of the future. *Nucl. Eng. Design*, v.168, p. 261-270, 1997.
- 3 – BABA, S. Operação de uma unidade semi-industrial de produção de UO_3 . Dissertação de mestrado. IPEN. 1982.
- 4- CHOTARD, A., et al., Out-of-Pile physical properties and In-Pile thermal conductivity of $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ IWGPT 26, p. 77-86, Vienna, 1986.
- 5 - COCHRAN, R. G.; TSOULFANIDIS, N. The nuclear fuel cycle: analysis and management. La Grange Park, Ill: American Nuclear Society, 1992.
- 6 - DURAZZO, M. Estudo do Mecanismo de Bloqueio da Sinterização no Sistema $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$. Tese de Doutorado. IPEN. 2001
- 7 - FUKUSHIMA, S., et al. The effect of gadolinium content on the thermal conductivity of near-stoichiometric $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ solid solutions, *J. Nucl. Mat.*, v. 105, p. 201-210, 1982.
- 8 – GANGULY, C. Sol-gel microsphere pelletization: A powder-free advanced for fabrication of ceramic nuclear fuel pellets. *Bull. Mater. Sci.*, v. 16, n. 6, p. 509-522, 1993.
- 9 – GOLDSTEIN, L.; STRASSER, A. A.; A comparasion of gadolínia and boron for burnable poison applications in pressurized water reactors. *Nucl. Technology*, v. 60, p. 353, 1983.
- 10 – HARTLEY, K., et al., *Trans ANS*, v. 44 (1983), p. 526-527
- 11 – HEAL, T. J.; LITTLECUILD, J. E. Fabrication of UO_2 powder and

pellets (IDR process). Trans. Am. Nucl. Soc., v. 28, p. 326-327, 1978.

12 - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Characteristics and use of urania-gadolínia fuels. Relatório IAEA-TECDOC-844. Vienna, Austria, 1995.

13 – INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Advances in fuel pellet technology for improved performance at high burnup Characteristics and use of urania-gadolínia fuels. IAEA-TECDOC-1036. Proceedings of a Technical Committee held in Tokyo, Japan, 28 October – 1 November 1996.

14 - MANZEL, R., DÖRR, W. O., Manufacturing and irradiation experience with $\text{UO}_2/\text{Gd}_2\text{O}_3$ fuel. Am. Cerm. Soc. Bull., v 59, n. 6, p. 601-603, 1980

15 - MÄRKAL, H.; HOLZER, R. Advanced core and fuel design for light water reactors. Kerntechnik, v. 50, n 4, p. 241-248, 1987.

16 - MATSUDA, T., YUASA, Y., KOBAYASHI, S., TOBA, M., Characteristics of fuel pellet with additive of Al and Si, Relatório IAEA-TECDOC-1036 . Tokyo, Japan, 1996.

17 – MONTGOMERY, D. C., RUNGER, G. C., Applied Statistics and Probability for Engineers. 3rd edition, John Wiley & Sons, Inc.,USA, 20002.

18 - MOROGOV, V.; NIKOLAEV, M.N. AND TSIBOULIA, A.M. The need for innovative nuclear reactor and fuel cycle systems. International Seminar on Advanced Nuclear Energy Systems Toward Zero Release of Radiactives Wastesa Susono, Shizuoka, Japan, 2000.

19 - MURGATROYD, R. A.;KELLY, B. T. Tecnology and assessment of neutron absorbing materials. Atomic Energy Review, v. 15, n. 1, 1977.

20 - PORTA, J. High burn-up: a key issue for the future. Global 99,ANS Publisher, 1999

21 – PSHENIN, V., et al, Comparison of calculations for WWER-1000

lattice containing BA rods with gadolinium, USSR contribution to the EIEA CRP on Safe Core Management with Burnable Absorbers in WWERs, 1990.

22 – RADFORD, K. C.; LYON, W. L.; HART, J. E. Fluid-bed conversion of UF_6 to UO_2 . Am. Ceram. Soc. Bull., v. 58, n. 2, p. 219-222, 232, 1979.

23 - RIELLA, H. G., Relatório Interno do Projeto Combustível Nuclear: Fabricação de Combustível Tipo PWR, 1985.

24 – SANTOS, L. R. Unidade Piloto de Obtenção do Tricarbonato de Amônio e Urânio. Dissertação de Mestrado. IPEN. 1989.

25 – SECKER, J. R.; ERWIN, R. D. ZrB_2 : the optimum integral fuel burnable absorber for PWRs. Trans. Am. Nucl. Soc., v. 62, p. 555-556, 1990.

26 – SIMMONS, R. L.; JONES, N. D.; POPA, F. D.; MUELLER, D. E.; PRITCHETT, J. E. Integral fuel burnable absorbers with ZrB_2 in pressurized water reactor. Nucl. Technology, v. 80, p. 343-348, 1980.

27- SKOGEN, R. B., KILLGORE, M. R., Performance of Exxon nuclear gadolinia-bearing fuel in pressurized water reactors, ANS Topical Meeting LWR Fuel Performance, Orlando, Florida, April 21-24, p. 5-43 to 5-49, 1985.

28 - STRASSER, A. A.; SHEPPARD, K. D. Light water reactor reactivity control. Nuclear Energy, v. 23, n. 3, p. 169-178, 1984.

29 – SRINILTA, S.; SCHMIDT, R. F.; PRITCHETT, J. E. A comparison of gadolinium and ZrB_2 as integral burnable absorbers in PWRs. Trans. Am. Nucl. Soc., v. 55, p. 124-126, 1987.

30- THORNTON, T. A., et al. Thermal conductivity of sintered uranium-gadolinia, ANS Winter Meeting, Washington DC, Nov. 14-18, p. 348-349, 1982.

31 – VLADIMIR, B., HISASHI N., and VLADIMIR A. Potential to approach the long-life core in a light water reactor with uranium oxide fuel. Annals of Nuclear

Energy 29,595-608, 2002.