



**FABRICAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS PARA O
REATOR ARGONAUTA, DO INSTITUTO DE ENGENHARIA
NUCLEAR**

*THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS, HELITON M. HAYDT,
CLAUER TRENCH DE FREITAS*

PUBLICAÇÃO I.E.A. N.º 95

Maio — 1965

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"
SÃO PAULO — BRASIL

FABRICAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS PARA O REATOR ARGONAUTA,
DO INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR

por

Tharcisio D. de Souza Santos

Heliton M. Haydt

Clauer Trench de Freitas

DIVISÃO DE METALURGIA NUCLEAR

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA

São Paulo - Brasil

Publicação IEA nº 95

Maio 1965

Separata de "METALURGIA-REVISTA DA ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE
METAIS", v. 21, nº 90, p. 369-376, maio, 1965.

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof. Luiz Cintra do Prado

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof. Luiz Antonio da Gama e Silva

Instituto de Energia Atômica

① Diretor: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IEA

Prof. José Moura Gonçalves

Prof. Walter Borzani

Prof. Rui Ribeiro Franco

Prof. Theodoreto H.I. de Arruda Souto

} pela USP

} pela CNEN

Divisões Didático-Científicas:

Div. de Física Nuclear: Prof. Marcello D.S. Santos

Div. de Engenharia de Reatores: Prof. Tharcisio D.S. Santos

Div. de Ensino e Formação: Prof. Luiz Cintra do Prado (licenciado)

Div. de Radioquímica: Prof. Fausto Walter de Lima

Div. de Radiobiologia: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Div. de Metalurgia Nuclear: Prof. Tharcisio D.S. Santos

Div. de Engenharia Química: Prof. Kazimierz J. Brill

RESUMEN

Los autores describen los trabajos experimentales realizados en el Instituto de Energia Atómica, São Paulo, referentes a la fabricación de elementos combustibles para el reactor Argonauta, el cual se encuentra actualmente al fin del montaje en el Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro, Guanabara. Los autores estudiaron previamente los diversos procesos de fabricación que podrían ser utilizados para poder sacar partido de los aparatos existentes en los laboratorios de la División de Metalurgia Nuclear y los aparatos que pudiesen ser construidos rápidamente en el país.

Antes de haber sido iniciados los trabajos de producción de los elementos combustibles para el reactor, los cuales utilizan "cermet" constituido por dispersión de U_3O_8 con 20% de enriquecimiento en isótopo U-235, con aluminio, fueron ejecutadas muchas series de estudios experimentales con "cermets" constituidos de proporciones variables de U_3O_8 (natural) y aluminio en polvo, a fin de permitir los datos necesarios para escoger la composición final y para la determinación de los parámetros experimentales para el proyecto de las matrices. La composición final escogida es de 54,4% U_3O_8 y 45,6% Al el revestimiento siendo de aleación 1100 de Al . Los estudios preliminares lanzaron mano también, de, la variante de colingotage como la de laminación de conjuntos de moldura, habiendo sido, por fin, preferida la última solución, que además aseguró resultados uniformes y reproducibles en cuanto a la constancia de las dimensiones y la inexistencia de defectos en la superficie y en las extremidades del núcleo deformado. Cada elemento combustible está constituido por 17 chapas de 610 mm x 73 mm x 2,42 mm de espesor conteniendo núcleo de "cermet" con la composición indicada y con las dimensiones 585 a 590 mm de longitud. 68,5 mm de ancho y 1,86 mm de espesor. El espesor medio del revestimiento, en aleación 1100, es así de 0,28 mm.

En el trabajo, los autores describen las principales operaciones, comenzando por la preparación de los materiales de carga y de los conjuntos y terminando con los principales resultados obtenidos en ensayos de las chapas producidas.

SOMMAIRE

Les auteurs décrivent les expériences réalisées à "l'Instituto de Energia Atômica de São Paulo", relatives à la fabrication des éléments combustibles pour le réacteur Argonauta qui est en montage à "l'Instituto de Engenharia Nuclear, Guanabara".

Les auteurs ont d'abord étudié les procédés de fabrication qui permettaient d'utiliser l'appareillage déjà installée à l'Instituto de São Paulo ainsi que l'appareillage qui pouvait être fabriquée rapidement dans le Pays.

Avant de commencer les travaux de production des éléments combustibles qui utilisent "cermet" formé par dispersion de U_3O_8 enrichi à 20% en U-235, avec aluminium, on a fait des études expérimentales avec "cermet" dont les proportions de U_3O_8 (naturel) et Al en poudre varient afin de choisir la composition finale et la détermination des paramètres expérimentaux pour le projet des éléments combustibles.

La composition finale choisie est de 54,4% en U_3O_8 et de 45,6% en Al; le gainage est de l'aluminium 1100.

Au moment des études préliminaires on a tenté aussi la co-lingotage ainsi que la laminage d'ensemble de moulage; mais on a préféré la dernière solution parce qu'elle assure des résultats uniformes et une reproductibilité des dimensions ainsi que l'inexistence de défauts dans la surface et dans les extrémités du noyau déformé.

Chaque élément combustible est constitué par 17 plaques de 610 mm de longueur x 73 mm de largeur x 2,4 mm de épaisseur. Le noyau de "cermet" avec la composition citée a les dimensions: 585 à 590 mm de longueur x 65,8 mm de largeur et 1,86 mm d'épaisseur.

L'épaisseur moyenne de gainage (Al 1100) est de 0,28 mm.

Les auteurs décrivent les opérations principales, qui commencent avec la préparation des matériaux de charge et des ensembles et donnent les principaux résultats obtenus sur les plaques fabriquées.

ABSTRACT

The authors describe the experimental work conducted at the Instituto de Energia Atômica, São Paulo, to fabricate the fuel elements for the Argonaut reactor which is presently being completed at the Instituto de Engenharia Nuclear at Rio de Janeiro (GB). The authors have previously studied the several fabrication processes which would be utilized, to take advantage of the existing equipment at the Nuclear Metallurgy Division Laboratories as well as from equipment possible to be rapidly made in the country.

Prior to the actual production of the fuel elements for the reactor — which utilizes "cermet" — constituted by a dispersion of U_3O_8 , with a 20% enrichment of U-235 isotope, with aluminum, many experimental series of studies have been executed with "cermets" composed of different proportions of

U_3O_8 (natural) and aluminum powder in order to supply the necessary data for the selection of the final composition and for the determining of the matrix design. The final selected composition is 54,4% of U_3O_8 and 45,6% of aluminum, surrounded by the 1,100 aluminum. The preliminary studies were conducted with the support of cast cladding as well as of the picture frame rolling which was finally preferred, since it assures uniform results and reproducible results as to the dimensions, and to the non-existence of defects at the surface or at the ends of the deformed core.

Each fuel element is composed of 17 plates of 610 mm by 73 mm by 2.42 mm thick, containing a "cermet" core with the indicated composition and with the dimensions of 585 to 590 mm long, by 58,5 mm wide by 1.86 mm thick. The average thickness of the coating made of 1,100 alloy is consequently 0.28 mm. The authors describe in the paper the principal operations, starting from the loading materials preparation and completing with the main results obtained in test on the produced plates.

FABRICAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS PARA O REATOR ARGONAUTA, DO INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR ⁽¹⁾

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS ⁽²⁾

HELITON M. HAYDT ⁽³⁾

CLAUER TRENCH DE FREITAS ⁽⁴⁾

RESUMO

Os autores descrevem os trabalhos experimentais realizados no Instituto de Energia Atômica, São Paulo, referentes à fabricação de elementos combustíveis para o reator Argonauta, o qual se encontra presentemente em fim de montagem no Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro, GB. Os autores estudaram previamente os diversos processos de fabricação que poderiam ser utilizados para poder tirar partido do aparelhamento existente nos laboratórios da Divisão de Metalurgia Nuclear e de aparelhamento que pudesse ser construído rapidamente no País.

Antes de terem sido iniciados os trabalhos de produção dos elementos combustíveis para o reator, os quais utilizam "cermet" constituído por dispersão de U_3O_8 , com 20% de enriquecimento em isótopo U-235, com alumínio, foram executadas muitas séries de estudos experimentais com "cermets" constituídos de proporções variadas de U_3O_8 (natural) e Al em pó, a fim de permitir os dados necessários para a escolha da composição final e para a determinação dos parâmetros experimentais para o projeto das matrizes. A composição final escolhida é de 54,4% U_3O_8 e 45,6% Al, o revestimento sendo de liga 1100 de alumínio. Os estudos preliminares lançaram mão também da variante de co-lingotagem como a de laminação de conjuntos de moldura, tendo sido por fim preferida a última solução, de vez que assegura resultados uniformes e reprodutíveis quanto à constância de dimensões e de inexistência de defeitos na superfície e nas extremidades do núcleo deformado.

Cada elemento combustível é constituído por 17 chapas de 610 mm \times 73 mm \times 2,42 mm de espessura, contendo núcleo de "cermet" com a composição indicada e com as dimensões 585 a 590 mm de comprimento, 68,5 mm de largura e 1,86 mm de espessura. A espessura média do revestimento, em liga 1100, é assim de 0,28 mm. No trabalho descrevem os autores as principais operações, começando pelo preparo dos materiais da carga e dos conjuntos e terminando com os principais resultados obtidos em ensaios das chapas produzidas.

1. INTRODUÇÃO

A Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica recebeu a incumbência de fabricar os elementos combustíveis para o reator Argonauta, do Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro, GB, o qual se acha presentemente em fim de montagem na Cidade Universitária, Rio de Janeiro. Esse reator terá potência máxima de 10 kW (térmicos) e foi to-

talmente construído no País, só tendo sido importados os materiais que de outra forma não poderiam ser aqui obtidos, como, por exemplo, o urânio com 20% de enriquecimento em isótopo U-235, na forma de U_3O_8 , cedido pela "United States Atomic Energy Commission" à Comissão Nacional de Energia Nuclear, em virtude dos acordos vigentes.

Os elementos combustíveis do reator Argonauta, num total de 9 unidades, apresentam algumas modificações importantes em relação aos do projeto desenvolvido no "Argonne National Laboratory", dos Estados Unidos, bem como aos de algumas variantes posteriores ao projeto original. Em particular, o teor de U_3O_8 do núcleo, e assim a massa total de U-235 em cada chapa, é substancialmente maior do que nas chapas do projeto inicial ou das novas variantes construídas ¹.

Os estudos experimentais desenvolvidos desde fins de 1962 visaram principalmente determinar a influência das principais variáveis de fa-

(1) Contribuição Técnica nº 566. Apresentada ao XIX Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais; São Paulo, julho de 1964.

(2) Membro da ABM; do Instituto de Pesquisas Tecnológicas em comissão no Instituto de Energia Atômica na chefia da Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.

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

(4) Membro da ABM; Engenheiro Civil e Engenheiro Nuclear; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.

bricação sobre o comportamento dos "cermets" e dos conjuntos durante o processo de laminação das chapas; estabelecer o processo que melhor se adaptasse ao aparelhamento existente ou ao aparelhamento que pudesse ser construído localmente e dentro de breve prazo; fornecer os dados necessários para o projeto e construção das matrizes, ferramentas e dispositivos necessários para a fabricação dos elementos combustíveis, e, por fim, permitir que se adquirisse a necessária experiência na produção desses elementos combustíveis, e, por fim, permitir que se adquirisse a necessária experiência na produção desses elementos combustíveis, bem como se pudesse solucionar os difíceis problemas de "contabilidade" do urânio enriquecido.

Principalmente na fase inicial dos trabalhos, defrontaram-se os autores com muitas dificuldades experimentais, principalmente as resultantes do comportamento irregular e errático dos "cermets" produzidos durante o processo de laminação, causando defeitos indesejáveis nas chapas. Os estudos sistemáticos então conduzidos permitiram solucionar gradativamente os problemas encontrados e permitiram em setembro de 1963 a fabricação do primeiro elemento combustível com urânio natural bem como as primeiras chapas com urânio enriquecido.

Os trabalhos preliminares e parte dos resultados obtidos foram descritos em algumas contribuições dos autores apresentadas aos XVII e XVIII Congressos Anuais da ABM^{2,3}, à "Reunião do Grupo de Estudos sobre a Utilização de Reatores de Pesquisa", realizada em São Paulo sob os auspícios da "Agência Internacional de Energia Atômica"⁴, bem como em duas contribuições técnicas que farão parte da representação brasileira à "Terceira Conferência Mundial sobre as Aplicações Pacíficas da Energia Atômica", a ter lugar em agosto-setembro do ano corrente em Genebra^{5,6}. Em virtude de muitos dos detalhes terem sido descritos e discutidos nesses trabalhos, evitarão os autores sua repetição nesta contribuição.

2. APANHADO SOBRE OS ESTUDOS EXPERIMENTAIS REALIZADOS

Os estudos experimentais realizados no sentido de fornecer os dados necessários para a fabricação dos elementos combustíveis foram feitos sempre utilizando-se U_3O_8 de concentração natural em isótopo U-235, obtido pelos autores por calcinação em forno elétrico de diuranato de amônio de pureza nuclear.

A fig. 1 reproduz de forma esquemática as seqüências de operação para as duas variantes estudadas, incluindo todas as operações mais importantes, cujos detalhes serão analisados mais adiante nesta contribuição.

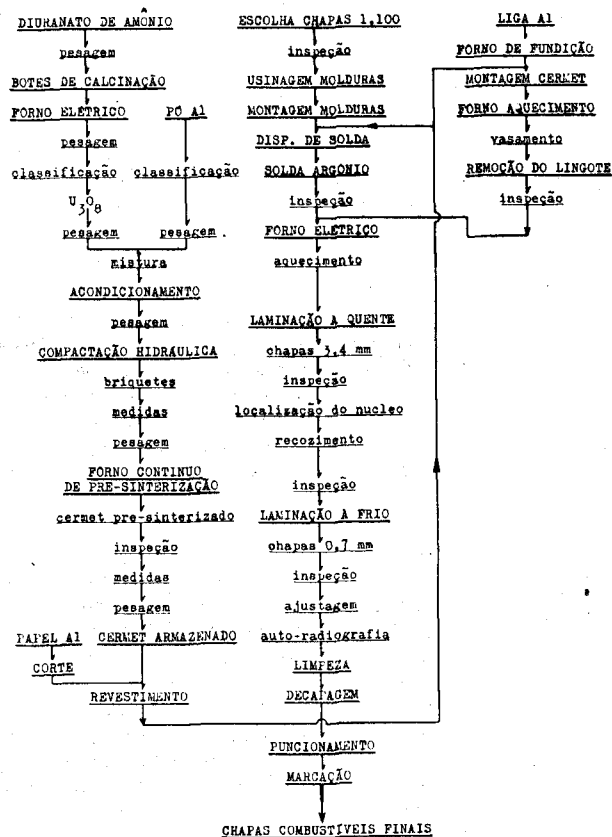


Fig. 1 — Seqüência das operações de fabricação das chapas para elementos combustíveis Argonauta.

Duas variantes foram estudadas para a produção das chapas, a saber: 1) o processo de coligotagem, no qual em lingoteira de projeto especial é feito o vazamento do metal de revestimento em volta do núcleo, constituído pelo "cermet" de U_3O_8 e alumínio, segundo a técnica desenvolvida no "Argonne National Laboratory" por Bergua e colaboradores⁷ e utilizada em um reator de ensaios⁸; e 2) o processo de co-laminação a quente inicialmente e terminando com dura⁹. Naturalmente, em ambas as variantes é importante a etapa de transformação mecânica do lingote ou do conjunto de moldura, por laminação de conjunto montado com a técnica de laminação a frio.

A produção dos "cermets" do núcleo e que irá ser transformado mecanicamente durante o trabalho de laminação do conjunto para permitir a produção de chapas revestidas de forma completa, exigiu estudos detalhados, principalmente das seguintes variáveis: produção do pó de U_3O_8 de concentração natural em U-235, com as propriedades necessárias para a dispersão, a partir de diuranato de amônio; 2) escolha do pó de alumínio e determinação da granulometria mais conveniente; 3) condicionamento da carga, de forma a assegurar a dispersão mais uniforme nos compactados; 4) compactação em matrizes

de aço tratado termicamente para a produção dos "cermets" com as dimensões que permitam ulteriormente a produção das chapas dentro das especificações rígidas estabelecidas; 5) pré-sinterização dos "cermets", visando principalmente aumentar a plasticidade de trabalho a quente durante a fase de solda por difusão quando da laminação do conjunto; e 6) montagem dos "cermets" sinterizados nos conjuntos de moldura para ulterior trabalho de tratamento térmico e mecânico.

As chapas produzidas foram examinadas através de exames metalográficos de amostras cortadas, tanto para exame da dispersão e de eventuais defeitos existentes no núcleo como para a verificação da contiguidade da interface entre o núcleo deformado e o revestimento; através de exames auto-radiográficos, para verificação da homogeneidade da dispersão do núcleo ao longo da chapa; de radiografia, principalmente para evidenciar eventuais irregularidades das extremidades do núcleo, das bordas e do material de revestimento; através de ensaios de empolamento ("blister tests") para mostrar ocasional falta de ligação entre o núcleo e o material de revestimento ou gases residuais retidos no revestimento; e finalmente, por ensaios de corrosão acelerada, para avaliar o comportamento das chapas no reator no que se refere ao material de revestimento e para evidenciar, por análises de ativação da água utilizada no ensaio, eventuais escapes de produtos de corrosão decorrentes de defeitos no revestimento.

Estão sendo fabricados os elementos combustíveis destinados ao reator Argonauta com urânio enriquecido, na ocasião em que este trabalho está sendo redigido. Ulteriormente será publicado, pelo Instituto de Energia Atômica, relatório detalhado de todo o trabalho realizado referente a esses elementos combustíveis. Os elementos combustíveis com urânio natural necessários ao reator e que também serviram como meio de comprovação dos resultados experimentais obtidos, já estão prontos e um deles já foi enviado ao Instituto de Engenharia Nuclear para as verificações de dimensões em face dos espaços nos canais de entrada do reator.

3. ESPECIFICAÇÕES DAS CHAPAS

Dos estudos experimentais realizados e que comprovaram a possibilidade de virem a ser produzidas chapas com maior conteúdo de U-235 do que o especificado no trabalho citado¹, resultou a seguinte especificação final: composição do núcleo: 54,4% U_3O_8 com 19,91% de enriquecimento em U-235 (ou U_3O_8 com a concentração natural em U-235 para dois elementos completos) e 45,6% alumínio em pó; massa total de U_3O_8 por chapa: 124,6 g; massa total de alumínio (do núcleo mais do revestimento) por chapa 216,4 g; massa total

341 g; dimensões finais do núcleo deformado: 585 a 600 mm de comprimento, 68 mm de largura e 1,86 mm de espessura; dimensões finais das chapas prontas: comprimento 610 mm; largura 73 mm e espessura de 2,40 a 2,44 mm. Essas especificações vêm sendo rigidamente seguidas.

4. FABRICAÇÃO DOS "CERMETS"

Materiais utilizados — O óxido de urânio U_3O_8 a 19,91% de enriquecimento em U-235 foi recebido da "United States Atomic Energy Commission" e sua manipulação é feita dentro de glove-boxes seguindo estritamente as regras de segurança e de "contabilidade" recomendadas. Todas as pesagens são feitas em balança Mettler de 0,001 g de sensibilidade colocada dentro da glove-box. O óxido U_3O_8 natural é produzido pela Divisão, por calcinação do diuranato de amônio de pureza nuclear, em mufla elétrica, a 875°C durante 2 horas, em bandejas de ferro fundido com 26% Cr. O pó de alumínio empregado é a fração que passa na peneira de 100 malhas por polegada e foi importado especialmente de "L'Aluminium Français". Sua composição é 0,36% Fe, 0,07% Si, 0,12% Cu, 0,22% Zn e 0,098% Mg.

Os estudos experimentais mostraram que os pós obtidos por calcinação em tempos mais curtos e em temperaturas mais baixas produziam empolamentos nos trabalhos ulteriores de laminação a quente dos conjuntos. Quanto à granulometria do alumínio, foi comprovado que a melhor dispersão quanto à sua homogeneidade era a decorrente do emprêgo da fração cujo diâmetro máximo correspondesse à peneira de 100 malhas.

Condicionamento da carga — A mistura dos constituintes da carga é fase muito importante no processo, de vez que das propriedades do "cermet" irão resultar maiores ou menores dificuldades na operação de transformação mecânica do conjunto nas chapas finais. Os primeiros ensaios de condicionamento foram efetuados em recipientes de plástico polivinílico com bolas de aço temperado. A distribuição irregular do material influenciava desfavoravelmente a ligação entre o "cermet" e o material de revestimento, motivo pelo qual foi necessário estudar as modificações do sistema de mistura. Os melhores resultados foram obtidos com mistura durante 48 horas em recipientes cilíndricos de 3 dm³ de volume útil de material plástico com carga constante de esferas de borracha dura. A abertura das unidades de mistura é feita com grande cuidado, a fim de evitar eventuais perdas de material.

Compactação das cargas — A compactação é feita em matrizes metálicas especialmente cons-

truídas, em prensa hidráulica de 100 t de capacidade. Na fase dos estudos experimentais para o traçado das curvas de influência da pressão sôbre a densidade dos compactados a partir de cargas de teores variáveis de U_3O_8 e de alumínio, foram empregadas, além das matrizes cilíndricas de 10,13 mm e de 22,2 mm de diâmetro para os dados preliminares, matriz que permitia obter placas de 32×64 mm com alturas variáveis (geralmente entre 8 e 14 mm, nessa fase dos trabalhos). Uma vez obtidos todos os dados experimentais, e obtido o coeficiente de alargamento do núcleo durante a laminação até a espessura final das chapas, foram construídas as matrizes para a produção dos núcleos finais, de 65×50 e de 65×100 mm. Para as montagens dos conjuntos de moldura a altura do "cermet" é de 11,4 mm, o que exige pressão específica de 0,54 t/cm², graças à excelente compactabilidade da carga.

A variação da densidade aparente dos compactados com a pressão de compactação para as misturas de 40% U_3O_8 -60% Al a 60% U_3O_8 -40% Al obedece à expressão deduzida experimentalmente

$$\log d = \log a + 0,141 \log p$$

onde d é a densidade aparente, em g/cm³, a uma constante dependente da composição da carga e p a pressão de compactação, em t/cm².

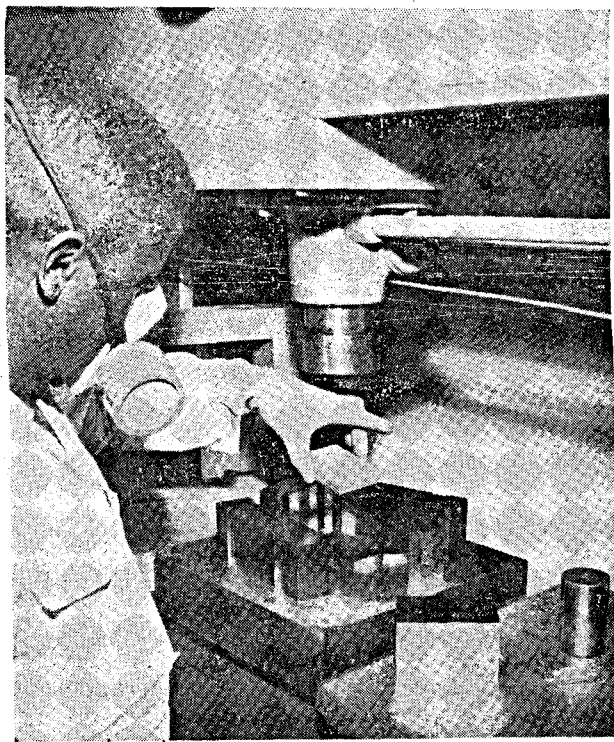


Fig. 2 — Compactação da carga de U_3O_8 -Al e produção de "cermet" de 100×65×11,4 mm em prensa hidráulica de 100 t.

A fig. 2 mostra um compactado de 65×100×11,4 mm ao ser retirado da matriz após a abertura da mesma, na prensa hidráulica de 100 t de capacidade.

Pré-sinterização do "cermet" — Os trabalhos experimentais realizados mostraram que uma etapa importante do processo é a de pré-sinterização do compactado, a fim de adquirir a necessária plasticidade a quente nas operações subsequentes de laminação a quente do conjunto que encerra o "cermet". A pré-sinterização é realizada sob argônio, em forno tubular para operação contínua, à temperatura de 580° C. Em virtude do número relativamente reduzido de "cermets" necessários, a pré-sinterização é realizada em um dos fornos construídos para a operação de redução para produção de UO_2 , não sendo necessário recorrer ao forno contínuo de oito zonas independentes que foi especialmente projetado e construído em São Paulo para a sinterização das pastilhas de UO_2 para o reator "Re-Suco".

A fig. 3 mostra a operação de carregamento de um bote, de projeto especial, contendo 4 "cermets", no forno sob atmosfera de argônio.

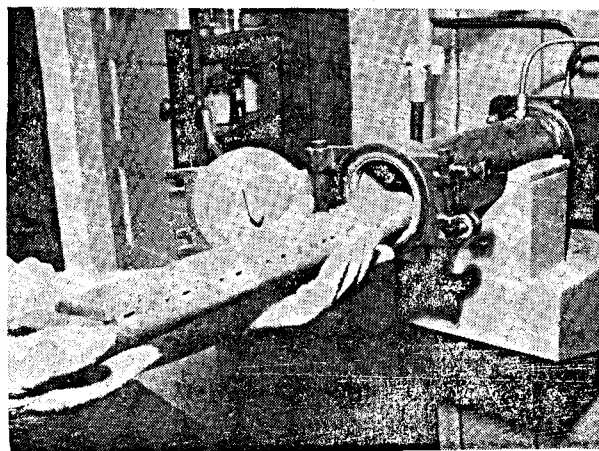


Fig. 3 — Carregamento de um bote com "cermets" no forno contínuo sob atmosfera de argônio para a operação de pré-sinterização.

O aquecimento e o resfriamento têm de ser cuidadosamente controlados para evitar a possibilidade de trincas que determinariam defeitos nas chapas finais. Convém observar que a pré-sinterização, realizada nas condições descritas, não altera apreciavelmente a densidade dos "cermets", mas aumentam consideravelmente sua capacidade de resistir às deformações plásticas durante o trabalho mecânico ulterior dos conjuntos por laminação.

5. MONTAGEM DOS CONJUNTOS DE MOLDURA

Chapas de alumínio — Dos trabalhos experimentais realizados resultaram a determinação das especificações do conjunto de moldura a ser laminado a fim de se produzirem as chapas dentro dos característicos anteriormente definidos.

Tanto a chapa da moldura propriamente dita como as das duas capas são de alumínio recozido 1100, produzido especialmente para o Instituto de Energia Atômica pela Companhia Brasileira de Alumínio, dentro de rígido controle de dimensões, de acabamento, de propriedades mecânicas e de composição. A composição das chapas é a seguinte: 0,37% Fe, 0,092% Zn, 0,034% Si, 0,032% Mn, traços de magnésio e Cu não encontrado.

A usinagem da moldura é feita com grande cuidado no acabamento de forma a garantir que o "cermet" acondicionado entre justo no espaço aberto. Foram realizados diversos estudos experimentais de eliminação do ar residual por evacuação em bomba de vácuo, para isso existindo um orifício que ligava a região do "cermet" à parte da extremidade da moldura. Os resultados obtidos foram erráticos, não compensando o trabalho adicional necessário.

Antes da montagem, as peças constituintes do conjunto são decapadas em soda cáustica e neutralizadas a seguir em ácido nítrico.

Técnica de montagem — O "cermet" pré-sinterizado é previamente enrolado em folha de 0,10 mm de espessura de alumínio recozido, a fim de facilitar a sua inserção no espaço da moldura.

A fig. 4 mostra as partes componentes do conjunto, e, ao lado, uma das chapas prontas, nas dimensões indicadas. A chapa da moldura tem $11,40 \pm 0,1$ mm de espessura e a das capas $2,0 \pm 0,1$ mm. Feita a inserção é o conjunto montado em dispositivo apropriado para a operação subsequente de solda.

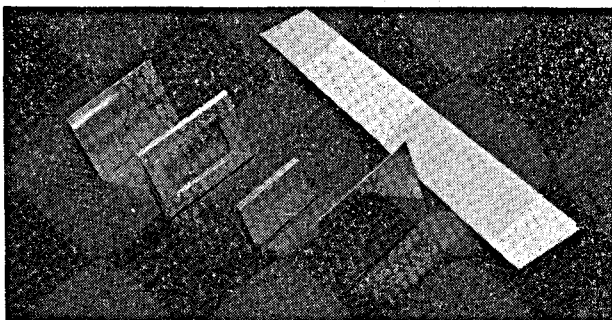


Fig. 4 — Conjunto de componentes de moldura (moldura, capas e "cermet", já acondicionado em chapa de 0,1 mm de alumínio) após a decapagem. Ao lado uma chapa laminada pronta constituinte de um elemento combustível Argonauta com U_3O_8 natural.

Solda do conjunto — O conjunto é em seguida soldado sob arco elétrico em atmosfera de argônio e com eletrodo de tungstênio, sendo depositados oito filêtes de solda, nos espaços entre as capas e a chapa da moldura, nos quatro lados do conjunto (fig. 5). A operação é importante e evita a oxidação das superfícies decapadas durante o aquecimento do conjunto para a laminação.



Fig. 5 — Solda do conjunto de moldura pelo processo "Argon Arc".

6. CALDEAMENTO POR LAMINAÇÃO E LAMINAÇÃO FINAL

Aquecimento inicial e recozimentos intercalados — O processo de moldura baseia-se essencialmente no caldeamento por difusão durante operação plástica a quente, no caso por laminação, do material destinado a constituir o revestimento ("cladding") das faces e o material que confina o núcleo de "cermet", a ser também transformado mecânicamente até dimensões desejadas, por laminação a quente e depois por laminação a frio.

As operações de aquecimento são realizadas em fornos elétricos de mufla, com dispositivos especiais para a localização das placas, à temperatura de 580°C . O aquecimento inicial dura 45 minutos, o correspondente à primeira seqüência de passes a quente 20 minutos, e os subsequentes, 10 minutos. Os recozimentos finais depois da laminação a frio e para a realização do ensaio de empolamento são feitos à mesma temperatura durante 45 minutos.

Laminação — A laminação do conjunto, que tem 19,5 mm de espessura, é feita no laminador de precisão Stannat-Mann, acionado por motor de 20 kW, de velocidade variável, nos cilindros para laminação a quente com mancais resfriados por circulação de água (fig. 6). O laminador pode funcionar como duo ou quádruplo reversível.

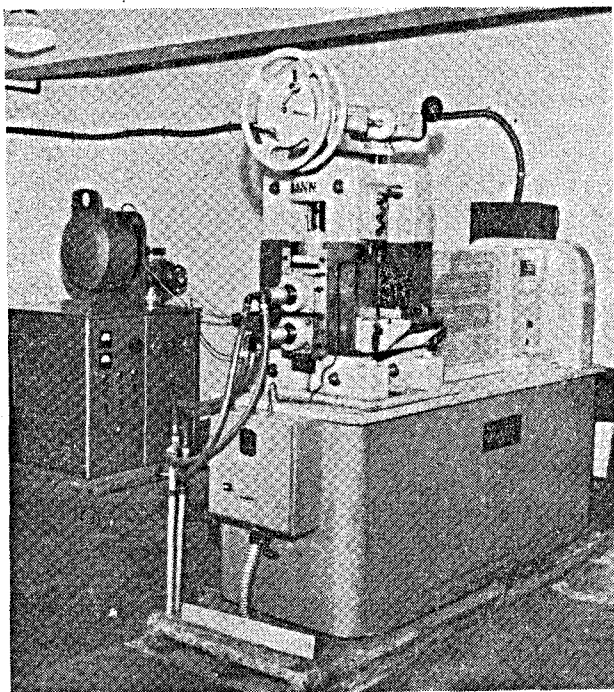


Fig. 6 — Vista do laminador de precisão Stannat-Mann, de 20 kVA, em sua atual instalação provisória. Ao fundo, o forno para fusão e lingotagem sob vácuo.

O caldeamento das capas à moldura depende essencialmente do estado da superfície das chapas de alumínio, da contiguidade inicial, da temperatura e da seqüência de deformações, principalmente, nos primeiros passes. Durante longo período da fase preliminar de trabalhos experimentais os resultados obtidos eram erráticos e freqüentemente o caldeamento era defeituoso em muitas regiões das chapas obtidas.

A seqüência das operações de laminação a quente é a seguinte: laminação a quente com redução de 59%, seguida de recozimento durante 20 minutos, nova laminação a quente com 61% de redução com recozimento de igual duração, resfriamento à temperatura ambiente para corte das extremidades e do excesso de material dos lados, laminação a frio com 30% de redução, seguida de recozimento por 10 minutos e laminação a frio final com 38% de redução chegando-se à faixa de espessuras especificada. As operações a quente permitem chegar à faixa 3,35 a 3,45 mm de espessura.

Feito o ensaio de empolamento durante 45 minutos e uma vez comprovada a inexistência de defeitos dessa categoria, é a chapa radiografada ou auto-radiografada para a localização precisa do núcleo e para os cortes finais, a fim de se obterem as dimensões especificadas. Essas operações são feitas com auxílio de dispositivos especialmente construídos.

7. EXAMES E ENSAIOS DOS MATERIAIS

Além da verificação das dimensões das chapas, não só em seu estado final, como também durante a laminação, e além da verificação da localização do núcleo no decurso da laminação, são realizados sistematicamente os ensaios não destrutivos de determinação da localização do núcleo e de sua homogeneidade, bem como de inexistência de trincas e fissuras, por meio de ensaios de cintilometria, de auto-radiografia e de radiografia por raios X. Dentre em breve contará a Divisão com aparelhamento para ensaios de ultra-sons por eco pulsado, um dos processos que melhor avaliam defeitos na interface núcleo/revestimento.

Durante a fase experimental, foram realizadas muitas dezenas de exames metalográficos de corpos de prova extraídos transversal e longitudinalmente de chapas produzidas, a fim de se estudar o estado da interface, a homogeneidade da distribuição, os defeitos decorrentes da falta de plasticidade do núcleo e as irregularidades da geometria do núcleo, sem se falar dos problemas associados ao caldeamento propriamente dito. A fig. 7 mostra o aspecto de uma das micrografias

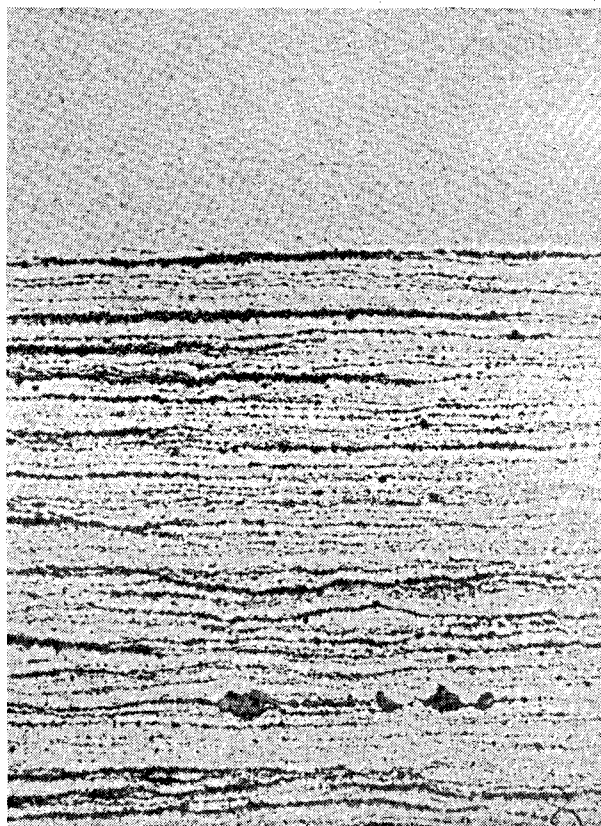


Fig. 7 — Micrografia de secção longitudinal de chapa de espessura total de 0,7 mm, tendo o núcleo constituído por dispersão de 54,4% U_3O_8 e 45,6% Al sido laminado até 0,4 mm de espessura. Evidencia-se a uniformidade da dispersão (500 \times).

obtidas em secção longitudinal de chapa que foi laminada até 0,7 mm de espessura total, e tendo apenas 0,40 mm de espessura de núcleo. Essa micrografia evidencia a inexistência de defeitos na interface entre o material de revestimento e o núcleo e a uniformidade da dispersão de U_2O_5 e alumínio após a laminação a quente.

A radiografia por raios X é utilizada, principalmente, como meio de verificação precisa das extremidades do núcleo em cada chapa e da eventual presença de trincas que possam existir lateralmente em virtude do efeito de cunha provocado pela presença do "cermet" durante a laminação. A fig. 8 mostra o aspecto de uma dessas radiografias, antes de feita a operação final de corte lateral, que deixa apenas 2,5 mm de alumínio em cada lado da chapa acabada. Quanto aos efeitos que acaso ocorram no núcleo, são eles determinados por cintilometria de raios gama por cristal de iodeto de sódio e por autoradiografia, que é processo bastante sensível para indicar os gradientes de concentração do núcleo.

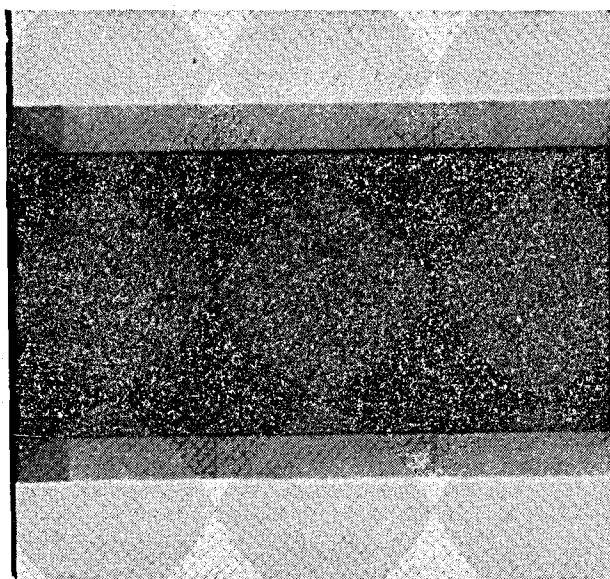


Fig. 8 — Radiografia de uma das chapas antes da operação de corte lateral, evidenciando a uniformidade do "cermet" depois de laminado a cerca de 1,8 mm de espessura.

Finalmente, têm sido efetuados muitos ensaios acelerados de corrosão das chapas de urânio natural em água deionizada e com nível de pureza igual ao da água da piscina do reator IEA-1 do Instituto de Energia Atômica. Conforme é sabido, as concentrações máximas permissíveis de Cl^- e de Cu^{++} na água do reator são de 0,1 e 0,3 ppm, respectivamente, sob pena de poderem causar corrosão acelerada no material de revestimento, o que pode determinar ulterior escape de produtos de fissão. Os ensaios realizados com a duração de cerca de 100 horas em temperaturas variáveis até 70°C indicaram au-

mentos de massa médios da ordem de 0,035 mg/cm²/dia para essa temperatura, o que indica comportamento plenamente satisfatório do alumínio empregado no revestimento das chapas combustíveis.

7. MONTAGEM DOS ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS

Após a decapagem final das chapas depois de acabadas e marcadas (aliás durante todo o processo de fabricação), são feitos os furos através dos quais passam os dois parafusos em liga 75ST6, e colocados os espaçadores de lucita, os quais servem também como elemento de vedação. Os discos puncionados são recuperados, em virtude de seu conteúdo em U-235.

A fig. 9 mostra um dos elementos combustíveis montado e pronto para expedição, bem como três chapas para outro elemento combustível.

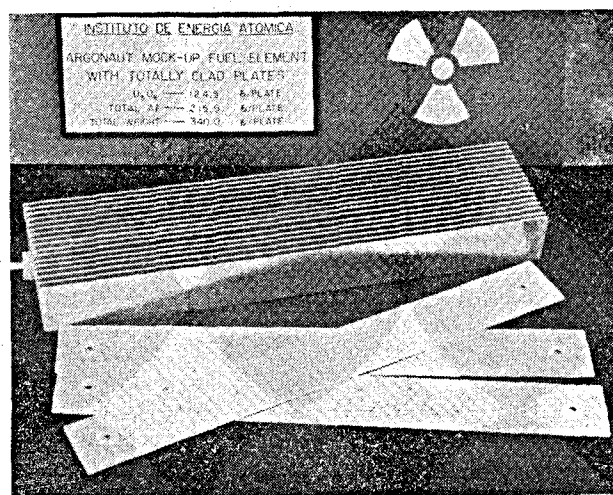


Fig. 9 — Aspecto de um dos elementos combustíveis prontos, com três chapas para outro elemento. O elemento combustível contém 17 chapas com núcleo de 54,4% U_2O_5 -45,6% Al.

Tôdas as peças para a montagem, em liga 75ST6 e em lucita foram produzidas nas oficinas do Instituto de Energia Atômica.

Os autores manifestam seu agradecimento ao Eng.º Dr. Luiz C. Corrêa da Silva e ao Eng.º Paulo Sergio C. Pereira da Silva, respectivamente, Chefe da Divisão de Metalurgia e Chefe da Seção de Metalografia do Instituto de Pesquisas Tecnológicas, pela colaboração recebida nos exames metalográficos das chapas cortadas. Ao Cel. Paulo Lobo Peçanha, Diretor Técnico da Combustol Ltda., exprimem os autores o reconhecimento pela excelente colaboração recebida em numerosas fases do trabalho, a começar pela construção dos fornos de redução e de sinteriza-

ção e de recozimento das chapas. Ressaltam, igualmente, a colaboração prestada pelo Sr. J. Ferreira, Chefe das Oficinas do IEA, através da idéia e construção de numerosos dispositivos necessários à execução dos trabalhos descritos e de fabricação dos elementos combustíveis. Encarecem, por fim, a colaboração recebida dos auxiliares da Divisão que tomaram parte nos trabalhos descritos, Srs. Arioswaldo Azevedo, Jorge Utimi, Ronildo de Menezes, Waldemar Corvello, Walter Borges e Domingos de Oliveira.

8. CONCLUSÕES

1. O processo adotado pela Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica para fabricar os elementos combustíveis destinados ao reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro, GB, e que conterão cerca de 2.142 g de U-235, foi o de co-laminação de "cermet" envolvido em moldura de liga de alumínio 1100.

2. Para o desenvolvimento do processo e dos aparelhos e dispositivos necessários, quase todos projetados e construídos localmente, foram realizados extensos estudos experimentais em que se estudaram as influências de cada uma das principais variáveis de fabricação.

3. Foram descritas em detalhe as principais operações que permitiram a produção das chapas com conteúdo de U_3O_8 e com composição de núcleo bastante superiores às chapas utilizadas nos reatores Argonauta. As chapas produzidas são dotadas de núcleo de 54,4% U_3O_8 e 45,6% Al e contêm 124,6 g de U_3O_8 , 216,4 g de alumínio total e seu peso total é de 341,0 g. As dimensões das chapas são 610 mm de comprimento por 73 mm de largura e espessura entre 2,40 e 2,44 mm. A espessura máxima do revestimento em cada uma das faces é de 0,28 mm.

4. Os valores obtidos na produção dos "cermets" e nas chapas laminadas dentro dos caracteres especificados apresentam boa reprodutibilidade.

5. Os ensaios efetuados durante a fabricação, ou depois de prontas as chapas, indicaram característicos plenamente satisfatórios, não sendo de se prever qualquer comportamento anômalo dos elementos combustíveis no reator.

BIBLIOGRAFIA

1. STURM, W. J. e DAAVETILA, D. A. — Argonaut Reactor Handbook, ANL-6285, janeiro, 1961.
2. SOUZA SANTOS, T. D., BIDWELL, R. M., HAYDT, H. M., FREITAS, C. T. e PEREIRA DA SILVA, P. S. C. — Organização e realizações da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica. ABM — Bol. Ass. Bras. Met., v. 19, nº 77, pgs. 579-586, São Paulo, 1963.
3. BIDWELL, R. M., HAYDT, H. M., FREITAS, C. T. e SOUZA SANTOS, T. D. — Nota preliminar sobre propriedade e estrutura de dispersões U_3O_8 -Al. ABM-Bol. Ass. Bras. Met., v. 20, nº 84, pgs. 567-576, São Paulo, 1964.
4. SOUZA SANTOS, T. D., HAYDT, H. M. e FREITAS, C. T. — Development Studies for Argonaut Fuel Plates Fabrication. Paper nº 37. Study Group Meeting on the Utilization of Research Reactors, International Atomic Energy Agency, São Paulo, 1963 (a ser publicado).
5. SOUZA SANTOS, T. D., HAYDT, H. M. e FREITAS, C. T. — Experimental Studies on the Fabrication of Thin Fuel Plates with U_3O_8 -Al Cermets. (Trabalho apresentado à III Conferência Mundial sobre Aplicações Pacíficas da Energia Atômica, Genebra, agosto-setembro 1964).
6. SOUZA SANTOS, T. D., HAYDT, H. M. e FREITAS, C. T. — Developments in Fuel Fabrication for Research Reactors in Brazil. (Trabalho apresentado à III Conferência Mundial sobre Aplicações Pacíficas da Energia Atômica, Genebra, agosto-setembro 1964).
7. BERGUA, H., FRIDDLE, R., DIAZ, J. e BAIRD, J. — Fabrication of the ISNSE Fuel Element for Low Power Research Reactors. Nuclear Fuel Elements, pgs. 184-192 — Reinhold Publishing Co., New York, 1959.
8. TYTGAT, D. — Étude pour le Réacteur BR 1 d'un Prototype d'un Élément Combustible à l'uranium naturel avec liaison Nickel et Gainage Aluminium. Fuel Element Fabrication. Proc. Symposium Vienna, Maio 10 a 13, 1960, IEAA, v. 2, pgs. 301-310, 1961.
9. SCHUHMAR, J. F. — Fabrication Technique for Various Types of Fuel Elements. Nuclear Fuel Elements, pgs. 48-66. Reinhold Publishing Co., New York, 1959.