

Anacleto Martin de Figueredo (1)

Iris Ferreira (2)

INIS-nmf--7612

Resumo

Cermets de U_3O_8 -Al, de alta densidade e homogeneidade, - contendo entre 5 e 55% em peso de U_3O_8 , foram fabricados através de metalurgia do pó e forjamento rotativo a quente. Amostras foram usinadas dos cermets obtidos e ensaiadas em tração à temperatura ambiente. Os resultados dos ensaios evidenciaram que os cermets U_3O_8 -Al apresentam curvas tensão-deformação, em geral, similares às dos metais. O limite de resistência e o alongamento decrescem rapidamente com o aumento da porcentagem de U_3O_8 no cermet. O limite de resistência é proporcional à mínima área de matriz numa seção transversal do cermet. Esses resultados indicam que a influência da fase cerâmica consiste fundamentalmente no decréscimo da área mínima da matriz que suporta os esforços mecânicos. (continua)

(1) Engenheiro de Minas, Centro de Metalurgia Nuclear; Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares; São Paulo, SP.

(2) Membro da ABM. Doutor em Engenharia Metalúrgica; Gerente da Área de Combustíveis Especiais do Centro de Metalurgia Nuclear; Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares; São Paulo, SP.

I - INTRODUÇÃO

A crescente preocupação com relação aos riscos de proliferação nuclear associados à possibilidade de extravio de urânio altamente enriquecido, tem colocado sérias restrições à comercialização desse combustível no mercado internacional. A pequena disponibilidade de urânio enriquecido para uso em reatores de pesquisa tem estimulado o desenvolvimento de elementos combustíveis com alto teor de urânio, de modo a permitir que este seja de baixo enriquecimento (1,2).

O Centro de Metalurgia Nuclear do IPEN, nesse contexto, tem se dedicado ao desenvolvimento de elementos combustíveis tipo placa, para reatores de pesquisa, visando o possível abastecimento, no futuro, de seu reator nuclear (IEAR-1). Um dos programas em andamento consiste na fabricação de elementos combustíveis tendo como núcleo cermetas obtidos pela dispersão de U_3O_8 em alumínio, que é também o material de revestimento.

O conhecimento das propriedades mecânicas do cermet é de fundamental importância no processo de fabricação por permitir indicações quanto à eficiência do processo no que diz respeito à consolidação e homogeneidade do cermet. Além disso, as propriedades mecânicas do cermet podem contribuir para o estabelecimento dos limites do desempenho seguro do elemento combustível.

O estudo do comportamento mecânico de cermetas nucleares tem sido objeto de vários trabalhos, na maioria concentrados em dispersões de UO_2 em aço inoxidável (3,4,5,6,7,8,12), para as quais alguns modelos simples foram propostos (3,4,6). No caso do sistema U_3O_8 -Al, porém, são escassos os dados publicados sobre comportamento mecânico. Em vista disso, este trabalho foi executado visando inicialmente testar a utilização do forjamen-

to rotativo a quente como técnica de fabricação dos cermets - U_3O_8 -AL com várias concentrações de U_3O_8 e, em seguida, o estudo desses cermets em tração, à temperatura ambiente. Os resultados obtidos nos ensaios de tração são analisados e comparados com modelos propostos.

II - OBTENÇÃO DOS CERMETS E ENSAIOS DE TRAÇÃO

Foram fabricados cermets com composição variando no intervalo de 0 a 55% em peso de U_3O_8 (0 a 28,2% em volume). Na figura 1, tem-se um esquema do processo de fabricação empregado.

O pó de U_3O_8 foi obtido a partir da calcinação do diurenato de amônio (produzido pelo CEQ-IPEN, a partir de urânio natural), ao ar, a $580^\circ C$, por 3 horas. O produto dessa calcinação é U_3O_8 , porém com baixa densidade e granulometria muito fina. O adensamento e granulometria apropriados ⁽⁹⁾ são conseguidos utilizando-se o seguinte procedimento:

- Compactação a frio do U_3O_8 obtido pela calcinação do DUA, em matrizes cilíndricas, de 40 mm de diâmetro e duplo efeito, à uma pressão de 156 MPa.
- Trituração dos compactados e nova compactação, em matrizes de 12 mm de diâmetro, a uma pressão de 347 MPa.
- Sinterização das pastilhas obtidas, ao ar, por 6 h a $1400^\circ C$. Trituração das pastilhas sinterizadas, em almofariz de porcelana.
- Peneiramento e classificação do pó resultante nas frações - 150 + 200 mesh (-105 + 74 μm) e -200 + 270 mesh (-74 + 53 μm).

O pó classificado foi analisado através de difração de raios-X em câmara de Debye-Scherrer, não tendo sido detectada a presença de nenhuma outra fase além do U_3O_8 . A densidade do pó (poroso

vidade aberta) foi medida segundo método da ASTM (11), por picnometria de tolueno, utilizando-se vácuo para a retirada do ar contido nos poros das partículas. O valor médio encontrado foi de $8,33 \text{ g/cm}^3$. A morfologia das partículas desse pó pode ser observada nas micrografias da figura 2.

Na fabricação dos cermets utilizou-se sempre 75% em peso da fração (-150+200 mesh para 25% em peso da fração -200+270 mesh, com o intuito de se aumentar a densidade final do cermet. O pó de U_3O_8 com essa granulometria foi misturado com pó de Al-1100, nas devidas proporções, sendo a mistura homogeneizada a seco por 1 hora, num misturador tipo "mixer-mill" sem o uso de bolas, para evitar a alteração da distribuição granulométrica.

A mistura, a seguir, foi compactada a frio, a uma pressão de 178 MPa, em matriz cilíndrica de duplo efeito, com diâmetro interno de 11,85 mm, sendo a relação altura/diâmetro dos compactados igual a 2.

Após a determinação das densidades a verde (tabela 1), as pastilhas de U_3O_8 -Al foram encerradas em cápsulas de Al, conforme esquematizado na figura 3. As tampas foram soldadas às cápsulas de modo a não vedá-las totalmente e possibilitar, durante o forjamento, o escape dos gases retidos internamente.

As cápsulas prontas foram então forjadas a 500°C em uma máquina de forjamento rotativo marca Torrington, tipo 323, numa série de 4 passes sucessivos. Entre um passe e o seguinte a permanência das peças no forno foi de 15 min, não havendo recozimento após o último passe. Para todas as peças foi dada uma redução de 60 % em área. Feito o forjamento, todas as peças foram radiografadas para verificação do estado dos cermets quanto a trincas e outros defeitos, bem como para sua localização para seccionamento posterior.

As densidades desses cermets a verde e após o forjamento, bem como as respectivas porcentagens em relação à densidade teórica, são indicadas na tabela 1.

A homogeneidade da distribuição do U_3O_8 na matriz revelou ser satisfatória, como pôde ser visto em micrografias de seções polidas, das quais duas são mostradas na figura 4. Na figura 5 pode-se observar uma seção transversal de uma das peças forjadas.

Os ensaios de tração foram executados à temperatura ambiente, em corpos de prova com comprimento útil igual a 18 mm e diâmetro de 3 mm. Utilizou-se uma máquina universal de ensaios marca INSTRON, modelo 1125, com célula de carga de 500 Kgf e velocidade da ponte igual a 0,05 mm/min em todos os ensaios.

RESULTADOS E DISCUSSÕES

Na figura 6 são apresentadas as curvas tensão-deformação de cermets U_3O_8 -Al, obtidas em ensaios de tração realizados à temperatura ambiente. É também incluída na figura a curva tensão-deformação de uma amostra de alumínio puro preparada por metalurgia do pó através de procedimento inteiramente similar ao utilizado na fabricação de cermets. Esses resultados evidenciam que o comportamento em tração dos cermets é semelhante ao observado para os metais puros, isto é, há uma região inicial em que a tensão é proporcional à deformação seguida de outra região na qual a taxa $d\sigma/d\varepsilon$ decresce continuamente até as vizinhanças da ruptura do material. Pode-se notar também dessas curvas, que o limite convencional de escoamento (0,2%) e o limite de resistência decrescem rapidamente com o aumento da porcentagem da fase cerâmica. Na figura 7, os valores do alongamento obtido nos ensaios de tração são apresentados em função da porcentagem de

U_3O_8 no cermet. Esses resultados mostram que o alongamento diminui rapidamente com o acréscimo da concentração de U_3O_8 . Resultados semelhantes foram também descritos por Cope (4,8) em cermets UO_2 -aço inoxidável e Al_2O_3 -Al; McAdam (6), Valovage (7) e Waldrou (5) em UO_2 -aço inoxidável.

Cope analisou os resultados obtidos em cermets de UO_2 -aço inoxidável em termos de um modelo proposto por Eudier para aços de baixa liga sinterizados, obtidos através de metalurgia do pó. Utilizando-se de conceito segundo o qual a variação da resistência à tração de metais porosos (ou cermets) com a porosidade (ou porcentagem da fase cerâmica) é resultado da variação na área efetiva de metal que suporta os esforços impostos ao material e assumindo um arranjo cúbico simples de poros dispersos na matriz metálica, Eudier (4) obteve a seguinte expressão para o limite de resistência à tração desse material:

$$\sigma = \sigma_0 (1 - Kp^{2/3})$$

onde:

σ = Limite de resistência à tração do cermet

σ_0 = Limite de resistência à tração da matriz metálica

$$K = \pi \left(\frac{3}{4\pi}\right)^{2/3} = 1.209$$

p = fração volumétrica da fase cerâmica

No gráfico da figura 8 os valores do limite de resistência obtidos para os cermets de U_3O_8 -Al, normalizados em relação ao limite de resistência da matriz, são apresentados em função da concentração volumétrica de U_3O_8 e comparados com a curva teórica do modelo de Eudier (equação 1). Observa-se que o modelo proposto por Eudier é adequado para a descrição do comportamento em

tração dos cermetes U_3O_8 -Al. Os desvios observados podem ser explicados principalmente pelo fato da homogeneidade do cermet não ser perfeita. Apesar de, em todas as microestruturas analisadas, ter sido observada uma distribuição razoavelmente homogênea de U_3O_8 na matriz, a ocorrência de concentrações localizadas de U_3O_8 no volume da amostra não pode ser de todo excluída. Tais concentrações poderiam acarretar a ruptura precoce do cermet devido à diminuição localizada da seção transversal efetiva.

A concordância com o modelo de Eudier indica que a ligação entre a fase cerâmica e metálica é fraca ou inexistente. A influência da fase cerâmica, de um modo geral, é restrita à diminuição da resistência à tração do cermet em consequência da redução na área da matriz causada pelo incremento do volume de fase cerâmica. Essas considerações são reforçadas pelo gráfico da figura 9 no qual o limite de resistência normalizado (σ/σ_0) é apresentado em função da área mínima da matriz na seção transversal do cermet. Essa área mínima foi calculada em função da concentração volumétrica de U_3O_8 , de acordo com as suposições feitas no modelo usado por Eudier.

CONCLUSÕES

- 1 - Através do forjamento rotativo a quente é possível a obtenção de cermets U_3O_8 -Al com alta densidade e reduzida orientação das partículas de U_3O_8 na direção do forjamento.
- 2 - Os cermets constituídos por partículas de U_3O_8 dispersas em alumínio, apresentam um comportamento essencialmente metálico em tração. A fase cerâmica (U_3O_8) praticamente não contribui para a resistência mecânica desses cermets, cuja estrutura pode ser comparada à de um metal poroso onde a forma dos poros pouco se altera durante a deformação.
- 3 - O limite de resistência à tração é proporcional à mínima área da matriz numa seção transversal do cermet, calculada supondo-se um arranjo cúbico simples de partículas esféricas dispersas numa matriz metálica.
- 4 - A comparação da resistência à tração teórica com a resistência à tração medida dá uma indicação simples e segura da eficiência do processo de fabricação no que diz respeito à distribuição das partículas cerâmicas, densificação da matriz e integridade do elemento combustível sob irradiação.

BIBLIOGRAFIA

1. STAHL, D. - "Low Enrichment Fuel Development Program", Int. Meet of Research Reactor Fuel Designers, Developers and Fabricators, Nov. 9-10, 1978, Argonne Natl. Lab., U.S.A.
- 2 - DEWEZ, P. e DOUMERC, J., *ibid.*

3. PETZOW, G; CLAUSSEN, N.; EXNER, H.E. - "Structure and Properties of Cermets" - ANI. - Trans. 735
4. COPE, L.H. - "The Mechanical Properties of Nuclear Cermets" Metallurgia, 72 (432); 165-77, oct. 1965
5. WALDRON, M.B. - "The Production of cermets Containing a Relatively Large Amount of Dispersed Phase", Powder Metallurgy, 10 (20) 288-306, 1967.
6. McADAM, G.D. - "The Mechanical Properties of Cermets with a Metallic Matrix" - Powder Metallurgy, 10 (20) 307-17, 1967
7. VALOVAGE, W.D. - SIERGIEJ, J.R.A. - "Mechanical Properties of SS-UO₂ Dispersion Fuel Elements" - KAPL-1590 (1959)
8. BUTCHER, R.B.; COPE, L.H. - "The Elongation to Fracture of Unbonded Cermets" - Int. J. Powder Met. 4 (4): 59-57, 1968.
9. ONDRACEK, G.; SCHULZ, B. - "Die Instabile Cermet Kombination Triuranoktaoxid - Aluminium - I - Technologie von U₃O₈-Al Cermets" - Ber. Deutsch Keram. Ges. 45: 509-13, 1968
10. CINTRA, S.H.L.; GENTILE, E.F., NISHIOKA, I., ABRÃO, M.A.S., AMBRÓSIO F^o, F. - "Análise de Variáveis no Processo de Fabricação de Placas de Dispersões Al-U₃O₈" - Metalurgia - ABM, vol. 26, nº 146, Janeiro, p. 31-43 - 1970
11. Annual Book of ASTM Standards, 1979 - Part 45 - Nuclear Standards (699-79 p. 357).

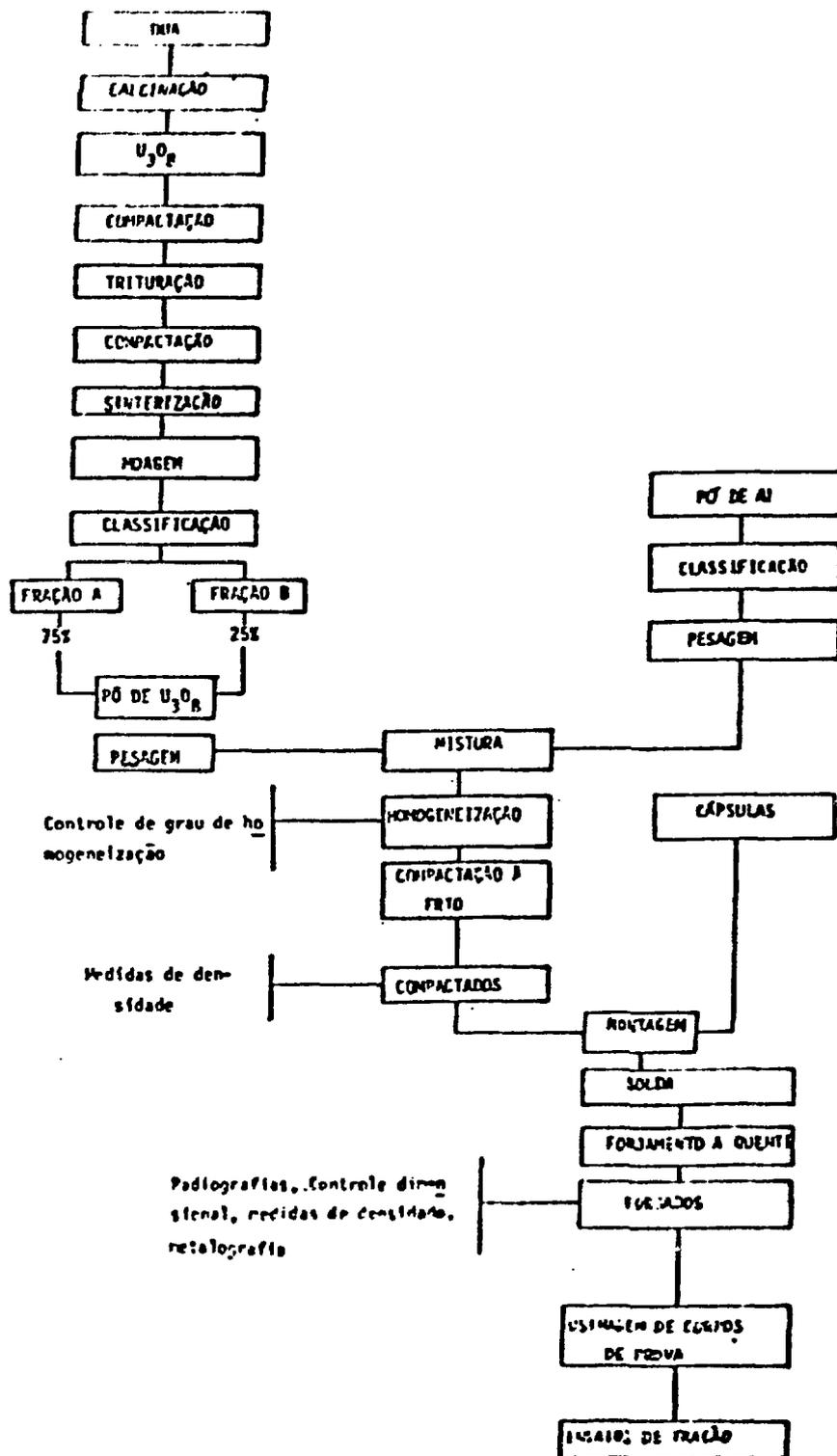


Fig. 1 - Método utilizado para obtenção dos cermets U_3O_8-Al .

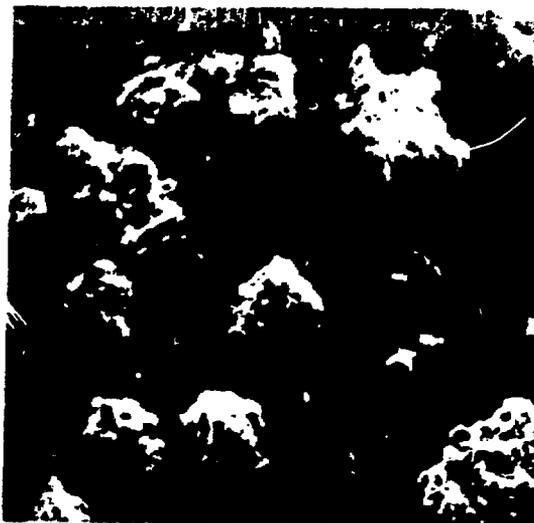


Fig. 2 - Micrografias Eletrônicas de Varredura do pó de U_3O_8 utilizado. Recobrimento com carbono. Aumento 246 X.

% U_3O_8 no Cermet (em peso)	Densidade a verde dos compactados (g/cm^3)	% da densidade teórica	Densidade após o forjamento (g/cm^3)	% da densidade teórica
5	2,502	89,5	2,775	99,3
10	2,603	89,9	2,810	97,0
15	2,658	88,4	2,929	97,4
20	2,940	94,1	3,062	98,0
30	2,957	87,2	3,179	93,8
40	3,245	87,5	3,528	95,1
50	3,427	83,8	3,759	91,9
55	3,597	83,5	3,945	91,5
Pó de Al-1100 compactado e forjado a 500°C	2,332	86,2	2,696	99,7

Tabela I - Densidade a verde, após o Forjamento e respectivas porcentagens em relação à densidade teórica.

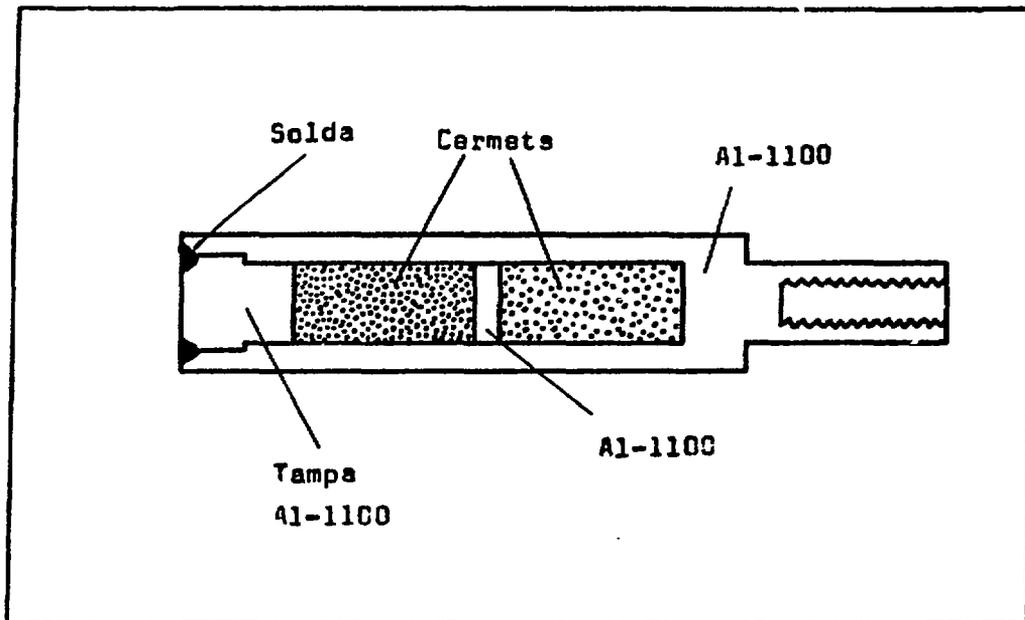
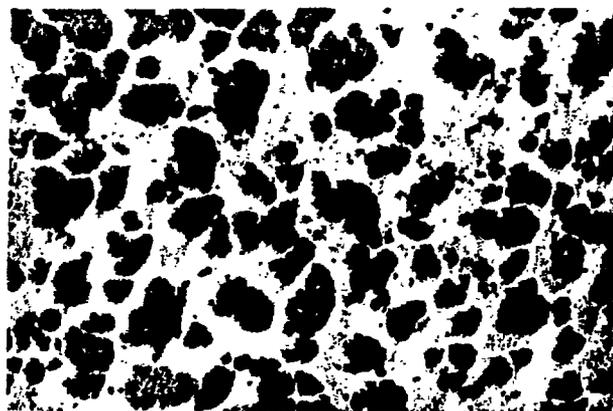
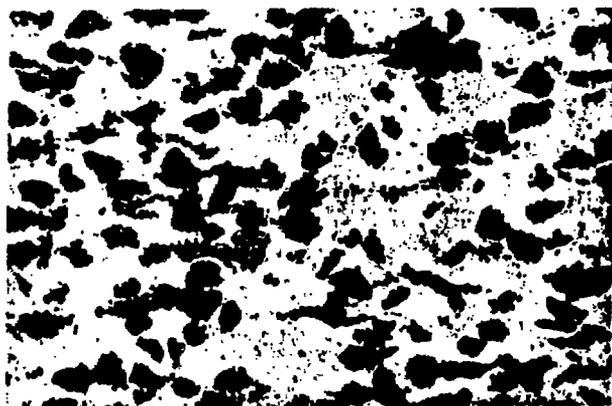


Fig. 3 - Esquema de uma cápsula de alumínio contendo cermet, pronta para ser forjada.



(A)



(B)

Fig. 4

Seções transversal
(A) e longitudinal
(B) de um cermet
com 55% em peso de
 U_3O_8 sem ataque.
Aumento 135 X.

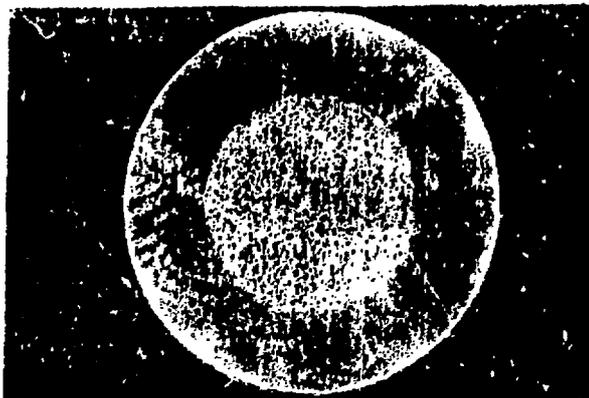


Fig. 5 - Macrografia de seção transversal de uma peça forjada contendo núcleo de cermet com 30% de U_3O_8 . sem ataque. Aumento: 4,8 X.

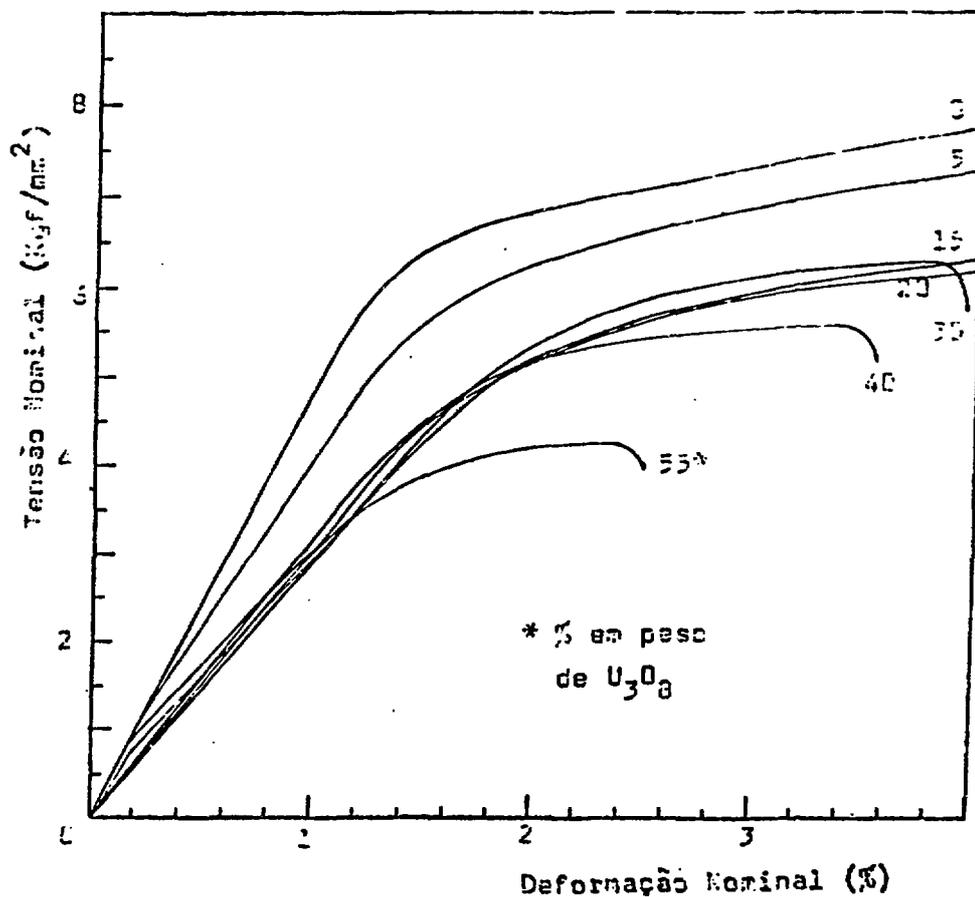


Fig. 6 - Curvas Tensão-deformação obtidas nos ensaios de tração, à temperatura ambiente.

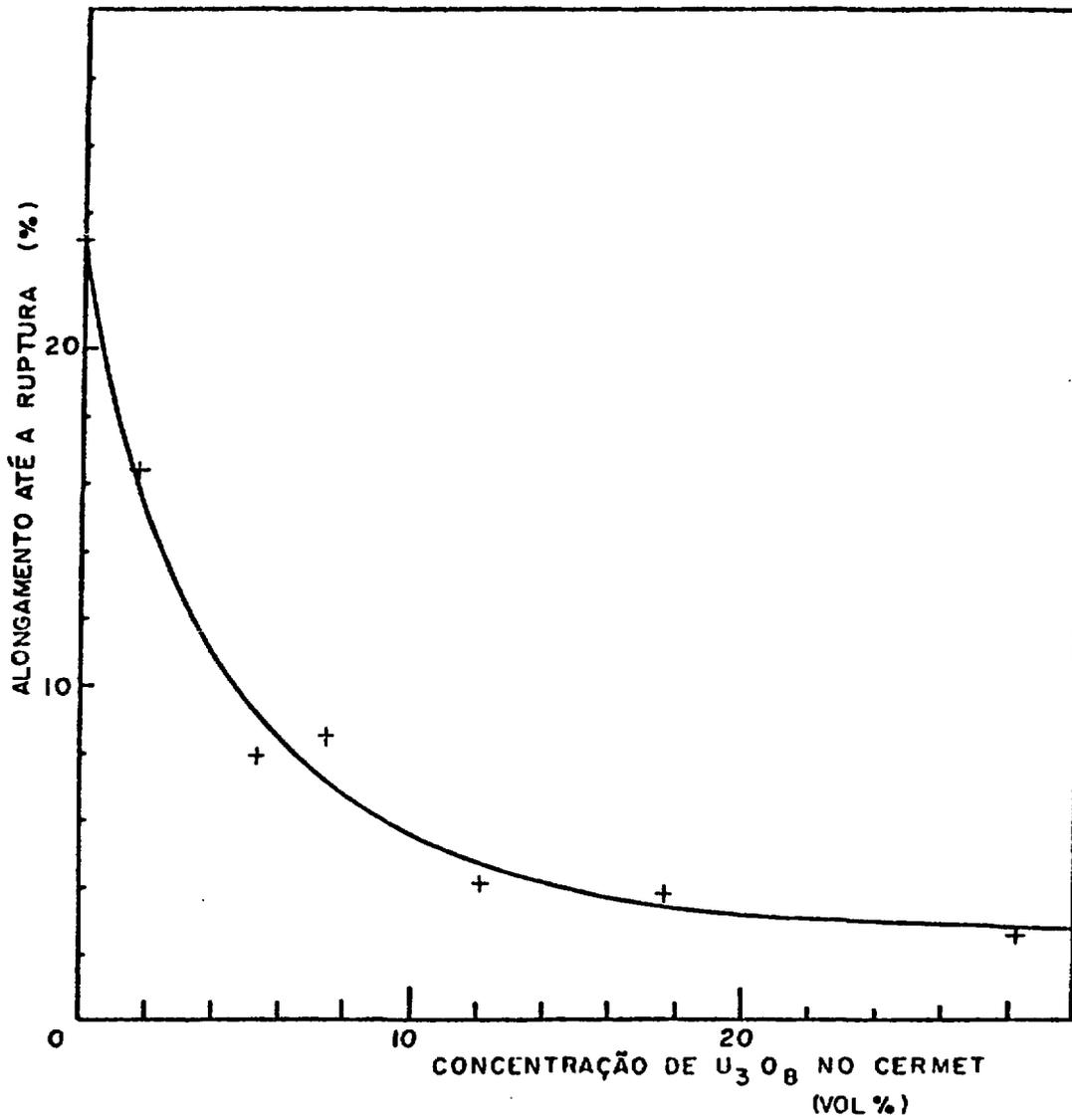


Fig. 7 - Alongamento até a ruptura em função da fração volumétrica de U_3O_8 no cermet.

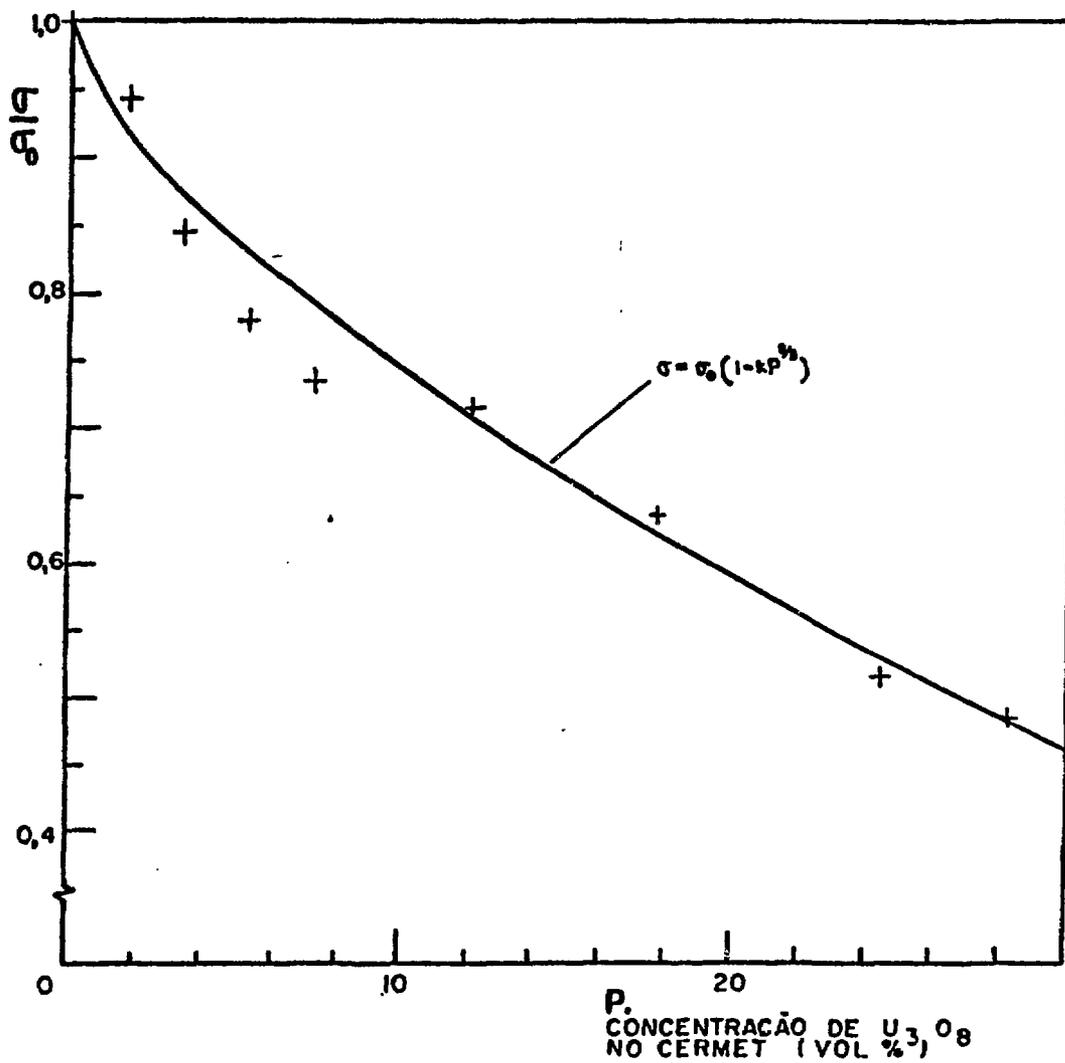


Fig. 8 - Limite de resistência normalizado (σ/σ_0) em função da concentração de U_3O_8 , P (% em volume).

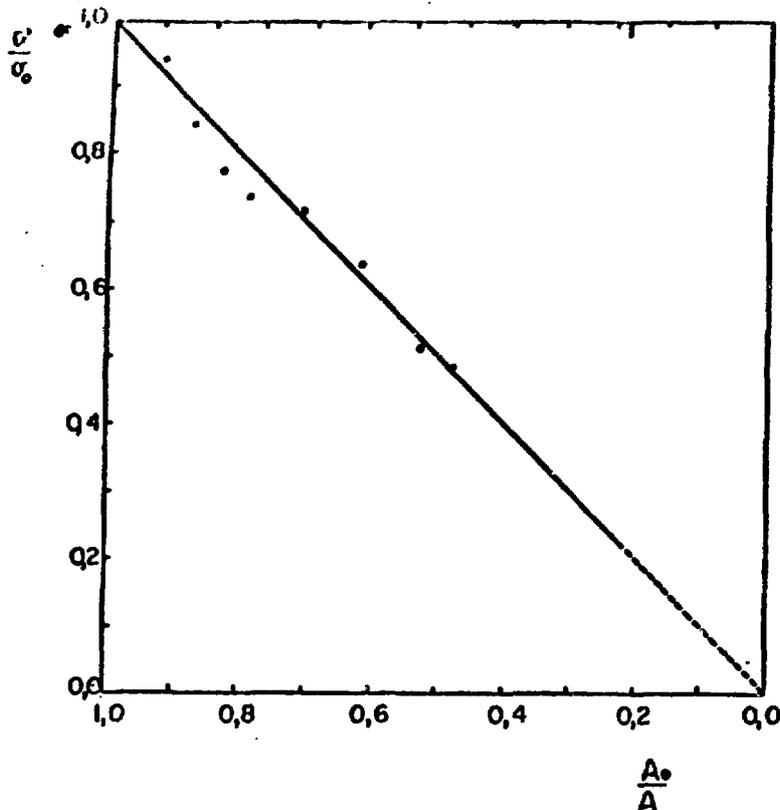


Fig. 9 - Limite de Resistência normalizado em função da área de matriz disponível numa seção transversal do cermet, A_0/A .

ABSTRACT

Homogeneous, high density U_3O_8 -Al cermets, containing between 5 Wt% and 55 Wt% of U_3O_8 were fabricated using hot swaging and powder metallurgy technics. Tensile tests were performed at room temperature on specimens obtained from the cermets fabricated. The results show that the ultimate tensile strength (UTS) and elongation to fracture decrease with increasing U_3O_8 in the cermet. The UTS is shown to be proportional to the minimum matrix load bearing cross-sectional area.

The main influence of an increase in the content of U_3O_8 in the cermet appears to be the decrease in the minimum matrix, load bearing cross-section. (author)

