

FABRICO DE ELEMENTOS DE COMBUSTIVEL NUCLEAR DE UO₂-ZIRCALOY

H. Carvalhinhos

1. INTRODUÇÃO

A eventualidade da montagem em Portugal de uma fábrica de elementos de combustível parece bastante remota nas próximas duas dezenas de anos mesmo tendo em consideração a projectada construção de centrais nucleares a ter lugar dentro deste período. No entanto o considerável número de especificações a que os elementos de combustível tem de obedecer não só no que diz respeito aos materiais constituintes como também aos métodos de fabricação e de controle obrigam-nos, como futuros utilizadores, a aprofundar os nossos conhecimentos sobre esta actividade através de um contacto directo com os problemas e técnicas específicas deste campo da indústria nuclear. Com esta finalidade está o L.F.E.N. a montar uma instalação de produção de pastilhas sinterizadas de UO₂ e de fabricação de varas de combustível que permitirá a formação e o treino dos técnicos que eventualmente sejam necessários para as actividades nucleares nacionais relacionadas com o combustível. Além disso espera-se poder responder a solicitações futuras de produção de varas de combustível de tipos especiais a que uma indústria excessivamente rígida nas suas linhas de fabrico não possa corresponder. Instalações deste tipo e com estas funções são conhecidas no estrangeiro, podendo-se dar, como exemplo típico, o Institutt for Atomenergi de Kjeller na Noruega.

O fabrico de elementos de combustível nuclear, utilizando o UO₂ como material combustível e os zircalloys ou aços inoxidáveis como materiais de revestimento, é constituído por diversas operações, a maioria das quais estão já normalizadas e são adoptadas por uma grande parte dos produtores.

Neste artigo faz-se uma descrição sumária destas diferentes operações considerando o caso de as bainhas serem de Zircaloy.

2. FABRICAÇÃO DAS PASTILHAS DE UO₂

2.1 – CARACTERISTICAS DO PÓ DE UO₂

O método utilizado na fabricação do pó de UO₂ para a produção das pastilhas de combustível sinterizadas é da mais alta importância para a obtenção de um material com as características mais apropriadas a sua utilização no reactor.

O pó de UO₂ deve obedecer a um certo número de especificações que são as seguintes:

1. alta pureza sobretudo no que diz respeito àquelas impurezas que possam afectar a economia neutrónica e a todas aquelas que levam à produção de sinterizados com resistência à fractura diminuída como seja o C. Uma análise típica dum pó aceitável para a utilização é a seguinte (ppm);

B	Ca	Cd	Co	Cr	Cu	F	Fe	Mg	Mn
0,5	traços	10	0,5	5	50	50	100	100	0,5
Mo	Ni	Pb	Sn	V					
1	5	10	traços	5					

Costuma especificar-se não só o conteúdo em Boro mas também de todos aqueles elementos que possam afectar a economia neutrónica do combustível pela explicitação do chamado EBC (teor equivalente de Boro) que tipicamente deve ser inferior a 4 ppm;

2. densidade elevada e perto da teórica (densidade teórica = 10,96g/cm³) de modo a obter sinterizados também com densidade elevada e boa retenção dos gases resultantes da fissão (Xe e Kr);
3. grau de estequiometria elevado para que se reduzam os efeitos destruidores da irradiação e se obtenha um sinterizado com máxima condutividade térmica.
Normalmente exige-se que a razão O/U (oxigénio sobre urânio) seja de 2,00±0,02;
4. tamanho, forma e distribuição de tamanhos das partículas que permita uma compactação apreciável durante a prensagem a frio (70% D.T.) e que portanto reduza as distorções devidas a contracção durante a sinterização;
5. superfície específica elevada que permita uma sinterização mais eficiente.

A fabricação de pós nestas condições tem sido objecto de larga experimentação sendo a finalidade principal obter pós que sejam directamente sinterizáveis. Um dos métodos mais utilizados e que se aproxima deste resultado é o que parte do nitrato de urânio que se faz reagir com amónia até obter o diuranato de amónia (ADU). Provoca-se depois a decomposição ao ar a 300°C deste composto em UO₃ e reduz-se este óxido em hidrogénio até se formar o UO₂.

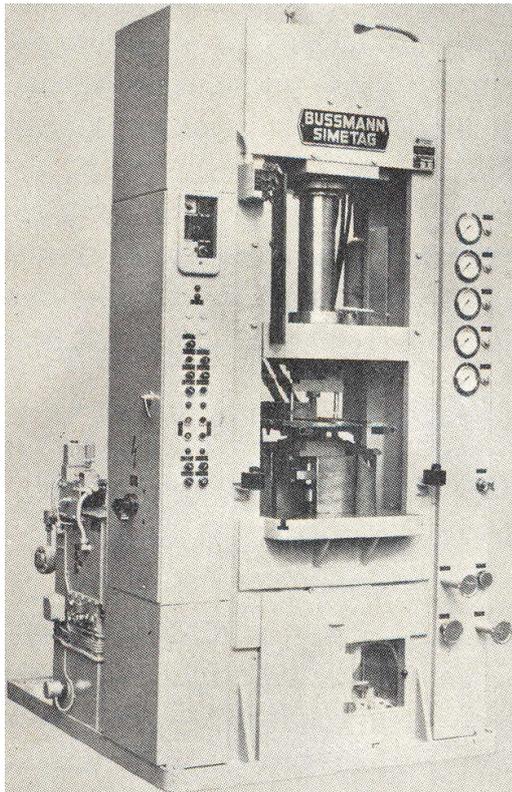


Fig. 1 - Prensa hidráulica automática.

A Nukem fabrica o UO_2 a partir do hexafluoreto de urânio (UF_6) enriquecido. O UF_6 é transformado em diuranato de amónio (ADU) e este é reduzido com H_2 directamente a UO_2 utilizando um leito fluidizado. O pó obtido pode ser prensado e sinterizado imediatamente sem qualquer tratamento prévio, não se utilizando qualquer ligante na operação de prensagem.

2.2 – PREPARAÇÃO DOS PÓS

Como já se referiu há métodos de fabricação que conduzem a pós que são directamente sintetizáveis, isto é, em que os pós não precisam de qualquer tratamento mecânico para que se obtenham pastilhas densas com um mínimo de operações. Outros métodos obrigam, no entanto, a efectuar uma série de operações sobre os pós para que estes atinjam a granulometria e superfície específica necessárias a uma sinterização bem sucedida.

Os pós são pois triturados em moinho de bolas a seco ou húmido até se atingirem granulometrias inferiores a $1\mu m$. Este processamento aumenta a superfície específica dos pós para cerca de $4-5 m^2/g$ mas ao mesmo tempo pode reduzir a fluidez do pó de tal maneira que a alimentação das prensas automáticas se faça com dificuldade e menor reprodutibilidade. Há então que efectuar um pastilhamento prévio.

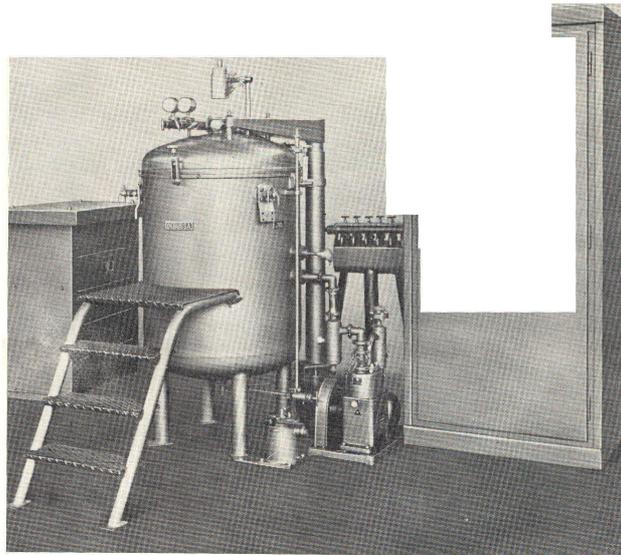


Fig. 2 - Forno de sinterização (tipo descontínuo).

O pó é misturado com um aglomerante orgânico (tylose, cânfora, álcool polivinílico ou álcool polietílico) e é prensado de forma a obter-se uma pastilha que depois é granulada. Obtém-se então um pó que flui mais facilmente e ao qual se mistura um lubrificante se o aglomerante por si só não puder funcionar como tal (os lubrificantes podem ser ácido esteárico, estearato de zinco ou cânfora).

2.3 – PRENSAGEM A FRIO

Na compactação a frio podem utilizar-se dois tipos de prensa: mecânica ou hidráulica. A dificuldade em manter as características do pó obriga a utilizar na maioria dos casos prensas hidráulicas que, trabalhando a pressão constante, permitem obter maior reprodutibilidade na densidade do compactado («greens») (fig. 1).

As prensas são normalmente de acção dupla e a própria matriz pode ser móvel para evitar heterogeneidades na densidade dos compactados. O pó, fluindo livremente, é vazado para dentro das matrizes em quantidades determinadas mais correntemente pelo seu volume ou eventualmente pelo seu peso. As prensas automáticas utilizadas nesta operação podem ter uma velocidade que vai de 5 a 70 pastilhas por minuto e pressões da ordem dos $30-100 kg/mm^2$. As densidades obtidas por esta prensagem vão de 60 a 70% da teórica.

A punção inferior expelle a pastilha em movimento ascendente e uma régua retira a pastilha ao mesmo tempo que o molde é alimentado com nova quantidade de pó.

A matriz é normalmente de carboneto de Tungsténio com uma superfície bem polida. As dimensões das pastilhas variam mas uma razão comprimento/diâmetro de 1 a 1,5 é geralmente mantida.

Razões superiores a estas produzem pastilhas com dimensões longitudinais e transversais muito diferentes que são causa de distorção de forma durante a sinterização.

2.4 – SINTERIZAÇÃO

Se as pastilhas não contém aglomerante e lubrificante, procede-se à sinterização. No caso contrário há que eliminar aqueles compostos. Para isso faz-se um tratamento entre 400 e 500°C em vazio, em hidrogénio húmido ou em CO₂. Depois disso as pastilhas são colocadas em tabuleiros de Mo e introduzidas por processo contínuo ou descontínuo (fig. 2) dentro dum forno de resistência de Mo e em atmosfera redutora de hidrogénio puro e seco para efectuar a sinterização. A sinterização é feita a 1600-1700°C durante 1 a 2 horas e as velocidades de aquecimento e especialmente de arrefecimento são controladas com cuidado para evitar pulverização por desgasificação ou a fissuração das pastilhas por choque térmico. No processo descontínuo o tempo total da operação pode atingir 14-15 horas (por exemplo, 6 horas, para aquecimento, 1 hora para sinterizar e 8 horas para arrefecimento). Com este método conseguem-se obter densidades da ordem de 95-96% da densidade teórica (fig. 3).

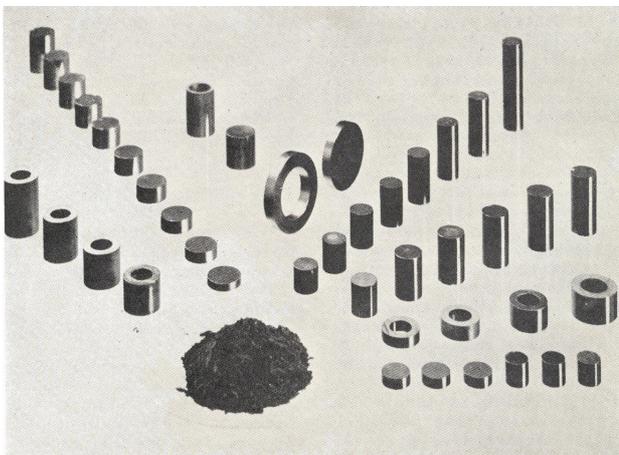


Fig. 3 – Várias formas de sintetizados de UO₂

2.5 – RECTIFICAÇÃO E CONTROLE DAS PASTILHAS

Uma vez fabricadas as pastilhas de UO₂ é necessário efectuar a sua rectificação visto que o aumento da densidade provoca uma contracção que é difícil de controlar e que origina distorções. Para isso utiliza-se a chamada «máquina sem centro» de polir que permite obter diâmetros com tolerâncias da ordem de 0,01 mm.

Presentemente pensa-se que a tolerância no que diz respeito ao paralelismo das duas bases da pastilha é menos delimitadora e na maioria dos casos já não se faz a rectificação das bases.

2.6 - INSPECÇÃO DAS PASTILHAS

A produção de grande número de pastilhas obriga, na inspecção, a utilizar métodos estatísticos de amostragem. No entanto a inspecção visual que tem por objectivo rejeitar as pastilhas com defeitos aparentes tais como falhas, fissuras, esponjosidade, lascas, etc., tem de ser efectuada 100%. Desta primeira escolha é que se retiram as amostras que são sujeitas a testes de qualidade mais precisos. A amostragem faz-se conforme estiver estabelecido no programa de fabrico.

Os testes mais importantes são os seguintes:

- 1) medição da altura e diâmetro;
- 2) determinação da densidade;
- 3) determinação da porosidade (aberta e total);
- 4) determinação da densidade linear (peso por unidade de comprimento de uma pilha de pastilhas);
- 5) determinação da rugosidade (importante para o embainhamento);
- 6) medição da área superficial;
- 7) determinação do teor em C (afecta a resistência à corrosão pela água) e de outros elementos;
- 8) determinação da razão O/U que deve ser igual a $2,00 \pm 0,02$.

3. BAINHAS DE ZIRCALOY

As bainhas utilizadas são de aço inox ou Zircaloy. Trataremos aqui das bainhas de Zircaloy 2 ou 4. A liga Zircaloy-2 contém 1,5% Sn, 0,12% Fe, 0,10% Cr e 0,05 % Ni. A Zircaloy-4 não contém Ni e o Fe sobe a 0,18%. Os tubos com dimensões de 10 a 15 mm de diâmetro interior e espessuras de cerca de 0,7-0,8 mm são cuidadosamente fabricados de modo a apresentar uma textura de deformação resultante de uma compressão axial final. Estes cuidados no fabrico do tubo são impostos pelo efeito que a textura tem no modo de precipitação do hidreto de Zr. Nestas condições os hidretos, resultantes de difusão de H₂ produzido à superfície da bainha por decomposição da água de arrefecimento e oxidação do Zr, precipitam em placas perpendiculares ao raio do tubo (fig. 4). Desta maneira reduz-se o perigo de as tensões devidas à pressão no interior do tubo originarem fissuras que limitam o tempo de vida dos tubos e, por conseguinte, dos elementos de combustível.

Os ensaios de aceitação dos tubos compreendem inspecção visual, detecção de possíveis defeitos ou fissuras à superfície por ultrasons, verificação da constância da espessura da parede também por ultrasons, avaliação da uniformidade do diâmetro interno por ensaios pneumáticos e determinação da flecha do tubo.

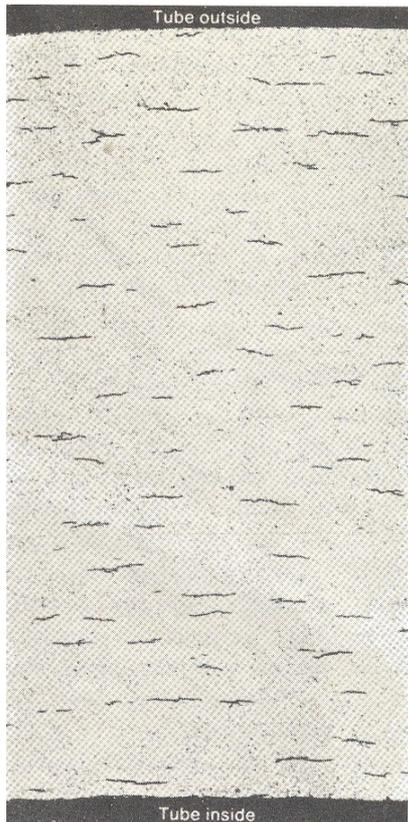


Fig. 4 – Secção transversal da parede de um tubo de Zircaloy 2 apresentando hidretos paralelos à superfície.

4. MONTAGEM DAS VARAS

Uma vez efectuada o desgorduramento e secagem dos tubos, é soldado o primeiro tampão (fig. 5) pelo processo TIG, em câmara fechada contendo argon. O eléctrodo de tungsténio mantém-se estacionário enquanto o tubo roda em frente dele. Normalmente o processo é automático e portanto a velocidade e o número de passagens são ajustados para cada uma das espessuras e diâmetro de tubos.

Os tubos são então colocados na mesa de enchimento com pastilhas. As duas zonas de fabricação, a do UO_2 e a das varas, estão separadas. Através duma janela são passadas as pastilhas que são alinhadas sobre uma calha em V e entram directamente no tubo. Normalmente deixa-se um espaço livre dentro do tubo que serve para armazenar os gases resultantes da fissão (plenun).

Este espaço é preenchido em parte por uma mola de incoloy que, apertada entre o segundo tampão e as pastilhas, por um lado não permite a estas qualquer movimento vibratório que vá erodir a superfície interna do tubo e por outro permite a sua livre expansão térmica. A soldadura do segundo tampão efectua-se agora em atmosfera de hélio. Introduce-se a extremidade aberta do tubo na câmara, faz-se o vazio, introduz-se hélio que também enche o tubo, coloca-se o tampão em posição e efectua-se a soldadura.

Tanto a primeira como a segunda soldadura são radiografadas de modo a detectar quaisquer possíveis chochos ou defeitos. Finalmente faz-se um ensaio de estanquicidade. Os tubos são colocados numa câmara onde se efectua o vazio. Em caso de fuga, o hélio introduzido nos tubos escapa-se e é detectado por um espectrómetro de massa.

5. TRATAMENTO DE OXIDAÇÃO

A última operação que as varas sofrem é a oxidação da superfície. Este tratamento consiste em submeter as varas à acção de vapor de água a $300^{\circ}C$ dentro de autoclaves até a superfície adquirir um filme de óxido negro bem aderente. Além de produzir uma camada protectora resistente à corrosão, esta operação permite averiguar de possíveis defeitos ao longo da superfície externa dos tubos ou nas soldaduras. Estes defeitos são revelados por heterogeneidades no filme de óxido.

Efectuada esta última observação visual, as varas estão prontas a seguirem para as mesas de montagem dos feixes.

6. MONTAGEM DOS FEIXES

Na mesa de montagem estão colocados e alinhados os suportes superior e inferior e os espaçadores. Os espaçadores são fabricados com chapa de Zircaloy e têm a forma de grelhas que mantêm as distâncias entre varas. Estas grelhas podem ser fabricadas por brasagem.

A fricção entre espaçadores e os tubos cria um problema grave em virtude da pequena espessura da parede do tubo. Para evitar esta fricção e conseqüente erosão, pode aplicar-se por brasagem sobre os tubos pequenas lâminas de Zircaloy que protegem o tubo do contacto directo com os espaçadores. Outro processo de evitar esta fricção consiste em enrolar um fio de Zircaloy em torno do tubo. Os suportes superiores e inferiores podem ser de Zircaloy ou aço inoxidável e são tratados ou mecanicamente ou por erosão devida a descarga eléctrica «Spark machining»). A ligação dos segmentos aos suportes é feita ou por soldadura ou por parafusos.

O feixe, depois de montado, é colocado na posição vertical e verificam-se então escrupulosamente todas as dimensões e alinhamento do conjunto. O feixe é de novo posto na posição horizontal e embalado numa caixa de maneira tal que o elemento não sofra qualquer dano durante o seu transporte.

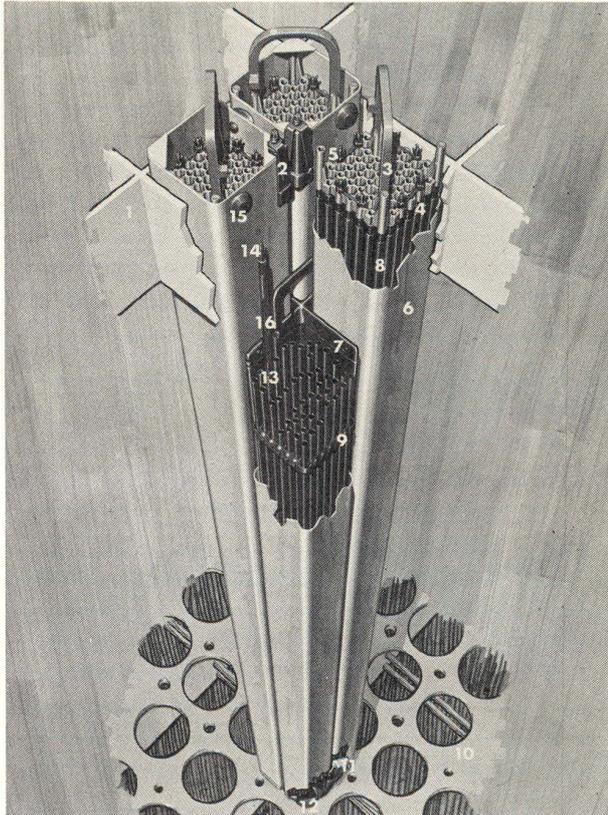


Fig. 5 - Esquema de elementos de combustível GE/BWR mostrando: 3 - suporte superior; 8 - vara de combustível; 9 - espaçador; 11 - suporte inferior; 13 - pastilhas de UO_2 ; 14 - tampa superior; 16 - mola de plenum.

7. CONCLUSÕES

A descrição sumaria aqui apresentada do fabrico de elementos de combustível nuclear permite concluir que esta actividade inclui uma considerável variedade de operações para as quais há necessidade de criar uma apreciável perícia. Os campos que abrangem essas operações compreendem, entre outros, a metalurgia dos pós, a cerâmica, a soldadura, a corrosão e, de maneira geral, a metalurgia. Muito importante, ainda, é o controlo de todas as fases de fabrico que inclui técnicas como a análise por métodos químicos e físicos, a avaliação da qualidade de pós para sinterização e das características dos sinterizados e métodos não destrutivos de inspecção.

Além de ser uma actividade essencial para um melhor equilíbrio de toda uma indústria nuclear futura, a fabricação de elementos de combustível é ainda um potente disseminador de novos processos e de técnicas de vanguarda, algumas das quais de grande importância em campos da tecnologia não especificamente nucleares.

Agradecimento:

Este artigo é publicado com a autorização do Laboratório de Física e Engenharia Nucleares.

Fonte:

In Energia Nuclear, Fórum Atómico Português, Vol. III, Fasc. 10, Junho 1971.