

**OBTENÇÃO DE PEQUENOS BOTÕES DA LIGA UAl<sub>x</sub> NO FORNO  
A ARCO DE ELETRODO NÃO CONSUMÍVEL**

Sadamu Koshimizu, Luis Filipe C.P. de Lima e Ricardo M. Leal Neto  
COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR - CNEN  
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES - IPEN  
Caixa Postal 11049 - Pinheiros  
CEP 05422-970 - São Paulo - Brasil

**RESUMO**

A liga UAl<sub>x</sub> é utilizada na forma dispersa em matriz de alumínio, para fabricação, tanto de combustível nuclear tipo placa com baixo teor de enriquecimento (20% U<sup>235</sup>), como de alvo de irradiação com alto teor de enriquecimento (93% U<sup>235</sup>) para produção de Mo<sup>99</sup>. Para efeito de processamento de placas, seja combustível ou alvo de irradiação, é desejável que a fase UAl<sub>3</sub> seja predominante na liga. Este trabalho apresenta resultados de análise e discute a conveniência de se obter ligas UAl<sub>x</sub> em forma de botões de 10 a 50g, num forno a arco de eletrodo não consumível.

**INTRODUÇÃO**

A liga UAl<sub>x</sub>, mistura de fases intermetálicas (UAl<sub>2</sub>, UAl<sub>3</sub> e UAl<sub>4</sub>), é utilizada na forma dispersa em matriz de alumínio para fabricação, tanto de combustíveis tipo placa como de alvos de irradiação para obtenção de Mo<sup>99</sup>. Em ambos os casos o processo de fabricação das placas é o mesmo e é realizado através da metalurgia do pó [1]. A diferença está no teor de enriquecimento do urânio utilizado na liga, que é baixo para o caso das placas combustíveis (20% U<sup>235</sup>) enquanto que para alvos de irradiação é alto (93% U<sup>235</sup>).

A fase intermetálica mais conveniente seria UAl<sub>2</sub> que permite obter placas com maior fração de urânio por volume. No entanto esta fase apresenta uma alta pirofobicidade, dificultando o processamento de placas [2].

A fase UAl<sub>3</sub> é a que combina melhores propriedades para a fabricação de placas. No entanto a obtenção de uma liga com fase pura UAl<sub>3</sub> é difícil porque esta fase resulta de uma reação peritética, a 1350°C:



Uma outra reação peritética ocorre na presença de alumínio para formar a fase UAl<sub>4</sub>, que é bastante frágil.

Para processamento de placas não é necessário que a liga seja constituída de uma fase pura, pode ser uma mistura de duas ou três fases. Adota-se normalmente uma composição próxima de 74,6% em peso de urânio para assegurar a predominância da fase UAl<sub>3</sub>.

Os objetivos deste trabalho são: (i) fabricar a liga UAl<sub>x</sub> a partir do urânio metálico natural (sem enriquecimento) de alta pureza produzido no IPEN [3], e (ii) avaliar as condições para fabricar, no futuro, ligas com urânio enriquecido, com baixo ou alto teor de U<sup>235</sup>.

**OBTENÇÃO DA LIGA**

As matérias primas utilizadas para confecção das ligas são: urânio metálico natural produzido no IPEN e alumínio comercial 1060. Utilizou-se dois fornos para confeccionar as ligas, um a arco de eletrodo não consumível e outro, de indução a vácuo.

As ligas obtidas no forno a arco têm forma de botões com massa entre 10 e 50g com 25% em peso de alumínio. Para diminuir os efeitos de segregação e assegurar uma melhor homogeneidade da liga é necessário, após cada fusão, virar o botão e refundi-lo. A realização de várias refusões melhora a homogeneidade da liga, mas também pode contaminá-la com impurezas caso não se utilize um gás inerte ultra puro. Neste trabalho o número de refusões foi limitado a dois e três. Independente das análises de composição, o aspecto visual dos

botões com 2 refusões é melhor do que com 3 refusões. O eletrodo não consumível utilizado é de tungstênio toriado. Tanto a fusão como as refusões foram realizadas com pressão de 15 in Hg (5 x 10<sup>4</sup>Pa) de gás argônio comercial.

A fusão no forno de indução a vácuo foi realizada apenas uma vez. A carga total fundida foi de 1031g com 25% em peso de alumínio. Foi utilizado um cadinho de grafita sem revestimento; a carga, após fusão, foi resfriada no próprio cadinho. Como era de se esperar houve reação entre a carga e o cadinho, ficando ambos trincados por causa da contração da carga no resfriamento.

Até agora foi tratada a obtenção da liga UAl<sub>x</sub> a partir da fusão de urânio metálico e alumínio. Foi realizada, no entanto, uma experiência apenas, da fusão da mistura de hidreto de urânio (UH<sub>3</sub>) com alumínio para obtenção de UAl<sub>x</sub>. O pó de UH<sub>3</sub> foi obtido através da hidretação do urânio metálico e o compacto (UH<sub>3</sub> + Al) de aproximadamente 12g foi confeccionado na proporção de 75% de UH<sub>3</sub> e 25% de alumínio, em peso. A fusão do compacto foi realizada no forno a arco nas mesmas condições descritas acima.

As ligas obtidas foram submetidas à análise de composição por espectrometria de energia dispersiva de raios X (EDAX) ou por análise química via úmida (AQVU). A técnica de difração de raios X foi utilizada para avaliar qualitativamente as fases existentes nas ligas.

**RESULTADOS OBTIDOS**

A liga UAl<sub>x</sub> foi obtida através de diferentes métodos; a tabela 1 mostra a composição nominal e a composição determinada, via EDAX ou AQVU. A última coluna da Tabela 1 - Composições nominal e real, e perda de massa das ligas fabricadas

Método de obtenção	Composição nominal % em peso Al	Composição determinada % em peso Al	Perda de massa da liga %
Liga nº 1 Forno a arco 3 refusões	25	21,6 EDAX	6,7
Liga nº 2 Forno de indução	25	22,0 EDAX	16,0
Liga nº 3 Forno a arco 2 refusões	28	27,9 AQVU	4,9
Liga nº 4 Forno a arco 2 refusões	UH <sub>3</sub> : 75 Al : 25	15,5 AQVU	10,8

tabela 1 mostra a média da perda em massa da liga, em porcentagem. No caso das ligas nºs 2 e 4, as perdas indicadas não representam a média porque em ambos os casos, foi realizada uma só experiência.

As composições determinadas para as ligas nºs 1, 2 e 3 estão bem próximas da composição nominal. Em termos de perda de massa, a liga nº 2, obtida no forno de indução, com cadinho de grafita sem proteção, isto é, sem revestimento, foi a que teve pior resultado. Ainda em relação à composição determinada, a liga nº 4 apresentou a maior diferença em relação à composição nominal. Mas deve-se levar em conta que a experiência deste tipo foi realizada apenas uma vez.

A determinação qualitativa das fases existentes através da difração de raios X foi realizada nas ligas nº 3 e 4. A figura 1 mostra o difratograma da liga nº 3. Os picos correspondentes aos planos de reflexão da fase  $UAl_3$  correspondem aos seguintes valores do ângulo  $2\theta$ : 20,8; 29,7; 36,7; 42,5; 47,7; 52,7; 61,5 e 65,6.

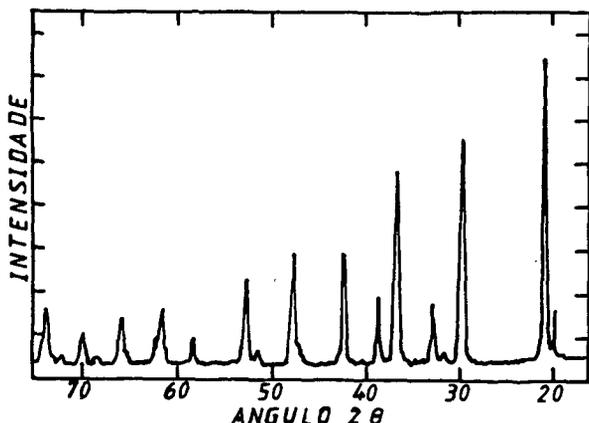


Figura 1 - Difratograma de raios X da liga  $UAl_3$  (nº 3) A intensidade está em unidade arbitrária.

Este difratograma revela nitidamente que há uma predominância da fase  $UAl_3$ .

A figura 2 mostra o difratograma da liga nº 4. Observa-se um aumento considerável do fundo de escala. Neste difratograma são visíveis os picos correspondentes aos planos de reflexão da fase  $UAl_3$  com valores de  $2\theta$  mencionados acima. São visíveis também os picos correspondentes aos planos de reflexão da fase  $UAl_2$ . Estes picos correspondem aos seguintes valores de  $2\theta$ : 20,0; 32,7, 38,7 e 62,0.

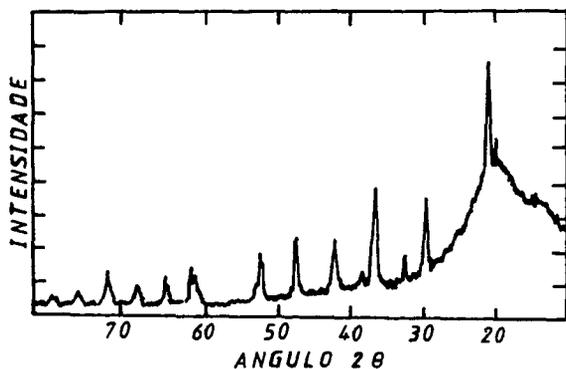


Figura 2 - Difratograma da liga  $UAl_3$  (nº 4) A intensidade está em unidade arbitrária.

Portanto as fases presentes na liga nº 4 são praticamente duas:  $UAl_3$  e  $UAl_2$ .

#### DISCUSSÃO

Os resultados de análise de composição mostraram que a perda em massa é pequena quando a fusão é feita no forno a arco, exceto no caso da liga nº 4 cuja expe-

riência foi realizada apenas uma vez. No caso das ligas nºs 1 e 3 houve uma perda muito pequena do alumínio em relação ao urânio, ao passo que na liga nº 4 a perda de alumínio foi mais significativa.

Os difratogramas de raios X das ligas nºs 3 e 4, confirmam e reforçam os resultados de análise de composição. Na liga nº 3 na qual a composição determinada é de 27,9% de alumínio em peso, o difratograma mostra, qualitativamente, que há uma predominância da fase  $UAl_3$ . Já na liga nº 4 onde a composição determinada é de 15,5% de alumínio em peso, duas fases,  $UAl_3$  e  $UAl_2$ , são claramente distinguíveis no difratograma.

A obtenção de botões de 10 a 50g no forno a arco, de eletrodo não consumível apresentou resultados satisfatórios em relação à composição e fases existentes. Vale ressaltar que mesmo no caso da liga nº 4 onde a perda do alumínio foi significativa, o resultado continua satisfatório. Por outro lado, a conveniência ou não deste método, precisa ser analisada sob o ponto de vista da viabilidade econômica do processo relativamente à utilização da liga.

Certamente a fabricação de  $UAl_x$  com urânio enriquecido a 20% em  $U^{235}$ , para produção de combustíveis IEA-R1, pelo método apresentado aqui, não é conveniente por causa da quantidade do urânio envolvida. Para se ter uma idéia, a quantidade total de urânio enriquecido a 20% na liga  $UAl_x$ , em um elemento combustível é de 900g. Portanto seria necessário então 1,2kg de  $UAl_x$  para fabricação de apenas um elemento combustível. Seria impossível fabricar dezenas e dezenas de pequenos botões para fabricar apenas um elemento combustível. Neste caso seria aconselhável realizar a fusão da liga  $UAl_x$  num forno de indução a vácuo, usando cadinho de grafita adequadamente revestido.

Para o caso da fabricação de alvos de irradiação para produção de  $Mo^{99}$ , com urânio enriquecido a 93% em  $U^{235}$ , a quantidade de urânio envolvida é bem menor. A quantidade de  $U^{235}$  por placa é de 1g, ou seja 1,43g da liga  $UAl_x$ . Supondo que o alvo de irradiação seja constituído por 5 ou 6 placas, a quantidade de  $UAl_x$  seria de 7,15 ou 8,58g por alvo. Assim neste caso, o método de fabricação de pequenos botões no forno a arco de eletrodo não consumível é, certamente, seguro e conveniente para fabricar a liga  $UAl_x$ . Deve-se levar em consideração que o custo do urânio enriquecido é estimado em milhares de dólares por grama, e daí a necessidade de assegurar que as perdas sejam pequenas.

#### CONCLUSÃO

Com relação à obtenção de pequenos botões da liga  $UAl_x$  no forno a arco de eletrodo não consumível, pode-se concluir:

1. é um método seguro, porque não havendo reação entre a carga e o cadinho, garante a minimização da contaminação e da perda em massa, e
2. é um método conveniente, sobretudo quando se requer pequena quantidade da liga, que é o caso da liga  $UAl_x$  para produção de  $Mo^{99}$ .

#### AGRADECIMENTOS

Este trabalho recebeu apoio financeiro parcial do CNPq (Processo nº 403.752/91-4). Os autores agradecem, pelo apoio técnico em difração de raios X, ao Sr. Luis Gallego Martinez e à Sra. Marilene Morelli Serna.

#### REFERÊNCIAS

- 1 NAZARÉ, S. Low Enrichment Dispersion Fuels for Research and Test Reactors. Journal of Nuclear Materials, 124, pp. 14-24, 1984.
- 2 NAZARÉ, S. et alii. Investigations on  $UAl_x$  - Al Dispersion Fuels for High-Flux Reactors. Journal of Nuclear Materials, 56, pp. 251-259, 1975.

- 3 SOARES, M. C. B. V.; KOSHIMIZU, S. Características do Urânio Metálico Bruto de Fusão Produzido no IPEN. Anais do 9<sup>o</sup> CBECIMAT (Congresso Brasileiro de Engenharia e Ciência dos Materiais), Águas de São Pedro Dez. 1990, pp. 869-899.

**ABSTRACT**

The binary U-Al system forms three intermetallic phases, namely  $UAl$ ,  $UAl_3$ , and  $UAl_2$ . These  $UAl_x$  compounds are utilised as dispersants in an aluminium matrix in order to fabricate: (i) plate type fuels for Research and Test Reactors, and (ii) irradiation targets for radioisotope production ( $Mo^{99}$ ) intended for medical applications. In both cases, the process of fabrication becomes more easy when  $UAl_3$  phase is predominant. This paper presents some results, concerning composition and phases, in small buttons of  $UAl_x$  (10 to 50g) produced in a nonconsumable electrode arc furnace. The uranium metal utilised is natural one produced in the IPEN. The convenience of the fabrication of small buttons of  $UAl_x$  is discussed.