

ESTUDO DE FUSÃO DE LIGAS U-Si E U-Al
EM FORNO DE INDUÇÃO

Autor : Daniel Martins Braga

Orientador : Paulo Edson Cardoso

Daniel Martins Braga

ESTUDO DE FUSÃO DE LIGAS U-Si E U-Al EM FORNO DE INDUÇÃO

Dissertação apresentada ao Curso de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares da Universidade Federal de Minas Gerais, como requisito parcial à obtenção do título de Mestre em Ciências [M.Sc.]

Área de concentração: Energia Nuclear

Orientador: M. Sc. Paulo Edson Cardoso

Belo Horizonte

Escola de Engenharia da UFMG

25/06/1998



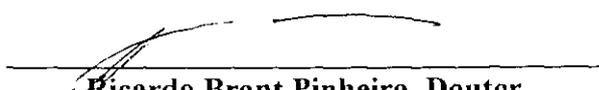
DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA NUCLEAR
CURSO DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES

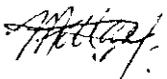
TÍTULO DA DISSERTAÇÃO:

“ESTUDO DE FUSÃO DE LIGAS U-Si e U-Al EM FORNO DE INDUÇÃO”

ALUNO : *DANIEL MARTINS BRAGA*

Dissertação defendida e aprovada pela Comissão Examinadora constituída por:


Ricardo Brant Pinheiro, Doutor


Waldemar Augusto de Almeida Macedo, Doutor


Wilmar Barbosa Ferraz, Mestre

ORIENTADOR:


Paulo Edson Cardoso, Mestre

Belo Horizonte, 25 de junho de 1998

Área de Concentração: Energia Nuclear

Trabalho realizado no Centro de Desenvolvimento
da Tecnologia Nuclear - CDTN.
Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN.
Belo Horizonte - MG

Dedico este trabalho à minha esposa Eudir
e a meus filhos Renato
Rachel
Rafael

AGRADECIMENTOS

Agradeço sinceramente às seguintes pessoas:

Ao M.Sc. Paulo Edson Cardoso, pela orientação segura e dedicada;

Ao M.Sc. Eduardo Gomes da Silva, pelo incentivo, apoio e discussão de todas as etapas do trabalho;

Ao Técnico João Bosco de Paula, pelo apoio na execução dos ensaios;

Ao M.Sc. Clécio Campi Murta, pelos difratogramas de todas as etapas do trabalho;

À Química Marta Maria Avelar, pelas análises de urânio realizadas;

Ao Engenheiro Roberto P. G. M. Pellacani, pelas análises de carbono;

Ao Técnico Renato César Santos Furtado, pelas análises por fluorescência de raios x;

Ao Técnico Oliêne dos Reis Fagundes, pelas análises químicas;

Ao Técnico João Bosco Guedes, pelas análises químicas;

Ao Técnico Milton Batista Franco, pelas análises químicas;

À Bibliotecária M.Sc. Lenira Lúcia Santos Ferreira, pela presteza do atendimento na documentação técnica;

Ao M.Sc. Pedro A. D. P. L. L. Moreira, pela leitura e críticas valiosas ao trabalho;

Ao M.Sc. José Lúcio Terra, pela leitura e críticas valiosas ao trabalho;

Aos colegas da CTI, pelo incentivo e apoio;

À secretária Maria das Graças Pinho, pelo auxílio na solução de problemas relacionados à digitação;

Ao Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear, na pessoa do seu superintendente;

Ao Curso de Ciências e Técnicas Nucleares, na pessoa do seu coordenador.

SUMÁRIO

1.0	INTRODUÇÃO.....	1
2.0	REVISÃO DA LITERATURA.....	3
2.1	COMBUSTÍVEIS NUCLEARES PARA REATORES DE PESQUISA.....	3
2.1.1	Urânio metálico.....	5
2.1.2	Ligas de urânio.....	9
2.1.2.1	Ligas urânio-carbono.....	10
2.1.2.2	Ligas urânio-alumínio.....	11
2.1.2.3	Ligas urânio-silício.....	14
2.1.3	Combustíveis do tipo placa.....	17
2.2	PRODUÇÃO DE LIGAS U-Si.....	19
2.2.1	Silicetos.....	19
2.2.2	Produção de silicetos de urânio.....	20
2.3	PRODUÇÃO DE LIGAS U-Al.....	21
2.3.1	Obtenção do composto UAl_x por redução-destilação do UF_4 com alumínio.....	21
2.3.2	Síntese do UAl_x por combustão.....	22
2.3.3	Fusão em forno a arco de eletrodo não consumível.....	22
2.4	FUSÃO DE LIGAS EM FORNO DE INDUÇÃO.....	22
2.4.1	Introdução.....	22
2.4.2	Fusão de ligas de urânio em forno de indução.....	23
3.0	PARTE EXPERIMENTAL.....	26
3.1	EQUIPAMENTO.....	26
3.1.1	Forno.....	26
3.1.2	Fonte.....	27
3.1.3	Bobina.....	28
3.1.4	Camisa.....	28
3.1.5	Cadinho.....	28
3.1.6	Lingoteira.....	29

3.2	MATERIAIS.....	29
3.3	METODOLOGIA.....	30
3.3.1	Revestimento do cadinho de grafita.....	31
3.3.2	Montagem usada nas fusões.....	31
3.3.3	Condições usadas nas fusões das ligas U-Si e U-Al.....	32
4.0	RESULTADOS.....	34
4.1	RESULTADOS OBTIDOS NAS FUSÕES DAS LIGAS U-Si.....	34
4.1.1	Rendimento do processo.....	35
4.1.2	Difração de raios x.....	35
4.1.3	Análise química.....	36
4.2	RESULTADOS OBTIDOS NAS FUSÕES DAS LIGAS U-Al.....	38
4.2.1	Rendimento do processo.....	39
4.2.2	Difração de raios x.....	39
4.2.3	Análise química.....	40
5.0	DISCUSSÃO DOS RESULTADOS.....	42
5.1	LIGA U-Si.....	42
5.2	LIGA U-Al.....	43
6.0	CONCLUSÕES.....	45
7.0	SUGESTÕES.....	46
8.0	REFERÊNCIAS.....	47

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

Argonaut	Argonne's Nuclear Assembly for University Training.
CDTN	Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear.
CNEN	Comissão Nacional de Energia Nuclear.
CNPq	Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico.
CT1	Supervisão de Materiais e Combustível Nuclear do CDTN.
HEU	High Enrichment Uranium.
IEN	Instituto de Engenharia Nuclear.
IPEN	Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
IPR	Instituto de Pesquisas Radioativas.
LEU	Low Enrichment Uranium.
MTR	Material Testing Reactor.
SHS	Self-Propagating High-Temperature Synthesis.
TRIGA	Training Reserch Isotopes General Atomic reactor.
VIM	Vacuum Induction Melting.

LISTA DE FIGURAS

Figura 2.1	Modelos das modificações cristalinas do urânio.-----	8
Figura 2.2	Desenho esquemático da rede cristalina da fase U_{α} .-----	8
Figura 2.3	Orientação preferencial em uma barra de urânio metálico, como efeito de uma deformação mecânica.-----	9
Figura 2.4	Diagrama de equilíbrio de fases urânio – carbono.-----	11
Figura 2.5	Diagrama de equilíbrio de fases urânio – alumínio.-----	13
Figura 2.6	Diagrama de equilíbrio de fases urânio – silício.-----	16
Figura 2.7	Concentração de urânio em uma dispersão como uma função da concentração da fase dispersa.-----	19
Figura 3.1	Forno de indução Leibold-Heraeus, modelo IW-7P.-----	27
Figura 3.2	Fonte de média frequência marca EMA, modelo MFAS.-----	28
Figura 3.3	Vista interna da câmara do forno de indução Leibold-Heraeus, modelo IW-7P, modificada.-----	29
Figura 4.1	Lingote U-Si da 5ª corrida.-----	34
Figura 4.2	Lingote U-Si da 6ª corrida.-----	34
Figura 4.3	Difratograma de uma amostra da liga U-Si proveniente da corrida número 7.-----	36
Figura 4.4	Lingote U-Al da 7ª corrida.-----	38
Figura 4.5	Lingote U-Al da 11ª corrida.-----	38
Figura 4.6	Difratograma de uma amostra da liga U-Al proveniente da corrida número 19.-----	40

LISTA DE TABELAS

Tabela 2.1	Valores da massa crítica do urânio em função do enriquecimento em ^{235}U .-----	4
Tabela 2.2	Dados cristalográficos das fases do urânio.-----	7
Tabela 2.3	Coefficientes de expansão térmica linear do U_α .-----	7
Tabela 2.4	Solubilidade do carbono em urânio líquido.-----	11
Tabela 2.5	Estruturas cristalinas das fases do sistema U-Al.-----	14
Tabela 2.6	Parâmetros estruturais e propriedades físicas dos silicetos de urânio.-----	17
Tabela 2.7	Densidade e teor de urânio de alguns combustíveis.-----	18
Tabela 3.1	Impurezas presentes nos materiais de partida.-----	30
Tabela 3.2	Teor de impureza presente no silício.-----	30
Tabela 3.3	Condições para as fusões das ligas U-Si.-----	32
Tabela 3.4	Condições para as fusões das ligas U-Al.-----	33
Tabela 3.5	Condições para as fusões complementares das ligas U-Al.-----	33
Tabela 4.1	Condições usadas nas fusões das ligas U-Si.-----	35
Tabela 4.2	Teores de urânio e silício nas ligas U-Si.-----	36
Tabela 4.3	Teores de urânio e silício presentes em uma amostra proveniente da mistura das corridas 1 a 4 da liga U-Si.-----	37
Tabela 4.4	Teor de carbono nas ligas U-Si.-----	37
Tabela 4.5	Teores de impurezas em uma amostra da liga U-Si da 5ª corrida.-	38
Tabela 4.6	Condições usadas nas fusões das ligas U-Al.-----	39
Tabela 4.7	Teores de urânio e alumínio nas ligas U-Al.-----	40
Tabela 4.8	Teor de carbono nas ligas U-Al.-----	41
Tabela 4.9	Teores de impurezas em uma amostra da liga U-Al retirada da 15ª corrida.-----	41

RESUMO

Nesta dissertação, é estudado o processo de fusão das ligas U-Si e U-Al, utilizando para isso um forno de indução visando obter as fases U_3Si_2 e UAl_3 . É feita, inicialmente, uma revisão a respeito de combustíveis nucleares para reatores de pesquisa, com o objetivo de mostrar onde estas ligas são utilizadas, comparando-as com outros combustíveis nucleares, tais como as ligas U-Fe, U-Si-Al, e mesmo urânio metálico. É feito, também, um resumo dos diversos modos de obtenção das ligas U_3Si_2 e UAl_3 , a fim de conseguir dados com os quais se possa comparar o processo aqui estudado. São descritos o equipamento utilizado na fusão das ligas, a metodologia empregada para obtenção das fases U_3Si_2 e UAl_3 e os cuidados necessários para evitar que estas ligas sejam contaminadas durante o processo de fusão. Os lingotes obtidos foram caracterizados através de análise química, para dosar os teores dos elementos de liga e das impurezas, e difração de raios x, para determinação das fases presentes.

Ficou comprovado que, com o processo de obtenção de ligas aqui utilizado, consegue-se obter as ligas U_3Si_2 e UAl_3 com um nível de pureza dentro das especificações encontradas na literatura, sem a presença de fases vizinhas, e em quantidade suficiente para se produzir um elemento combustível do reator IEA-R1 em cada fusão.

SUMMARY

In this dissertation the process of fusion of the U-Si and U-Al alloys, using an induction furnace, is studied with objective of obtaining U_3Si_2 and UAl_3 alloys. At first, an overview concerning the nuclear fuels for research reactors is done, with the purpose to show where these alloys are used. A comparison with other nuclear fuels like U-Fe and U-Si-Al alloys and uranium metal is also done. A summary of the several ways of obtaining the U_3Si_2 and UAl_x alloys is presented, in order to get data for comparison with this process. The Equipment, methodology used to obtain U_3Si_2 and UAl_x alloys and the carefulness needed to avoid contamination of the alloys, are described. These alloys were characterized by chemistry analysis, in order to obtain concentration of elements and impurities, and by x-ray diffraction, with the purpose of showing the phases.

It has been proved that with this process it is possible to obtain the alloys U_3Si_2 and UAl_3 with a level of impurity according to the specifications found in the literature, without adjacent phases, and in a quantity enough to produce a fuel element, for IEA-R1, in each fusion.

1.0 INTRODUÇÃO.

O interesse do Brasil pela energia nuclear remonta à década de 50, quando os esforços do almirante Álvaro Alberto resultaram na criação do CNPq e da CNEN, culminando com a inauguração do Reator de Pesquisas IEA-R1, em 16 de outubro de 1957. Projetado e construído pela empresa americana Babcock & Wilcox, o reator IEA-R1, do tipo piscina, encontra-se instalado no IPEN, sendo o responsável, no Brasil, pela produção de radioisótopos para aplicações na indústria, medicina e agricultura, e representando para o País uma importante fonte de economia de divisas com importação [1].

No momento, o IPEN está empenhado em ampliar a sua capacidade e flexibilidade na produção de radioisótopos, destacando-se o interesse na obtenção do isótopo tecnécio-99, que serve para a marcação de compostos usados em medicina nuclear, para visualização do rim, cérebro, fígado, pulmão e esqueleto [2]. Esta ampliação implica no aumento da potência do reator dos atuais 2 MW para 5 MW. O aumento na potência também permitirá uma maior versatilidade do reator na execução de pesquisas envolvendo testes de materiais, análise por ativação neutrônica, pesquisas físicas e de difração de nêutrons [3].

Tendo em vista este aumento na potência do reator IEA-R1, foi elaborado, no CDTN, um plano de trabalho com o objetivo de cooperar com o IPEN na obtenção do combustível usado nesse reator. Assim, iniciamos estudos visando a obtenção de ligas metálicas à base de urânio, que são usadas como combustível em reatores nucleares de pesquisa.

Neste trabalho, eminentemente experimental, estudamos o processo de fusão das ligas U-Si e U-Al com o objetivo de produzir as fases U_3Si_2 e UAl_3 . O processo utilizado foi o de fusão em forno de indução, usando-se cadinho de grafita e sob atmosfera de argônio.

A fase U_3Si_2 será utilizada, pelo IPEN, na fabricação dos futuros elementos combustíveis do tipo placa para o reator IEA-R1, e a fase UAl_3 , usando urânio enriquecido em ^{235}U da ordem de 90% [24], será utilizado na fabricação de alvos de irradiação para a produção de radioisótopos [23]

Para a realização deste trabalho foi necessário fazer uma série de adaptações na câmara do forno de indução, existente no Laboratório de Fusão de Ligas do CDTN, e, também, desenvolver um processo de revestimento das paredes internas do cadinho de grafita utilizado, de modo a impedir ou minimizar a contaminação com carbono das ligas aqui preparadas e caracterizadas.

As ligas obtidas foram caracterizadas usando-se difração de raios x e análise química, para identificar as fases presentes e determinar as impurezas que podem contaminar as ligas durante o processamento.

2.0 REVISÃO DA LITERATURA.

2.1 COMBUSTÍVEIS NUCLEARES PARA REATORES DE PESQUISA

Os reatores de pesquisas e testes de materiais têm sido projetados e construídos para produzir um fluxo de nêutrons uniforme e, em geral, acima de 10^{14} $n/cm^2.s$. Para a produção de elementos transurânicos, bem como para experimentos na área da física de nêutrons, são requeridos fluxos de nêutrons desta ordem. Estes fluxos podem ser obtidos aumentando-se a concentração do combustível no elemento combustível ou o enriquecimento do urânio no isótopo ^{235}U [4]. Entretanto, estes fatores provocam o aumento da temperatura do combustível durante sua queima, tornando obrigatório o uso de elementos combustíveis do tipo placas finas, nos quais o combustível está disperso em uma matriz metálica, facilitando assim o seu resfriamento [5].

Nos primeiros reatores, construídos nos anos 50 e 60, foram empregados combustíveis onde se usava urânio com enriquecimento da ordem de 90 a 93 % em peso de ^{235}U [3]. Os elementos combustíveis, do tipo placa, consistiam geralmente de uma dispersão de UAl_x ou U_3O_8 em uma matriz de alumínio em pó, e com a tecnologia existente na época, foram fabricados e comercializados elementos combustíveis que continham até $1,7$ gU/cm^3 [6].

Nos anos 70, face aos riscos de proliferação de armas nucleares, restringiu-se mundialmente o fornecimento de urânio altamente enriquecido. Essa limitação foi imposta para evitar o desvio de material físsil com a intenção de fabricar armas nucleares [7], visto que se necessita de uma quantidade muito pequena de urânio, com alto enriquecimento, para se atingir a criticalidade. Conforme pode ser visto na Tabela 2.1 [8], a massa crítica do urânio enriquecido a 90 % em ^{235}U , em solução aquosa, é menor que $1,0$ kg . Para o urânio com 3 % de enriquecimento, sob as mesmas condições, a massa crítica é superior a 100 kg . A partir do estabelecimento desta restrição ao fornecimento de urânio enriquecido, houve a necessidade de se optar pelo emprego de urânio com enriquecimento da ordem de 20 % em peso de ^{235}U , na fabricação dos elementos combustíveis para reatores de pesquisa [3]. Esta limitação levou também à implantação de programas de desenvolvimento de novos combustíveis em diversos países. O objetivo final destes programas foi desenvolver, qualificar e comercializar combustíveis que pudessem permitir o uso de urânio com baixo enriquecimento, sem perdas significantes na performance, segurança e custos de operação dos reatores existentes [6,7].

As implicações decorrentes destes programas foram:

- 1º) Aumento do conteúdo de urânio nos elementos combustíveis usuais para níveis práticos maiores ($2,3 \text{ gU/cm}^3$ para a dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$. e $3,2 \text{ gU/cm}^3$ para a dispersão $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$) [6,7]. Este aumento consistiu simplesmente no aprimoramento da tecnologia de fabricação dos elementos combustíveis tipo placa, já existente, e que havia sido bem sucedida. De fato, os testes de irradiação demonstraram, como era esperado, a grande estabilidade destes combustíveis à irradiação até altos níveis de queima [6].
- 2º) Necessidade de desenvolvimento de novos elementos combustíveis com densidades de urânio de $6,0$ a $7,0 \text{ gU/cm}^3$. Este patamar ficava bem acima dos níveis fabricados com os combustíveis óxidos usados até então [6,7]. O desenvolvimento de novos elementos combustíveis, com maior conteúdo de urânio na dispersão, só poderia ser conseguido usando-se ligas com alto teor de urânio [6].

TABELA 2.1-Valores da massa crítica do urânio em função do enriquecimento em ^{235}U .

Fonte: Ref. 8, pg. 12.

Enriquecimento em ^{235}U (% em peso)	Massa crítica total $^{235}\text{U} + ^{238}\text{U}$ (kg)	
	Solução aquosa ¹	Metálico
90	0,9	53
20	5,7	750
5	38,0	Infinita
3	114	Infinita
1,8	708	Infinita

1. Refletor e moderador : água.

Como uma consequência do acima colocado, diversos países, e entre eles o Brasil, têm realizado esforços no sentido de desenvolver novos combustíveis, aumentar a fração volumétrica da fase fissil dispersa no elemento combustível (isto é, a razão entre a quantidade de combustível e a quantidade total de combustível e alumínio) e analisar o comportamento sob irradiação, tanto dos compostos já empregados generalizadamente (UAl_x e U_3O_8), como de novos compostos à base de U-Si e U-Fe. A fração volumétrica

da fase dispersa subiu do valor próximo de 20% (quando se utilizava urânio altamente enriquecido) até cerca de 45 a 50%, que corresponde ao atual limite tecnológico de fabricação de elementos combustíveis à base de dispersões, para uso em reatores do tipo MTR [3,6]. Atualmente, os silicetos de urânio são considerados os primeiros candidatos a serem usados, como fase dispersa em uma matriz de alumínio, com o U_6Fe sendo uma alternativa potencial, tendo em vista o seu alto teor em urânio [6].

2.1.1 Urânio metálico.

O urânio é um metal muito pesado, apresentando uma densidade de $19,07 \text{ g/cm}^3$ à temperatura ambiente, peso atômico $238,029 \text{ uma}$, e número atômico 92. Com um teor de impurezas que não excede 0,01 % em peso, tem ponto de fusão de $1132,3^\circ\text{C}$ e ponto de ebulição de 3818°C [8].

O urânio é um dos metais mais abundantes da crosta terrestre. No entanto, os sais de urânio são bastante solúveis, o que explica que, após sua formação, puderam ser arrastados e dispersados em outros minerais. Por este motivo, só é encontrado em concentrações relativamente baixas. As jazidas atualmente em exploração no mundo apresentam um teor médio de 1 a 2 kg de urânio por tonelada de minério [9,10].

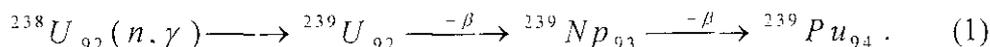
Nestas condições, o minério deve ser tratado na boca da mina, em usinas que produzem um concentrado contendo mais de 60 % de urânio, sob a forma de sais de urânio, ou de óxidos. O mercado mundial de urânio se estabelece, assim, ao nível deste concentrado, que é geralmente cotado em dólares americano por libra de U_3O_8 contido [10].

O urânio tem quatorze isótopos, todos os quais são radioativos. O metal de ocorrência natural contém 99,2830% de ^{238}U , 0,7110% de ^{235}U e 0,0054% de ^{234}U (% em peso).

Apesar da fissão ser possível com praticamente todos os núcleos pesados, a reação em cadeia só é possível com os núcleos de ^{235}U , ^{233}U e ^{239}Pu , o primeiro existindo na natureza e os outros sendo produzidos artificialmente em reatores nucleares [11].

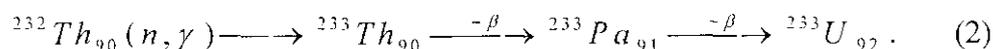
O isótopo ^{235}U é de primordial importância para a utilização do urânio. Apesar da sua ocorrência no urânio natural ser de apenas 0,711 % em peso, ele é tão fissionável pelo bombardeamento com nêutrons térmicos, que a reação em cadeia pode ser mantida nos reatores onde se usa urânio natural e um moderador adequado, tal como água pesada ou grafita. O teor de ^{235}U pode ser aumentado através de diferentes processos, entre os quais a difusão gasosa e a ultra-centrifugação, e o urânio enriquecido com este isótopo é usado, também, como combustível em reatores de potência para a produção de eletricidade.

O isótopo ^{238}U não sofre fissão através do bombardeamento com nêutrons térmicos, mas pode ser convertido em plutônio fissionável de acordo com a seguinte reação:



Esta conversão nuclear ocorre em qualquer reator operando com urânio natural ou enriquecido e pode ser usada nos reatores regeneradores (Breeders), com a finalidade de produzir mais material fissionável do que o consumido.

O isótopo ^{233}U pode ser produzido artificialmente através da irradiação do ^{232}Th por nêutrons térmicos. Esse isótopo também sofre fissão pelo bombardeamento com nêutrons térmicos, e pode, assim, ser usado como combustível em reatores nucleares. A reação de produção do ^{233}U pode ser escrita da seguinte forma:



Os isótopos ^{238}U e ^{232}Th , que, não sendo materiais físeis, podem assim tornar-se quando colocados em um reator, são chamados materiais férteis [11].

Podemos observar, na Tabela 2.2, que o urânio apresenta três modificações cristalográficas, sendo que os modelos cristalinos dessas fases são mostrados nas Figuras 2.1 e 2.2 [8].

A estrutura ortorrômbica da fase U_α (Figura 2.1.a), é estável até 662°C , e pode ser representada na forma de uma camada deformada, paralela ao *plano* (010) (Figura 2.2.a). A projeção dos átomos no *plano* (001) sugere um arranjo hexagonal, com a diferença de que as camadas de átomos paralelas ao plano da base são deslocadas para frente e para trás na direção [010], (Figura 2.2.b). Em função da sua estrutura, a fase U_α apresenta uma forte natureza anisotrópica [8]. Assim, o coeficiente de expansão térmica linear do U_α depende fortemente da direção cristalográfica, conforme mostrado na Tabela 2.3 [46].

O U_α , ao ser laminado ou forjado, apresenta uma forte tendência a produzir uma orientação preferida dos eixos cristalinos, semelhante ao mostrado na Figura 2.3. Os cristais de U_α se comportam de uma forma pouco comum ao serem aquecidos, pois se contraem em uma direção e se dilatam fortemente nas outras direções. Os efeitos combinados da orientação preferencial e da dilatação térmica anisotrópica podem produzir uma distorção tão grande em uma peça feita de urânio, que esta pode aumentar consideravelmente em relação ao seu tamanho original [12].

TABELA 2.2 - Dados cristalográficos das fases do urânio.

Fonte : Ref. 8, pg. 18.

Fases	U_{α}	U_{β}	U_{γ}
Faixa de estabilidade(°C)	Até 662	de 662 até 765	De 765 até 1130
Tipo de rede	Ortorrômbica	Tetragonal	ccc
Parâmetros de rede (Å)	a = 2,852 b = 5,865 c = 4,915	a = 10,759 c = 5,656	a = 3,524
Número de átomos/célula	4	30	2
Densidade teórica (g/cm ³) ^a	19,12	18,11	18,06

(a) A densidade depende da temperatura e da forma cristalina na qual o metal ocorre. Para o urânio líquido, no seu ponto de fusão, é considerada como sendo 16,63 g/cm³ [8].

A estrutura tetragonal. U_{β} , estável de 662 °C até 765 °C tem uma rede complexa, com 30 átomos por célula unitária. Esta estrutura também é anisotrópica, ainda que em menor extensão do que a da fase U_{α} .

A estrutura cúbica de corpo centrado, U_{γ} , (Figura 2.1.b), estável de 765°C até a temperatura de fusão, apresenta propriedades isotrópicas.

TABELA 2.3 - Coeficientes de expansão térmica linear do U_{α} ($10^{-6} K^{-1}$).

Fonte :Ref. 46.

Direção paralela ao eixo	Temperatura (°C)		
	25 – 125	25 - 325	25 - 650
a_0 (100)	21,7	26,5	36,7
b_0 (010)	- 1,5	- 2,4	- 9,3
c_0 (001)	23,2	23,9	34,2

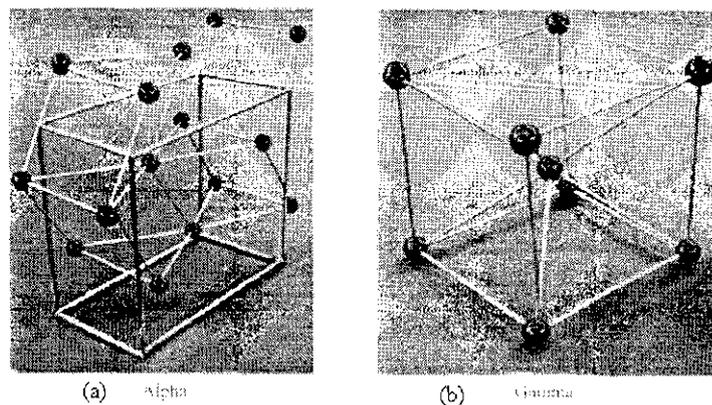


FIGURA 2.1 - Modelos das modificações cristalinas do urânio.

a) fase U_{α} b) fase U_{γ}

Fonte : Ref. 47

Devido à natureza das suas estruturas cristalinas, o urânio metálico puro não é usado como material estrutural, nem representa um dos melhores combustíveis. Não só a porcentagem do isótopo fissil é baixa, como também não apresenta boa estabilidade dimensional, sofrendo danos por radiações causadas, principalmente, pelos produtos de fissão de alta energia. A maior causa da instabilidade é assinalada pela anisotropia térmica da fase alfa. Com isso, o urânio metálico sofre esforços em diferentes sentidos, acomodações da malha cristalina, inchamento, etc., tornando-o instável e sujeito a fraturas e deformações [13].

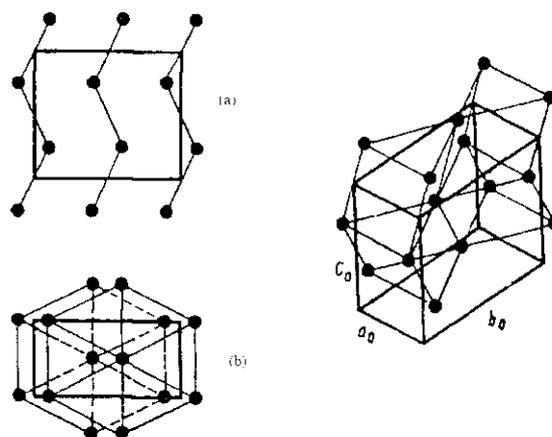


FIGURA 2.2 - Desenho esquemático da rede cristalina da fase U_{α} .

Fonte : Ref. 8

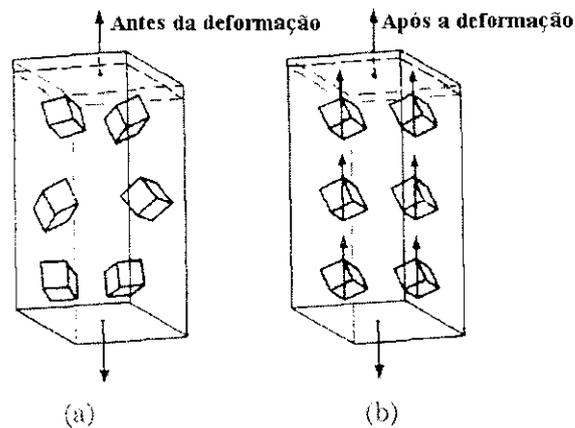


FIGURA 2.3 - Orientação preferencial em uma barra de urânio metálico, como efeito de uma deformação mecânica.

Fonte : Ref. 12

2.1.2 Ligas de urânio.

A possibilidade de se usar urânio puro para fabricar elementos combustíveis metálicos, como visto anteriormente, está limitada em grande parte pelas propriedades estruturais deste metal. O uso de ligas de urânio, com diferentes elementos, é a melhor solução para o problema relacionado com a estabilidade dos elementos combustíveis metálicos. Entretanto são vários os requisitos exigidos das ligas de urânio. Em primeiro lugar, elas devem ter uma captura parasítica de nêutrons extremamente pequena, isto é, a quantidade de nêutrons que sofrem reações que não levam à fissão deve ser baixa, permitindo então que a carga de ^{235}U no reator seja reduzida. Para satisfazer este requisito, é necessário usar elementos de liga com baixas seções de choque de absorção de nêutrons.

A preservação da forma e dimensão do elemento combustível também é um requisito muito importante durante o período de operação de um reator. As mudanças nas dimensões do elemento combustível levam a um distúrbio do arranjo espacial do núcleo, que tem um efeito acentuado no comportamento térmico do reator e na remoção do calor. Essas mudanças podem provocar uma distribuição não uniforme do fluxo do refrigerante, e, como conseqüência, um superaquecimento local que pode levar à ruptura do revestimento do elemento combustível.

As ligas de urânio devem ser estáveis e ter alta resistência mecânica e ductilidade. Se houver um gradiente de temperatura muito acentuado no combustível nuclear, isso pode provocar tensões internas, que, associadas com propriedades mecânicas baixas, podem

resultar numa considerável deformação plástica, ou, no caso de um material de baixa ductilidade, levar à formação de trincas.

Outra característica relevante, ao se escolher uma liga para ser usada como combustível nuclear, refere-se à sua compatibilidade com o material do revestimento protetor, nas temperaturas de trabalho. A possibilidade de uma interação de difusão entre eles deve ser minimizada, para impedir uma possível falha do elemento combustível.

Será feita também uma abordagem a respeito da liga U-C, visto que será utilizado cadinho de grafita para a realização das fusões das ligas urânio-silício e urânio-alumínio, existindo a possibilidade de haver um contato da carga líquida com a grafita, e ocorrer a formação de carbonetos.

2.1.2.1 Ligas urânio-carbono.

O urânio é um elemento formador de carbetos. Na fusão de urânio em cadinho de grafita, a grafita reage com urânio e com os elementos de liga usados, permitindo assim a contaminação da carga com carbono e danificando seriamente o cadinho [14]. Tal procedimento pode aumentar o teor de carbono em até 0,05% em peso [15]. Em casos isolados, particularmente com refusões repetidas, o teor de carbono pode aumentar consideravelmente. A Figura 2.4 mostra o diagrama de fases urânio-carbono [16,17], no qual se observa um eutético com 0,05% em peso de carbono, a 1116,6°C. A solubilidade do carbono em U_{γ} na temperatura eutetóide, chega a 0,017% em peso. A solubilidade no U_{β} não excede 0,002% em peso, e no U_{α} , a solubilidade é praticamente nula. Acima da linha liquidus ocorre uma solubilidade completa do carbono no urânio. A 1450°C, que é a temperatura normal de lingotamento do urânio, ele pode dissolver, de acordo com o diagrama de fases, ao redor de 0,17% em peso de carbono. Considerando que a solubilidade do carbono em U_{α} é praticamente nula à temperatura ambiente, o resfriamento rápido até esta temperatura faz com que o carbono, que fica em excesso, leve à formação de carbetos. A Tabela 2.4 [18] fornece a solubilidade do carbono no urânio líquido em diversas temperaturas. Assim, a duração de uma fusão de urânio em cadinhos de grafita em altas temperaturas, pode ser a causa de uma considerável carbonetização do metal. Durante a fusão, as paredes internas do cadinho de grafita, tornam-se revestidas com um filme de carbeto de urânio, que exerce um efeito protetor do cadinho, até uma temperatura em torno de 1650°C. Acima dessa temperatura esse efeito desaparece, uma vez que ocorre a decomposição do filme protetor [8].

TABELA 2.4 - Solubilidade do carbono em urânio líquido.
 Fonte : Ref. 18, pg 948.

Temperatura(°C)	Carbono(% em peso)
1132	0,016
1350-1400	0,100
1450-1500	0,170
1550-1600	0,360
1650-1700	0,420
1750-1800	0,510
1850-1900	1,600
1950-2000	1,740
2080-2130	2,920

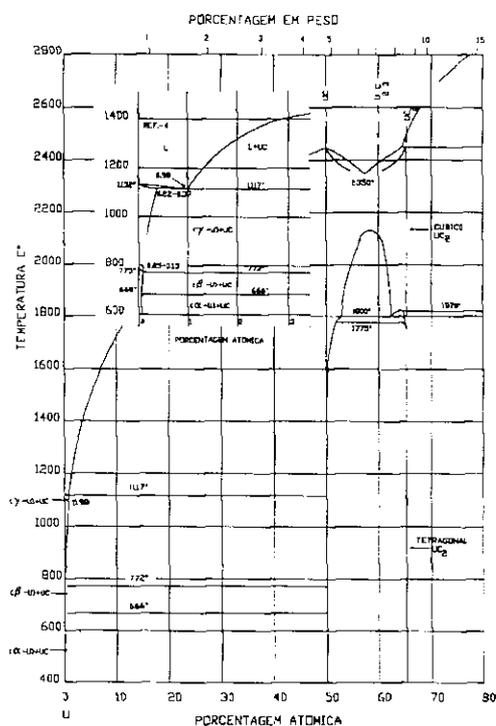


FIGURA 2.4 - Diagrama de equilíbrio de fases urânio - carbono.
 Fonte : Ref. 16.

2.1.2.2 Ligas urânio-alumínio.

O alumínio, com uma seção de choque de absorção de nêutrons térmicos de $0,23 \text{ barn}$ [19], tem sido usado como um meio de distribuir material fissionável em uma matriz que apresenta seção de choque de absorção de nêutrons térmicos relativamente baixa. As

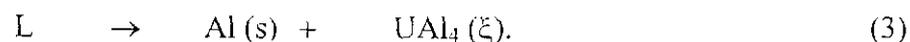
ligas urânio-alumínio são relativamente baratas, fáceis de fabricar, razoavelmente resistentes e, quando revestidas com alumínio, têm excelente resistência à corrosão em água a baixas temperaturas. Estas ligas são ideais para fabricar combustíveis para reatores de pesquisa, os quais operam em temperaturas relativamente baixas. O uso destas ligas em reatores de potência, entretanto, é severamente limitado devido à falta de resistência mecânica e baixa resistência à corrosão em altas temperaturas.

O diagrama de fases do sistema urânio-alumínio, visto na Figura 2.5, obtido por meio de análises térmicas, micrográficas e de raios x [17,21], mostra que não existe uma faixa de composição estequiométrica para as fases existentes, UAl_2 , UAl_3 e UAl_4 . Assim, pequenas variações na estequiometria podem resultar na formação de uma das fases vizinhas [4]. Tais variações são difíceis de serem evitadas na prática e, por isto, quando se efetua a fusão destes compostos, deve-se usar quantidades de urânio e alumínio as mais próximas possíveis das da composição correspondente à fase desejada.

A adição de alumínio não altera acentuadamente o ponto de fusão do urânio ou as suas temperaturas de transformações polimórficas no estado sólido. A transformação $U_\alpha \leftrightarrow U_\beta$ ocorre a $655^\circ C$, do mesmo modo que no urânio puro, enquanto que a temperatura da transformação $U_\beta \leftrightarrow U_\gamma$, decresce de $765^\circ C$, no urânio puro, para $750^\circ C$ na liga urânio-alumínio [20].

A solubilidade máxima do alumínio no U_γ no estado sólido é de $0,47-0,60\%$ em peso, a $1105^\circ C$. Essa solubilidade decresce com o decréscimo da temperatura. A solubilidade do Al no U_α à temperatura ambiente é insignificante. Também não está evidenciada uma solubilidade sólida de urânio no alumínio [20].

O diagrama U - Al mostra também que ocorre uma reação eutética (3), na faixa de temperatura de $640^\circ C$, onde um líquido com a composição $87\%Al-13\%U$ se transforma em UAl_4 (ξ) e alumínio.



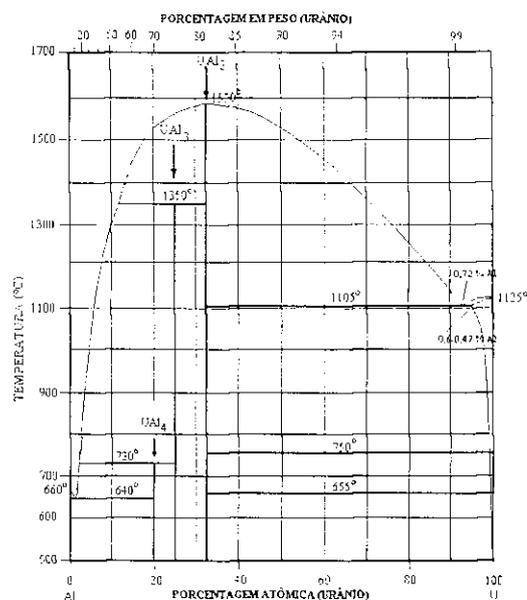
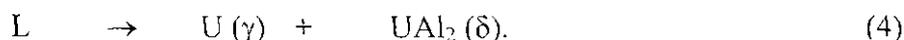


FIGURA 2.5 - Diagrama de equilíbrio de fases urânio – alumínio.

Fonte : Ref. 21.

Ocorre uma outra reação eutética (4) na faixa de 1105°C , na qual um líquido com $0,72\%$ de alumínio se transforma em UAl_2 e urânio com $0,47-0,60\%$ em peso de alumínio [21].



A fase $\text{UAl}_2(\delta)$ tem $81,5\%$ em peso de urânio e densidade de $8,14 \text{ g/cm}^3$. Como resultado de sua fusão congruente (funde-se a 1590°C), pode ser obtida como se fosse um composto puro [22]. É instável em presença de alumínio, podendo formar UAl_3 , sendo ainda altamente pirofórica na forma de pó [5].

A fase $\text{UAl}_3(\epsilon)$ tem $74,6\%$ em peso de urânio e densidade de $6,8 \text{ g/cm}^3$. Forma-se através de reação peritética (5) a altas temperaturas, (1350°C), entre UAl_2 e um líquido contendo, aproximadamente, 54% em peso de urânio. Esta fase também reage com alumínio formando UAl_4 [22].



A fase $\text{UAl}_4(\zeta)$ tem $68,8\%$ em peso de urânio e densidade de $6,06 \text{ g/cm}^3$. Como a fase anterior, forma-se através de uma reação peritética (6), a 730°C , entre UAl_3 e um líquido contendo 18% em peso de urânio.



A Tabela 2.5, mostra as estruturas cristalinas das fases presentes no sistema urânio-alumínio [20].

TABELA 2.5. - Estruturas cristalinas das fases do sistema U-Al.

Fonte : Ref. 20, pg 314; Ref. 22, pg 252.

Fases	UAl ₂ (δ)	UAl ₃ (ϵ)	UAl ₄ (ζ)
Tipo	cfc	Cúbica simples	Ortorrômbica
Parâmetros de rede (Å)	a = 7,72	a = 4,26	a = 4,41 b = 6,27 c = 13,71
Número de átomos Por célula unitária	8	1	4
Densidade (g/cm ³)	8,14	6,8	6,06
Temperatura de fusão (°C)	1590	Decompõe	Decompõe

As ligas contendo 0,29% em peso de alumínio podem ser forjadas a 600°C. Quando o teor de alumínio aumenta para 0,6% em peso, as ligas tornam-se frágeis e não podem mais ser trabalhadas. A fragilidade das ligas é devida à presença da fase UAl₂ nos contornos de grão e a sua presença não pode ser evitada mesmo por resfriamento rápido a partir de 1040-1090°C. Os compostos UAl₂, UAl₃ e UAl₄ são muito frágeis e podem ser triturados facilmente. Ligas contendo de 21,45 a 26,9% em peso de urânio têm uma plasticidade satisfatória e apresentam uma dureza e resistência à tração maiores que as do urânio puro [20].

Uma liga intermetálica muito usada como combustível, freqüentemente denominada UAl_x, consiste em uma mistura dos três aluminetos de urânio, em proporções variáveis, com predominância da fase UAl₃. A mistura, que contém 6% de UAl₂, 31% de UAl₄ e 63% de UAl₃, representa uma constituição típica. Esta liga pode ser usada também para a fabricação de alvos de irradiação na produção de ^{99m}Tc [23,24], que apresenta extraordinária aplicação na área de diagnóstico do câncer [2].

2.1.2.3 Ligas urânio-silício.

O silício, com uma seção de choque de absorção de nêutrons térmicos relativamente baixa, da ordem de 0,16 barn [19], reage com o urânio formando silicetos de alta

densidade. O diagrama de fases urânio-silício [17,25], (Figura 2.6), mostra que podem ser formados seis compostos com diferentes pontos de fusão e estruturas [8].

O composto de maior teor de urânio, U_3Si , com 96,2 % em peso de urânio, tem alta resistência à corrosão em água e é relativamente plástico, podendo, assim, ser usado na fabricação de elementos combustíveis para reatores nucleares refrigerados a água. Esta fase é formada por meio de uma reação peritetóide a $925^\circ C$ [25] e, por isso, é instável termicamente, existindo apenas em temperaturas abaixo de $925^\circ C$. Em temperaturas mais altas se decompõe em U_γ e U_3Si_2 , cujo ponto de fusão é mais elevado [8].

O siliceto de urânio U_3Si_2 , com 92,7 % em peso de urânio, é termicamente estável, com ponto de fusão de $1665^\circ C$. Com relação às propriedades físicas, este siliceto se aproxima do monocarbeto de urânio, sendo no entanto menos frágil e mais fácil de ser trabalhado mecanicamente[8].

O dissiliceto de urânio USi_2 , com 81,0 % em peso de urânio, também é termicamente estável, com ponto de fusão de $1700^\circ C$. No entanto, apresenta um teor de urânio inferior ao U_3Si_2 , além de ser mais frágil [8].

O siliceto de urânio USi_3 , com 73,9 % em peso de urânio, além de ser o siliceto com menor teor de urânio, é também termicamente instável, decompondo-se a $1510^\circ C$ [8].

Quanto aos silicetos, USi , com 89,5 % em peso de urânio e U_2Si_3 , com 85,0 % em peso de urânio, apesar de possuírem teores de urânio maiores que o USi_2 apresentam o inconveniente de serem instáveis termicamente, decompondo-se nas temperaturas de $1570^\circ C$ e $1610^\circ C$, respectivamente [8].

Na Tabela 2.6 são mostradas as propriedades de interesse para os silicetos de urânio. Observa-se que, do ponto de vista neutrônico, o composto mais atrativo é o U_3Si , devido ao fato de ser o siliceto de maior densidade. Do ponto de vista da estrutura cristalina, considerando-se apenas os três com maiores densidades, nenhum deles apresenta características de isotropia, o que é pouco conveniente frente aos danos causados pela irradiação. Por este motivo e devido ao seu menor teor de urânio, não se usa o USi como fase dispersa nos combustíveis tipo placa [8,26].

As propriedades físicas e mecânicas dos silicetos de urânio têm sido pouco estudadas. Para alguns desses foram determinados o coeficiente de expansão térmica e o calor específico. Verifica-se que todos têm coeficiente de expansão térmica bem elevados, conforme mostrado na Tabela 2.6, para o intervalo de temperatura de $20^\circ C$ a $900^\circ C$.

Algumas propriedades mecânicas foram determinados para o U_3Si , onde verifica-se que ele apresenta um limite de resistência de 196 kg/mm^2 à temperatura ambiente e $38,5 \text{ kg/mm}^2$ a 600°C com uma dureza Vickers de 240 kg/mm^2 [8].

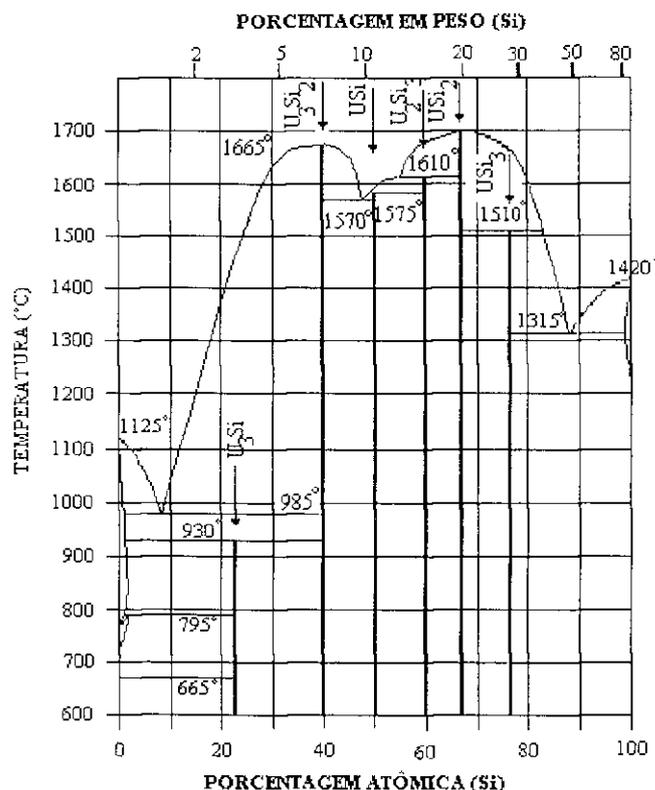


FIGURA 2.6 - Diagrama de equilíbrio de fases urânio - silício.

Fonte : Ref. 25.

Com relação às propriedades químicas, os silicetos de urânio são pirofóricos quando na forma de pó. Após a refusão em forno a arco, o U_3Si_2 é estável ao ar, até 100°C , por um longo tempo. A 200°C , entretanto, é oxidado seguindo uma lei parabólica e se decompõe completamente após aquecimento a 315°C por 16 horas. A resistência à corrosão do U_3Si em água e vapor de água é maior do que a do urânio metálico, mas esta resistência cai acentuadamente se houver a presença de outros silicetos [8].

Devido ao fato de os teores de urânio serem elevados é que os silicetos U_3Si e U_3Si_2 têm sido usados para a fabricação de elementos combustíveis. Com eles consegue-se uma maior fração de urânio por volume no elemento combustível e, conseqüentemente, torna-se necessário um menor enriquecimento em ^{235}U , quando comparados com os combustíveis tradicionais tais como U_3O_8 e UAl_3 [3,7,25].

TABELA 2.6 - Parâmetros estruturais e propriedades físicas dos silicetos de urânio.
 Fonte : Ref. 26, pg 33; Ref. 8, pg 160; Ref. 27, pg 1199.

Composto	U ₃ Si	U ₃ Si ₂	USi	U ₂ Si ₃	USi ₂	USi ₃
Estrutura	Tetragonal de corpo centrado	Tetragonal	Ortorrômbica	Hexagonal	Tetragonal de corpo centrado	Cúbica
Parâmetros de rede (Å)	a=6,029±2 c=8,696±3	a=7,3299±4 c=3,9004±5	a=5,66±1 b=7,67±1	-	-	a=4,0353
Número de átomo/célula	16	10	-	-	-	-
Teor de urânio (%)	96,2	92,7	89,5	85,0	80,9	73,9
Densidade (g/cm ³)	15,58	12,20	10,40	9,25	8,98	8,15
Ponto de fusão (°C)	930 ^a	1665	1575 ^a	1610 ^a	1700	1510 ^a
Calor específico (cal/g/°C)	0,038	-	-	-	0,065	0,078
Coef. Exp. Térm. (α*10 ⁻⁶ /°C) (Valores médios)	17,5	14,6	16,5	-	16,8	12,0

a) *decompõe.*

2.1.3 Combustíveis do tipo placa.

O potencial dos combustíveis nucleares dispersos baseados nas ligas U-Al, U-Si, U₃O₈ e U-Si-Al podem ser vistos na Tabela 2.7 [3,7,26] e na Figura 2.7 [7,26], levando-se em consideração o fato de que os elementos combustíveis atuais apresentam uma concentração máxima da fase dispersa em 50% em volume [6].

Dentre os silicetos mostrados na Tabela 2.7, o U₃Si é o que apresenta o maior teor de urânio. Do mesmo modo, uma composição modificada do U₃Si, denominada convenientemente de "U₃SiAl", tem densidade e concentração de urânio bem atrativas. Tanto o U₃Si quanto o U₃SiAl, apresentam boa resistência à corrosão aquosa. Mesmo o U₃Si₂, com uma densidade de 12,2 g/cm³, é um forte competidor para uso em reatores de pesquisa e de teste de materiais.

Cálculos neutrônicos e termohidráulicos mostram que o núcleo do elemento combustível da maioria dos reatores em operação no mundo, deve ter, no mínimo, uma concentração de urânio em torno de 3,5 gU/cm³. Desse modo, para se obter uma concentração de urânio de 3,5 gU/cm³, usando-se urânio enriquecido a 20 % em peso de ²³⁵U, sem

ultrapassar o limite de 45/50 % em volume da fase dispersa, deve-se utilizar compostos que tenham um teor de urânio superior a aproximadamente $7,5 \text{ gU/cm}^3$ [26].

TABELA 2.7 - Densidade e teor de urânio de alguns combustíveis.
Fonte : Ref. 26, pg 32; Ref. 7, pg 354; Ref. 3, pg 599.

Composto	Densidade (g/cm^3)	Teor de urânio no combustível ^a (gU/cm^3)	Máxima concentração de urânio no elemento combustível ^b (gU/cm^3)
UAl ₂	8,1	6,6	3,2
UAl ₃	6,7	5,0	2,5
UAl ₄	6,0	4,1	2,1
U ₃ O ₈	8,4	7,1	3,2
U ₃ Si			
(U+4%Si) ^c	15,58	14,99	6,7
U ₃ SiAl			
(U+3,5%Si+1,5%Al) ^c	14,24	13,5	6,1
U ₃ Si ₂			
(U+7,4%Si) ^c	12,2	10,9	5,1
U ₆ Fe	17,7	17,0	7,9

(a) Quantidade total de urânio no combustível (densidade x peso percentual do urânio no composto).

(b) Máxima concentração de urânio no núcleo da placa combustível, para o limite de 45/50 % em volume da fase dispersa.

(c) Porcentagem em peso

Em função de suas excelentes propriedades, tais como massa específica de urânio elevada, facilidade de fabricação e bom desempenho sob irradiação, o U₃Si₂ foi escolhido para a fabricação dos futuros elementos combustíveis do reator IEA-R1 [3].

ultrapassar o limite de 45/50 % em volume da fase dispersa, deve-se utilizar compostos que tenham um teor de urânio superior a aproximadamente $7,5 \text{ gU/cm}^3$ [26].

TABELA 2.7 - Densidade e teor de urânio de alguns combustíveis.
Fonte : Ref. 26, pg 32; Ref. 7, pg 354; Ref. 3, pg 599.

Composto	Densidade (g/cm^3)	Teor de urânio no combustível ^a (gU/cm^3)	Máxima concentração de urânio no elemento combustível ^b (gU/cm^3)
UAl ₂	8,1	6,6	3,2
UAl ₃	6,7	5,0	2,5
UAl ₄	6,0	4,1	2,1
U ₃ O ₈	8,4	7,1	3,2
U ₃ Si			
(U+4%Si) ^c	15,58	14,99	6,7
U ₃ SiAl			
(U+3,5%Si+1,5%Al) ^c	14,24	13,5	6,1
U ₃ Si ₂			
(U+7,4%Si) ^c	12,2	10,9	5,1
U ₆ Fe	17,7	17,0	7,9

(a) Quantidade total de urânio no combustível (densidade x peso percentual do urânio no composto).

(b) Máxima concentração de urânio no núcleo da placa combustível, para o limite de 45/50 % em volume da fase dispersa.

(c) Porcentagem em peso

Em função de suas excelentes propriedades, tais como massa específica de urânio elevada, facilidade de fabricação e bom desempenho sob irradiação, o U₃Si₂ foi escolhido para a fabricação dos futuros elementos combustíveis do reator IEA-R1 [3].

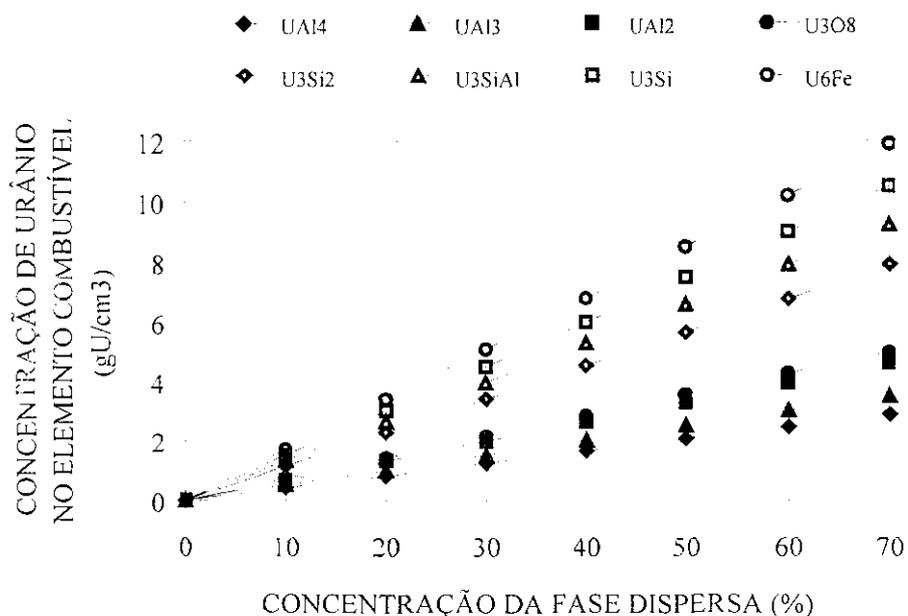


FIGURA 2.7 - Concentração de urânio em uma dispersão como uma função da concentração da fase dispersa.

Fonte : Ref. 7; Ref. 26.

2.2 PRODUÇÃO DE LIGAS U-Si.

2.2.1 Silicetos.

De um modo geral os silicetos não são encontrados naturalmente na crosta terrestre. A sua produção remonta aos tempos de Berzelius, quem, pela primeira, vez no século XIX, obteve siliceto de ferro. No entanto, os silicetos receberam pouca atenção até o desenvolvimento do forno elétrico por Moissan, que providenciou o primeiro meio prático de obter e controlar as altas temperaturas geralmente necessárias em sua preparação e processamento. O aumento da demanda, durante a II Grande Guerra, para novos materiais refratários, despertou o interesse dos pesquisadores nos silicetos e estimulou estudos para a sua utilidade prática [28].

Os silicetos, de um modo geral, são duros, cristalinos, e, do mesmo modo que os metais, apresentam brilho metálico, altas condutividades elétrica e térmica, coeficiente de resistividade positivo com relação à temperatura e paramagnetismo [28].

Estudos recentes têm mostrado que pequenas concentrações de impurezas, particularmente de carbono, boro, nitrogênio e oxigênio, têm um efeito pronunciado na

estrutura e estabilidade de certos silicetos. Esta descoberta tem focalizado a atenção na preparação dos silicetos e a síntese direta tem sido o método preferido para produzir compostos de alta pureza. Um produto com pureza química elevada pode ser obtido desde que as substâncias elementares sejam puras e não ocorra contaminação durante sua produção. Na prática, estas condições nem sempre são alcançadas. A homogeneidade estrutural é difícil de se obter, algumas vezes, por causa do polimorfismo e fases não estequiométricas [28].

2.2.2 Produção de silicetos de urânio.

Os silicetos de urânio, assim como a maioria de outros silicetos descritos na literatura, são preparados pelo processo de fusão, a partir dos elementos puros. Para isso, são utilizados dois tipos de fornos: forno de indução e forno a arco.

Nos fornos de indução, o próprio cadinho de grafite serve como elemento de aquecimento, o que assegura a alta eficiência do forno, visto que a carga pode ser aquecida muito rapidamente até a temperatura desejada. Além disso, a construção de tais fornos é mais simples e não há elementos aquecedores dentro da câmara onde se faz o aquecimento. Esses fornos são equipados com bombas de vácuo de alta eficiência, para garantir que seja obtido o vácuo necessário ao processo, e também para uma rápida remoção dos gases liberados durante a operação [28].

Ocasionalmente, para a fusão de urânio e particularmente para a produção de suas ligas, são usados os fornos a arco com cadinho refrigerado a água. Tais fornos são de dois tipos: com eletrodo não-consumível e com eletrodo consumível. Os fornos com eletrodo não-consumível são usados para fundir pequenas quantidades de material. Quando são necessárias grandes quantidades de liga usa-se o forno a arco de eletrodo consumível. Esses fornos são convenientes porque não favorecem a contaminação da carga pelo contato com o cadinho, uma vez que este é refrigerado, e ocorre uma solidificação muito rápida da carga. A desvantagem de tais fornos é que eles só podem ser usados para produzir peças de formas muito simples e com grande tolerância dimensional [8,25].

Apesar dos cuidados que se possam ter na fusão para obter uma das fases do sistema U - Si, tanto em forno a arco como em forno de indução, é muito difícil obter-se produtos puros, isto é, sem a presença das fases adjacentes [26].

Além dos processos de fusão descritos acima, já foi verificada [8] a possibilidade de se obter o siliceto de urânio, U_3Si_2 , a partir da reação:



Entretanto, a reação como descrita acima não é completa, ocorrendo também a formação de outros silicetos.

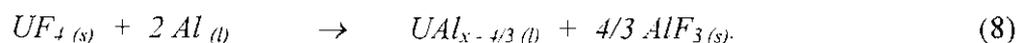
2.3 PRODUÇÃO DE LIGAS U-Al.

Os métodos apresentados a seguir são aqueles que estão sendo pesquisados no IPEN, no âmbito do programa de desenvolvimento de combustíveis nucleares para reatores de pesquisa.

2.3.1 Obtenção do composto UAl_x por redução-destilação do UF_4 com alumínio.

Este processo utiliza as técnicas da metalurgia do pó para a preparação da liga U-Al, na qual o UF_4 e o Al em pó são misturados, homogeneizados e compactados na forma de pastilhas e levados para a operação de redução-destilação em uma retorta de aço [24].

O método consiste em reagir o composto UF_4 com excesso de Al metálico, a temperaturas compreendidas entre 900°C e 1200°C , sob atmosfera controlada de gás inerte ou vácuo de 10^{-2} a 10^{-4} Torr, de acordo com a reação [24]:



Os produtos obtidos nesta primeira reação são o composto AlF_3 e o intermetálico constituído de U e Al. No mesmo sistema e nas mesmas condições de operação realiza-se uma destilação fracionada para sublimação dos fluoretos de alumínio. Com isso, obtém-se a purificação do material. Nesta etapa, pode ocorrer tanto a sublimação do AlF_3 quanto a formação do AlF, que é um composto gasoso só existente a temperaturas superiores a 955°C . A sua formação ocorre pela reação do AlF_3 com o Al em excesso contido na liga U-Al, de acordo com a reação [24]:



O AlF desta segunda reação é arrastado pelo argônio ou pelo sistema de vácuo e, em seguida, é condensado na forma de AlF_3 sólido mais Al líquido, em regiões de temperaturas mais baixas, entre 700 e 800°C . Assim, o produto final da operação redução-destilação é somente o composto puro UAl_x [24].

2.3.2 Síntese do UAl_3 por combustão.

As reações fortemente exotérmicas têm sido empregadas na síntese de uma grande variedade de materiais, há mais de um século. Nos últimos vinte anos e, particularmente, na última década, verificou-se um aumento significativo do número de investigações práticas e teóricas sobre a chamada síntese por combustão. A sigla SHS, introduzida nos anos 70 pela escola soviética, passou a designar, desde então, este processo [23].

Neste método, é feita uma reação de combustão entre o urânio e o alumínio. Os reagentes são os pós de alumínio e de UH_3 . É utilizado o UH_3 pois a hidretação do urânio é a maneira mais simples e eficiente de se obter urânio na forma de pó. A mistura dos pós é inicialmente aquecida sob vácuo (10^{-2} a 10^{-3} Pa) até cerca de 300°C , para permitir a decomposição do UH_3 . Segue-se um aquecimento até cerca de 600°C , onde ocorre a reação de combustão, produzindo o alumineto em questão. Alguns pesquisadores sugerem um tratamento térmico adicional a 1300°C durante *13 horas* [23].

2.3.3 Fusão em forno a arco de eletrodo não consumível.

Inicialmente, coloca-se o urânio e o alumínio em quantidades suficientes para se obter a liga desejada (25 % em peso de alumínio), dentro do forno e, em seguida, faz-se vácuo dentro da câmara. Após ter-se atingido o vácuo necessário (380 Torr), liga-se o forno e abre-se o arco sobre a carga a ser fundida, utilizando-se um eletrodo de tungstênio toriado. Consegue-se, assim, um pequeno lingote da liga UAl_3 , que apresenta uma estrutura não homogênea. Para diminuir os efeitos de segregação dos elementos de liga e assegurar uma melhor homogeneidade da liga, é necessário repetir diversas vezes este processo. Após cada fusão, deve-se virar o lingote obtido antes de refundi-lo. A realização de várias refusões de fato melhora a homogeneidade da liga, mas também pode contaminá-la com impurezas, caso não se utilize um gás inerte ultra puro. Tanto a fusão como as refusões são feitas sob pressão de 380 Torr de argônio [29].

2.4 FUSÃO DE LIGAS EM FORNO DE INDUÇÃO.

2.4.1 Introdução.

A fusão de ligas em forno de indução a vácuo é hoje o processo de fusão a vácuo mais econômico para a produção em escala industrial de metais e ligas de alta qualidade. A implementação de tal técnica em escala industrial foi feita por W. Rohn em 1920 na Alemanha, onde ele produziu aço de alto cromo e materiais magnéticos. Hoje, o processo VIM é executado completamente sob vácuo ou gás inerte, incluindo as funções de

carregamento do forno, fusão, adição de elementos de liga, medidas de temperatura, amostragem e lingotamento [30].

Nos fornos de aquecimento indutivo, o calor é produzido por correntes elétricas induzidas na carga, através do campo magnético gerado por uma bobina alimentada por corrente alternada. Assim, o conjunto trabalha como se fosse um transformador, onde o primário é constituído de uma bobina confeccionada com tubo de cobre, dentro da qual circula água de refrigeração, enquanto o secundário é o próprio material a ser aquecido ou fundido. A corrente elétrica que circula na peça e a resistência que o material oferece à sua passagem são as responsáveis pela produção de calor [31].

2.4.2 Fusão de ligas de urânio em forno de indução.

O processo de fusão é um passo essencial na fabricação de ligas de urânio, devido às impurezas que podem estar presentes nos materiais que constituem a carga. Estes materiais podem ter alguma escória, aderente à sua superfície, ou dentro do metal, na forma de inclusão. Pelo fato de a maioria das impurezas normalmente incrustadas serem voláteis na temperatura de fusão do urânio, ele pode ser purificado realizando-se fusões sucessivas. Isto é verdade, apenas se for possível evitar a adição de novas impurezas durante o processo.

A fusão em forno de indução é um dos métodos mais simples para fundir ligas ricas em urânio, sob vácuo ou atmosfera inerte. Tendo o equipamento adequado, o fator limitante é a temperatura que se deve atingir. Se a liga tem seu ponto de fusão acima da faixa de operação do cadinho, a fusão não poderá ser realizada. É o que acontece quando se fundem ligas contendo altas porcentagens de zircônio, nióbio e tântalo, que apresentam pontos de fusão acima da temperatura de trabalho da maioria dos refratários usados para revestir o cadinho de grafita.

As considerações envolvendo a fusão de urânio e suas ligas são comuns à fusão de outras ligas. Entretanto, em comparação com outros metais, o urânio é extremamente ativo [32] e, para produzir ligas de alta pureza, os refratários usados na confecção de cadinhos ou no revestimento de cadinhos de grafita devem ser estáveis nas temperaturas e pressões empregadas na fusão.

O ponto crucial na fusão de ligas de urânio é a seleção de um cadinho adequado. Os requisitos para um bom cadinho são:

- 1º) que não reaja quimicamente com o metal, de modo a não aumentar as impurezas do fundido ou diminuir a vida útil do cadinho ou comprometer o rendimento do processo;
- 2º) que tenha boa condutividade térmica, baixo coeficiente de expansão térmica e alta resistência mecânica.

Dentre todos os materiais disponíveis para fabricação de cadinhos, a grafita é aquele que reúne as melhores propriedades. Devido ao fato de ser condutor elétrico, a grafita pode ser aquecida por indução e, também, pode ser aquecida e resfriada rapidamente, devido à sua boa resistência ao choque térmico. Além disso, pode ser usinada facilmente até um alto grau de acabamento.

Entretanto, como já foi visto, a grafita reage com o urânio formando carbetos e isto pode contaminar a liga com carbono, além de danificar seriamente o cadinho [14,33]. Esta reação, no entanto, pode ser evitada pelo uso de um revestimento nas paredes internas do cadinho [34].

Os estudos para determinar materiais adequados à fabricação de cadinhos para a fusão de urânio e ligas têm sido limitados, e restritos principalmente aos óxidos, e tem sido feito um grande esforço no sentido de desenvolver revestimentos de óxidos metálicos não reativos, aplicados em cadinhos de grafite, como se fosse uma tinta resistente a altas temperaturas. Dentre estes materiais, podemos citar os óxidos de urânio, de cálcio, de zircônio, de tório, de alumínio, de ítrio, o zirconato de magnésio, etc.[35 - 39].

Um problema, associado com o revestimento do cadinho é a reatividade entre os materiais que constituem este revestimento e a grafita. Em função da temperatura alcançada, o óxido metálico do revestimento pode ser reduzido pelo carbono, com a liberação de monóxido de carbono e formação do metal livre



Assim, o urânio pode ser contaminado com o carbono proveniente do monóxido de carbono e, provavelmente também, com o metal resultante da reação [36].

Certos elementos, adicionados ao urânio para produção de ligas, são, também, fortes formadores de carbetos e reagem com o carbono presente no urânio e com o carbono do cadinho. A maioria destes carbetos possuem baixa densidade e se separam no fundido durante a solidificação. Tal comportamento resulta em uma segregação pronunciada dos

elementos de liga. Um revestimento que efetivamente previne a reação metal-grafite impede a entrada de carbono no urânio fundido, reduzindo a perda de elementos de liga através da reação de formação de carbetos.

Obviamente, nem todos os revestimentos preenchem os requisitos citados acima. É necessário, então, escolher um revestimento que seja mais adequado para as condições de composição e temperatura da liga em particular.

Devido ao urânio ser muito reativo em altas temperaturas, o melhor processo usado para a sua fusão é um aquecimento e basculamento no menor tempo possível, evitando-se, assim, um contato prolongado do material fundido com o cadinho [33,34,38]. Uma manutenção prolongada da carga no estado líquido resulta em oxidação e reação com o cadinho, diminuindo a qualidade do produto final.

3.0 PARTE EXPERIMENTAL.

3.1 EQUIPAMENTO.

Neste item, será feita uma breve descrição do equipamento existente no CDTN e que foi utilizado na preparação das ligas estudadas neste trabalho.

3.1.1 Forno.

O forno, marca Leibold-Heraeus, modelo IW-7P (Figura 3.1) foi projetado para trabalhos de sinterização e tratamentos térmicos a altas temperaturas, sob vácuo ou atmosfera de gás inerte [40].

A câmara, mostrada na Figura 3.1(a), fica posicionada na vertical e é construída em aço inoxidável não magnético, com um diâmetro de *400 mm* e altura de *600 mm*. Tem paredes duplas, refrigeradas a água durante toda operação. A tampa do forno é aberta através de um mecanismo de segurança, (Figura 3.1(b)), que a levanta e a desloca lateralmente, para se ter acesso ao seu interior [40].

Para produzir vácuo necessário dentro da câmara, este forno tem adaptado a ele uma bomba de difusão (Figura 3.1(c)), marca Heraeus, modelo DI 1000, com capacidade de bombeamento de *1000 l/s*, e uma bomba de vácuo mecânica de duplo estágio marca Heraeus, modelo DK 25, com capacidade de bombeamento de *25 m³/h*. Este sistema tem ainda uma válvula de segurança ligada à entrada da bomba de vácuo mecânica, que se fecha automaticamente quando esta é desligada, evitando-se assim uma entrada de ar acidental através da linha de vácuo [40].

Com o propósito de dar maior versatilidade e ampliar o uso do equipamento, foi feita uma adaptação na câmara, com o objetivo de alterar o sistema de fixação da bobina de trabalho, tornando-a móvel. Com esta modificação o forno pode ser usado também para fusão e lingotamento de ligas tendo em vista que o projeto original permitia realizar somente operações de sinterização e tratamentos térmicos, uma vez que a bobina de trabalho era fixa. Com esta adaptação, o lingotamento é feito basculando a bobina de trabalho juntamente com o cadinho, movimentando-se a alavanca. Figura 3.1(d), sem quebrar o vácuo existente no interior da câmara. Esta modificação foi projetada e executada utilizando-se a infra-estrutura existente no próprio CDTN. Para tanto, constituiu-se um grupo de trabalho, que no período de sete meses trabalhou no projeto, efetuando o detalhamento técnico, confeccionando as peças e executando a montagem e os testes operacionais do equipamento. Neste período foram consumidas 1028 horas em

desenhos, croquis e projetos, 620 horas na produção das peças e montagem do equipamento [48].

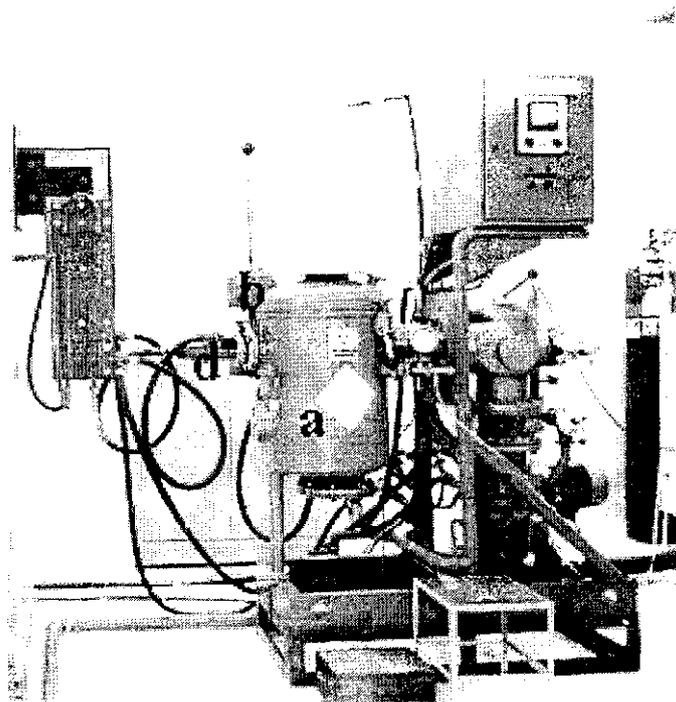


FIGURA 3.1 - Forno de indução Leybold-Heraeus, modelo IW-7P.

3.1.2 Fonte.

O forno do laboratório de fusão de ligas do CDTN tem incorporado a ele uma fonte universal, marca EMA, modelo MFAS 50, projetada para operações de aquecimento indutivo, com uma saída de 50 kW de potência. Esta fonte (Figura 3.2), contém um gerador de média frequência ($4,8\text{ kHz}$), um banco de capacitores em paralelo com o gerador, para compensação da potência de saída, uma unidade para excitar o gerador e um painel de instrumentação e controle [41].

Para a sua operação é necessária uma tensão de 220 V e um sistema de refrigeração para retirar o calor produzido no gerador, nos capacitores, barramento de ligação, e na bobina de trabalho que fica dentro da câmara do forno [41].

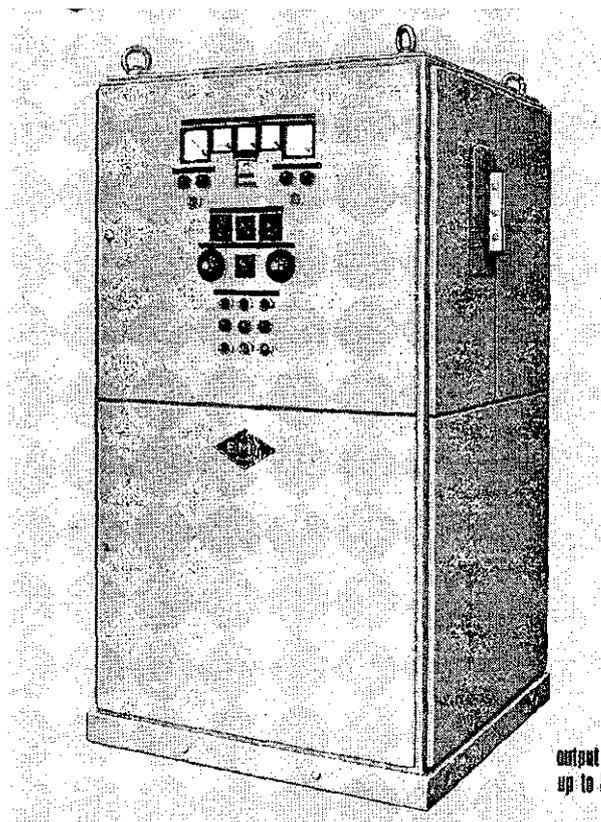


FIGURA 3.2 - Fonte de média frequência marca EMA, modelo MFAS.

3.1.3 Bobina.

A bobina de trabalho (Figura 3.3(a)), no forno de indução, faz parte do sistema de aquecimento, uma vez que é ela a responsável pela transferência da potência do gerador para o cadinho e a carga. É confeccionada usando-se tubo de cobre e está conectada aos terminais de saída da fonte e em série com o sistema de resfriamento.

3.1.4 Camisa.

Para isolar a bobina de cobre do cadinho onde é realizada a fusão, utiliza-se uma camisa de material refratário. Esta camisa, Figura 3.3(b), fabricada no próprio laboratório, é feita usando-se cimento refratário.

3.1.5 Cadinho.

No interior da bobina e dentro da camisa refratária, é colocado um cadinho de grafite, revestido internamente com um material refratário, e com capacidade para conter a carga a, em estado líquido até a metade de sua altura, afim de evitar a projeção e respingo de material líquido para fora do cadinho durante o período de homogeneização da liga.

3.1.6 Lingoteira.

Para este projeto, foi desenvolvida e confeccionada uma lingoteira bipartida, em cobre, com capacidade suficiente para conter um lingote de aproximadamente 400g da liga U_3Si_2 .

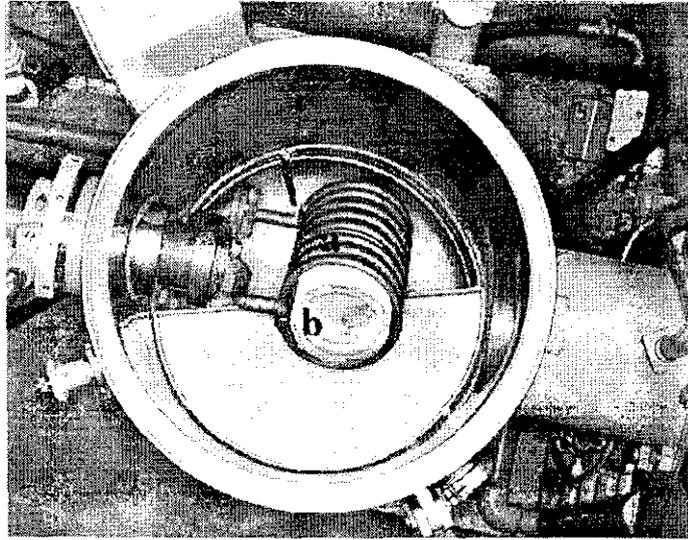


FIGURA 3.3 - Vista interna da câmara do forno de indução Leybold-Heraeus, modelo IW-7P, modificada.

3.2 MATERIAIS.

Neste trabalho foram utilizados os seguintes materiais como matéria prima:

URÂNIO NATURAL: O urânio natural foi cedido pelo IPEN, seccionado em pedaços com *1 polegada* de diâmetro e com aproximadamente *20 mm* de espessura. Antes de ser colocado no forno, o urânio foi submetido a uma decapagem química utilizando solução aquosa de ácido nítrico a *20 %* em volume, durante *20 minutos*, com o objetivo de retirar a camada de óxido formada em sua superfície.

ALUMÍNIO: Utilizou-se alumínio, também cedido pelo IPEN, que foi submetido a uma decapagem química antes de ser colocado no forno. Para isto, foi utilizada uma solução aquosa de hidróxido de sódio a *30%* em peso, com o objetivo de retirar a camada de óxido superficial.

SILÍCIO: O silício também foi cedido pelo IPEN e, antes de ser utilizado, sofreu um processo de limpeza química, usando-se acetona.

CIMENTO REFRAATÁRIO: Cimento a base de alumina, contendo 96,0% de Al_2O_3 , 0,1% de SiO_2 , 3,6% de CaO e 0,1% de Fe_2O_3 , e com uma temperatura máxima de uso em torno de 1800°C.

Os materiais de partida, urânio, alumínio, silício e cimento refratário foram analisados inicialmente por raios x, com a intenção de identificar as impurezas, conforme visto na Tabela 3.1. O silício foi, posteriormente, submetido à análise química para se medir o nível da contaminação, que havia sido detectada na análise por raios x, conforme visto na Tabela 3.2.

TABELA 3.1 - Impurezas presentes nos materiais de partida (análise por raios x).

Amostra	Elemento Identificador			
	Predominante	Maior	Menor	Traço
Urânio	U	-	-	Fe
Alumínio	Al	-	-	-
Silício	Si	-	Al	-
Cimento refratário	Al	Ca	Si	Pb, Ga, Zn, Cu, Fe, Ti, K

Método empregado :Fluorescência de raios x.

TABELA 3.2 - Teor de impureza presente no silício (% em peso).

Amostra	Teor de Alumínio
Silício	0,13 ± 0,02

Método empregado : Espectrometria de absorção atômica.

3.3 METODOLOGIA.

O objetivo deste item será descrever a montagem utilizada dentro da câmara do forno de indução e os procedimentos que foram seguidos nas fusões das ligas estudadas.

3.3.1 Revestimento do cadinho de grafita.

Pelo fato de as ligas de urânio não poderem ficar em contato com a grafita em altas temperaturas, devido à alta reatividade com o carbono, foi desenvolvido, inicialmente, um processo de obtenção de cadinhos para serem utilizados na fusão destas ligas [42,43]. Para a confecção destes cadinhos foram utilizados os óxidos de alumínio, tório e zircônio. Paralelamente, foi pesquisado um processo de revestimento do cadinho de grafita utilizando estes mesmos materiais, dispersos em meio aquoso, que pudessem ser aplicados com pincel, formando uma fina camada.

Após as fusões preliminares, que tiveram, como objetivo testar os cadinhos de alumina, tória e zircônia, a eficiência do revestimento do cadinho de grafita e ajustar as variáveis do processo, isto é, potência empregada na fusão e o tempo de permanência da carga no estado líquido, notou-se que os cadinhos de tória e zircônia não suportavam as altas taxas de aquecimento necessárias no processo e que, quando se utilizava estes materiais como revestimento, este partia-se, deixando a grafita em contato com a carga, provocando a contaminação da liga.

Foi, então, verificada a possibilidade de se usar um cimento refratário à base de alumina, que fosse inerte e suportasse as altas taxas de aquecimento necessárias. Este material foi preparado usando-se água destilada, em quantidade suficiente para dar a consistência necessária, e aplicado nas paredes internas do cadinho de grafita, formando uma camada com aproximadamente 5 mm de espessura. A seguir, o cadinho foi deixado em repouso por aproximadamente 24 horas, com o objetivo de dar tempo do cimento secar e adquirir resistência mecânica. A seguir, foi aquecido lentamente até a temperatura de 100 °C, para retirar umidade, e, logo após, foi aquecido sob vácuo até 1800 °C para sinterizar e eliminar impurezas voláteis. Com este procedimento, verificou-se que o revestimento adquiriu a resistência necessária para ser submetido também aos testes preliminares de fusão.

No final dos testes, optou-se pelo processo de revestimento do cadinho de grafita com cimento refratário, devido à sua maior facilidade de aplicação e também por ter sido aquele que apresentou maior eficiência na proteção do cadinho [44].

3.3.2 Montagem usada nas fusões.

Nas fusões das ligas U-Si e U-Al efetuadas neste trabalho, adotou-se a montagem mostrada na Figura 3.3, na qual se pode ver a bobina de trabalho confeccionada com tubo de cobre e, no seu interior, a camisa cerâmica, para isolar a bobina do cadinho de grafita.

Dentro dessa camisa refratária é colocado o cadinho de grafita, revestido internamente com o cimento à base de alumina.

3.3.3 Condições usadas nas fusões das ligas U-Si e U-Al.

Em todas as fusões foram adotados os mesmos procedimentos básicos, ou seja, as matérias primas após os passos de limpeza descritos no item 3.2, foram pesadas, e colocadas dentro do cadinho de grafite. A câmara do forno foi evacuada até um vácuo melhor que 10^{-3} Torr, sendo em seguida injetado argônio comercial até a pressão atingir um valor de 300 a 400 Torr. O forno foi ligado, e as potências usadas nos aquecimentos podem ser vistas nas Tabelas 3.3 a 3.5.

Nas fusões das ligas U-Si a operação de basculamento foi executado 1 min após a fusão da carga. Nas fusões das ligas U-Al, fez-se primeiro um aumento na potência do forno, logo após a fusão da carga, com o objetivo de aumentar a temperatura do banho, e 1 min após este aumento de potência é que foi feito o basculamento.

Foi utilizada uma lingoteira confeccionada em cobre, com a finalidade de promover um resfriamento rápido do fundido, e evitar assim, a formação das outras fases que são possíveis de ocorrerem nos sistemas U-Si e U-Al.

A Tabela 3.3 abaixo, apresenta as condições que foram usadas nas fusões das ligas U-Si.

TABELA 3.3 - Condições para as fusões das ligas U-Si.

Corrida	1ª	2ª	3ª	4ª	5ª	6ª	7ª	8ª
Urânio(g)	339,7	330,7	374,4	318,5	362,3	301,3	307,0	273,0
Silício(g)	27,5	26,8	30,4	25,8	28,5	23,7	24,2	21,5
Total(g)	367,2	357,5	404,8	344,3	390,8	325,0	331,2	294,5
Potência(kW)	10	10	10	10	20	10	10	10

Com a intenção de, em primeiro lugar, determinar as variáveis de processo, para a fusão da liga U-Al, foram realizadas diversas corridas. Em todas elas as condições e montagem interna da câmara do forno permaneceram as mesmas. A Tabela 3.4 abaixo mostra as condições usadas na fusão destas ligas.

TABELA 3.4 - Condições para as fusões das ligas U-Al.

Corrida	2 ^a (b)	3 ^a	4 ^a (a)	6 ^a (b)	7 ^a	9 ^a	11 ^a (b)	12 ^a	13 ^a
Urânio(g)	26,3	75,0	-	-	163,0	-	-	170,3	488,1
Alumínio(g)	13,8	32,0	-	-	70,0	-	-	69,9	210,2
Total(g)	40,1	107,0	107,0	273,8	233,0	135,0	196,0	240,2	698,3
Potência até Fusão(kW)	10	15	-	10	10	10	10	10	10
Potência após Fusão (kW)	20	20	-	20	20	25	25	20	20

(a) - Sobras da 2^a fusão + urânio e alumínio para completar a carga.

(b) - Refusão da corrida anterior, na qual não ocorreu lingotamento.

Em seguida, com a finalidade de medir o rendimento do processo, foram programadas mais cinco fusões de acordo com a Tabela 3.5 abaixo.

TABELA 3.5 - Condições para as fusões complementares das ligas U-Al.

Corrida	15	16	17	18(a)	19(b)
Urânio(g)	184,4	176,0	181,0	-	-
Alumínio(g)	62,8	59,9	61,6	-	-
Total(g)	247,2	235,9	242,6	193,6	153,3
Potência até fusão(kW)	20	20	20	20	20
Potência após fusão(kW)	25	30	30	30	30

(a)- Corresponde à refusão da corrida número 14.

(b)- Corresponde à refusão das sobras das corridas anteriores, que ficaram retidas no cadinho.

4.0 RESULTADOS.

4.1 RESULTADOS OBTIDOS NAS FUSÕES DAS LIGAS U-Si.

Após as fusões os lingotes foram pesados e documentados. Em seguida foram retiradas amostras para análises química e difratométrica, cujos resultados são mostrados nos itens 4.1.2 e 4.1.3.

Nas Figuras 4.1 e 4.2 são apresentados os lingotes provenientes das corridas 5 e 6. Podemos observar que a lingoteira de cobre utilizada nestas fusões permite obter lingotes que apresentam um bom acabamento superficial

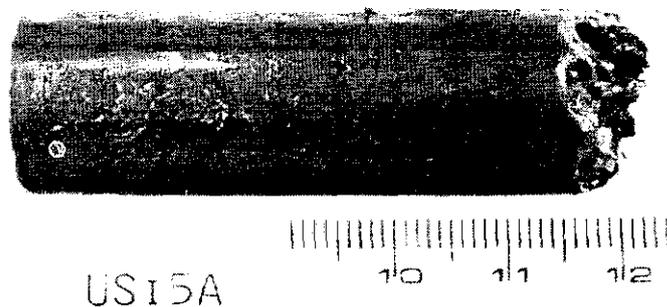


FIGURA 4.1 : Lingote U-Si da 5ª corrida.

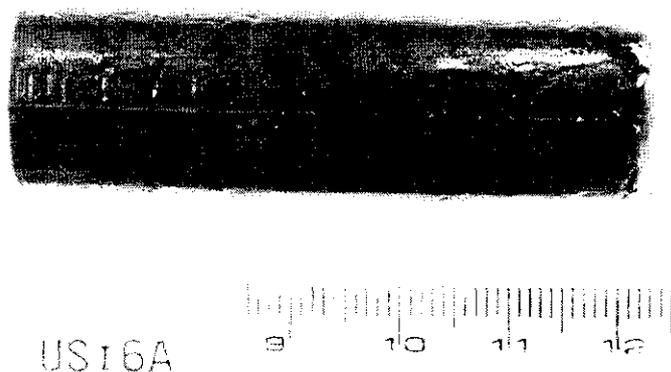


FIGURA 4.2 : Lingote U-Si da 6ª corrida.

4.1.1 Rendimento do processo.

Na Tabela 4.1 são apresentados os dados referentes aos pesos dos lingotes obtidos nas fusões da liga U-Si, bem como das quantidades de U e Si utilizadas nestas fusões. A partir destes dados foram calculados os rendimentos ((peso do lingote / peso total de U e Si) x 100) de cada corrida, os quais são também mostrados na Tabela 4.1.

TABELA 4.1 - Condições usadas nas fusões das ligas U-Si.

Corrida	1 ^a	2 ^a	3 ^a	4 ^a (a)	5 ^a (b)	6 ^a	7 ^a	8 ^a
Total(g)	367,2	357,5	404,8	344,3	390,8	325,0	331,2	294,5
Lingote(g)	356,8	323,9	386,3	349,1	325,9	322,5	328,2	293,6
Rendimento(%)	97,2	90,6	95,4	-	83,4	99,2	99,1	99,7
Potência(kW)	10	10	10	10	20	10	10	10
Tempo(min)	9,5	9,0	10	9,5	6,3	8,2	9,2	9,2
N.º de Fusões(c)	1	2	3	4	1	1	2	3

(a) Nesta corrida, o lingote ficou com uma massa maior, devido ao fato de se ter retirado do cadinho sobras das corridas anteriores, pois sempre fica algum material retido dentro do cadinho após o lingotamento.

(b) Nesta corrida, o revestimento do cadinho não suportou o aquecimento, talvez por ter sido utilizada uma potência maior, e ficou inutilizado, retendo uma quantidade maior de material dentro do cadinho.

(c) Número de fusões suportadas pelo revestimento do cadinho antes de se deteriorar.

4.1.2 Difração de raios x.

Na Figura 4.3 é mostrado o difratograma referente a uma amostra retirada do lingote da corrida número 7. Nesta figura estão indicados os picos relativos à fase U_3Si_2 . Como pode ser observado nesta figura, houve a ocorrência apenas da fase U_3Si_2 . Na obtenção deste difratograma foram utilizadas as seguintes condições:

Marca : Rigaku;	Fator de escala : 800;
Modelo : Geigerflex;	Constante de tempo : 2;
Radiação : Cu/Monocromador de grafita;	Velocidade do goniômetro : 4°2θ/min;
Tensão : 40 kV;	Velocidade do registrador : 20 mm/min.
Corrente : 30 mA;	

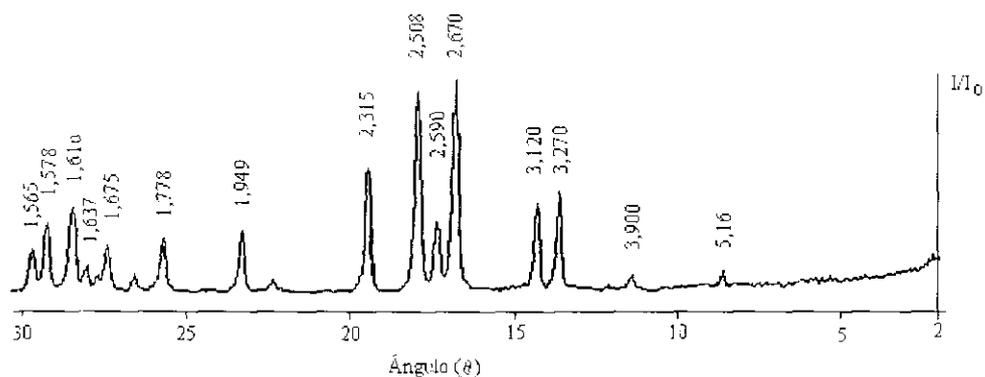


FIGURA 4.3 – Difratograma de uma amostra da liga U-Si proveniente da corrida número 7.

4.1.3 Análise química.

Dos lingotes provenientes das corridas 1 a 8 foram retiradas amostras para serem usadas nas determinações dos teores de urânio, silício e carbono (Tabelas 4.2, 4.3, 4.4). Com a intenção de verificar se estava ocorrendo contaminação da liga pelo revestimento, foram feitas análises químicas para dosar os teores de alumínio, cálcio e ferro, em uma amostra retirada do lingote da corrida número 5 (Tabela 4.5).

Os métodos empregados nestas análises foram: titulação potenciométrica para o urânio, gravimetria para o silício, combustão direta para o carbono e espectrometria de absorção atômica para alumínio, cálcio e ferro.

TABELA 4.2 - Teores de urânio e silício nas ligas U-Si (% em peso).

Corrida	Urânio	Silício
1	91,9 ± 0,1	7,4 ± 0,1
2	92,6 ± 0,1	7,5 ± 0,1
3	92,4 ± 0,1	7,5 ± 0,1
4	91 ± 1	5,7 ± 0,6
5	91,4 ± 0,2	7,2 ± 0,1
6	92,0 ± 0,2	6,8 ± 0,1
7	92,0 ± 0,2	6,9 ± 0,1
8	91,9 ± 0,2	6,8 ± 0,1

TABELA 4.3 - Teores de urânio e silício presentes em uma amostra proveniente da mistura das corridas 1 a 4 da liga U-Si (% em peso).

Teores	Urânio	Silício
Especificados[3]	> 91,9	7,4 < Si < 7,9
Obtidos no CDTN	92,2 ± 0,2	7,3 ± 0,2

TABELA 4.4 - Teor de carbono nas ligas U-Si (% em peso).

Corrida	Carbono
Especificado [3]	0,1
1	0,06 a 0,39
2	0,06 a 0,11
3	0,12 a 0,15
4	0,13 a 0,28
5	0,068 ± 0,007
6	0,10 ± 0,01
7	0,022 ± 0,002
8	0,033 ± 0,003

TABELA 4.5 - Teores de impurezas em uma amostra da liga U-Si da 5ª corrida.
(% em peso)

Corrida	Alumínio	Cálcio	Ferro
Especificado[3]	0,06	-	0,1
5ª	$0,47 \pm 0,05$	$0,013 \pm 0,003$	$0,079 \pm 0,008$

4.2 RESULTADOS OBTIDOS NAS FUSÕES DAS LIGAS U-Al.

Depois de retirados do forno, os lingotes foram pesados e documentados. Alguns lingotes foram seccionados longitudinalmente e, deles, retiradas amostras para análises química e difratométrica. Estas amostras foram retiradas de diversos pontos do lingote, com a intenção de verificar a sua homogeneidade. Nas Figuras 4.4 e 4.5, são vistos dois dos lingotes seccionados, evidenciando as posições de onde foram retiradas as amostras para análise química e difratométrica. Podemos notar que a lingoteira de cobre utilizada nestas fusões permite obter lingotes com bom acabamento superficial.



FIGURA 4.4 - Lingote U-Al da 7ª corrida.

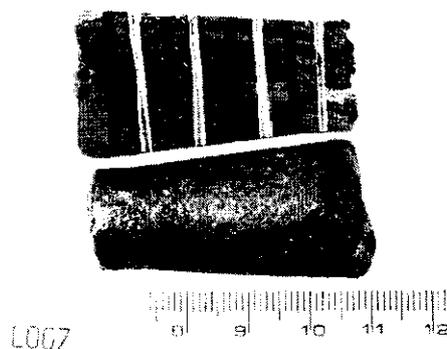


FIGURA 4.5 : Lingote U-Al da 11ª corrida.

4.2.1 Rendimento do processo.

Na Tabela 4.6 abaixo, são apresentados os pesos dos lingotes obtidos nas corridas 15 a 19 da liga U-Al, e as quantidades totais de urânio e alumínio utilizados nestas fusões. Com esses dados foram calculados os rendimentos de cada corrida ((peso do lingote / peso total de urânio e alumínio) x 100), que também são mostrados na Tabela 4.6.

TABELA 4.6 - Condições usadas nas fusões das ligas U-Al.

Corrida	15(a)	16	17	18(b)	19(c)
Total(g)	247,2	235,9	242,6	193,6	153,3
Lingote(g)	248	234,9	232,7	189,2	141,1
Rendimento(%)	-	99,6	95,9	97,7	92,0
Potência até fusão(kW)	20	20	20	20	20
Potência após fusão(kW)	25	30	30	30	30
Tempo total(min)	4,5	4,6	5,0	11,8	12,4
Número de fusões(d)	2	3	4	5	6

(a)- O aumento da massa deve-se ao ganho de material proveniente da corrida número 14, que não havia saído totalmente do cadinho.

(b)- Corresponde à refusão da corrida número 14.

(c)- Corresponde à refusão de todas as sobras das corridas anteriores, que ficavam retidas no cadinho, eram retiradas posteriormente e reservadas.

(d)- Número de fusões suportadas pelo revestimento do cadinho antes de se deteriorar.

4.2.2 Difração de raios x.

Na Figura 4.6 é mostrado o difratograma referente a uma amostra retirada do lingote da corrida número 19. Nesta figura estão indicados os picos referentes à fase UAl_3 , e como pode ser visto neste difratograma, houve a ocorrência apenas desta fase. As condições de operação do difratômetro foram as mesmas daquelas utilizadas para a liga U-Si.

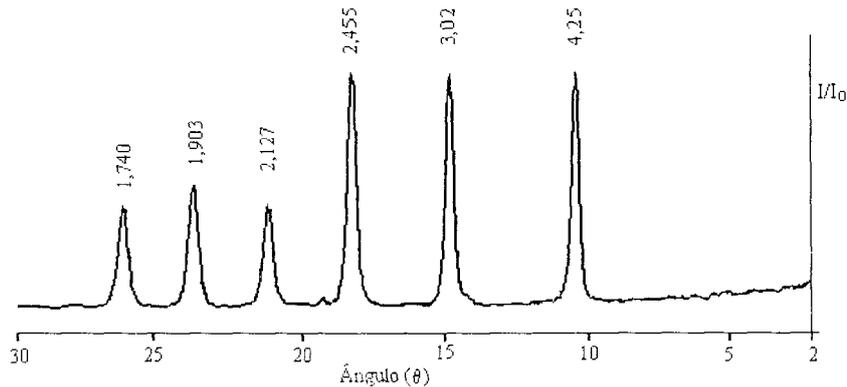


FIGURA 4.6 – Difratograma de uma amostra da liga U-Al proveniente da corrida número 19.

4.2.3 Análise química.

Dos lingotes provenientes das corridas 12, 15, 16, 17, 18 e 19 foram retiradas amostras para serem usadas nas análises de urânio, alumínio e carbono (Tabelas 4.7 e 4.8). Com a intenção de verificar se estava ocorrendo contaminação da liga pelo revestimento, foram feitas análises de cálcio, ferro e silício, em uma amostra proveniente da corrida número 15 (Tabela 4.9).

Os métodos empregados nestas análises químicas foram: titulação potenciométrica para o urânio, volumetria para o alumínio, combustão direta para o carbono, gravimetria para o silício e espectrometria de absorção atômica para o cálcio e ferro.

TABELA 4.7 - Teores de urânio e alumínio nas ligas U-Al (% em peso).

Corrida	Urânio	Alumínio
Teor nominal	74,6	25,4
12	69,8 ± 0,1	30,2 ± 0,1
15	72,2 ± 0,2	26,0 ± 0,8
16	72,6 ± 0,2	25,5 ± 0,8
17	72,8 ± 0,2	25,6 ± 0,8
18	70,5 ± 0,2	28,6 ± 0,8
19	72,0 ± 0,2	26,8 ± 0,8

TABELA 4.8 - Teor de carbono nas ligas U-Al (% em peso).

Corrida	Carbono
Especificado [24] ^a	0,3
15	0,037 ± 0,004
16	0,034 ± 0,003
17	0,033 ± 0,003
18	0,044 ± 0,004
19	0,043 ± 0,004

a) - Teor máximo permitido para esta liga.

TABELA 4.9 - Teores de impurezas em uma amostra da liga U-Al retirada da 15^a corrida (% em peso).

	Silício	Cálcio	Ferro
Especificado [24] ^a	0,2	----	----
15 ^a	0,11 ± 0,01	0,031 ± 0,006	0,10 ± 0,01

a) - Teor máximo permitido para a liga

5.0 DISCUSSÃO DOS RESULTADOS.

Diante dos resultados obtidos nas análises químicas e difratométricas, pode-se dizer o seguinte:

5.1 LIGA U-Si.

Conforme visto nas Tabela 4.2 e 4.3, apenas a corrida número 5 apresentou teor de urânio abaixo do valor especificado na literatura para esta liga, que é de $> 91,9 \%$ [3]. Mesmo assim, verifica-se que o teor encontrado, $91,4 \pm 0,2 \%$, está muito próximo do valor especificado. Ao se analisar o diagrama de equilíbrio de fases para o sistema U-Si (Figura 2.6), em temperaturas abaixo de 600°C e considerando-se um teor de urânio de 92% , verifica-se que este ponto corresponde a um campo bifásico, no qual a fase USi deve aparecer em quantidades próximas a 20% em volume. Entretanto, de acordo com os resultados obtidos através da análise por difração de raios x, Figura 4.3, houve a ocorrência apenas da fase U_3Si_2 . Portanto, se houve a formação da fase USi, esta ocorreu em quantidade muito pequena, estando portanto abaixo do limite de detecção do equipamento. Pode-se dizer, com isto, que o resfriamento em lingoteira de cobre é muito rápido, não havendo tempo para que ocorra a reação de formação da fase USi a 1570°C .

Dos resultados apresentados na Tabela 4.4, observa-se que apenas duas corridas apresentaram teores de carbono acima do especificado na literatura para esta liga (as corridas 3 e 4 apresentaram os limites inferiores da faixa de teores acima de $0,1 \%$). Na Tabela 4.5, são apresentados os teores de alumínio, cálcio e ferro, que podem ter vindo do material usado no revestimento do cadinho. Verifica-se que o teor de alumínio está acima do valor especificado, que é de $0,06 \%$ em peso. A presença de alumínio na liga, da ordem de $0,47 \%$ em peso deve-se em parte ao fato do silício utilizado já conter um pouco de alumínio, conforme visto na Tabela 3.2. Esta contaminação com alumínio no entanto não chega a ser prejudicial, visto que o composto U_3SiAl ($\text{U} + 3,5\%\text{Si} + 1,5\%\text{Al}$) também é utilizado como combustível nuclear, conforme pode ser visto na Tabela 2.7 [9]. O teor de ferro está bem abaixo do especificado na literatura, e o cálcio, com um teor de $0,013 \%$ pode ser considerado muito baixo, não se tendo entretanto um valor de referência na literatura com o qual possa ser comparado. Em vista dos resultados apresentados acima, Tabelas 4.4 e 4.5, pode-se dizer que o processo utilizado para revestir o cadinho de grafita foi eficiente, pois impediu que a liga fosse contaminada com carbono e outras impurezas em níveis acima dos valores especificados

A Tabela 4.1, mostra que o rendimento mínimo encontrado nas diversas corridas foi de 90,6 % e o rendimento médio de 96,9 %. Para esse cálculo foram desprezadas as corridas 4 e 5, visto que na corrida número 4 a massa do lingote ficou maior do que a soma das massas dos reagentes e na corrida número 5 o rendimento foi anormalmente baixo (83,4 %). Isto se deveu ao fato de ter-se usado uma potência de 20 kW e, como consequência, o revestimento do cadinho não suportou o aumento de temperatura decorrente deste aumento de potência.

Observa-se também na Tabela 4.1 que o tempo total do processo, desde o início do aquecimento até o término do basculamento, é de 8 a 10 minutos ao se usar uma potência de 10 kW, e que o revestimento do cadinho de grafita pode ser utilizado em até 4 fusões sucessivas.

5.2 LIGA U-Al

Tendo em vista os resultados das análises químicas apresentadas na Tabela 4.7, verifica-se que os teores de urânio estão um pouco abaixo do teor nominal. Ao se analisar o diagrama de equilíbrio de fases do sistema U-Al (Figura 2.5) em temperaturas abaixo de 600°C, e considerando um teor de 72 % de urânio, nota-se que esta concentração está dentro de um campo bifásico, no qual ocorrem as fases UAl_3 e UAl_4 , onde a fase UAl_4 deveria ocorrer em quantidades acima de 45 % em volume. Entretanto, como se pode observar no difratograma apresentado na Figura 4.6, houve o aparecimento apenas da fase UAl_3 . Verifica-se que, apesar da possibilidade de formar a fase UAl_4 , esta não ocorreu, sendo isto uma indicação de que não houve a reação de formação desta fase a 730°C. Pode-se dizer que esta inibição é devida ao fato de ter sido usada uma lingoteira de cobre, que promove um resfriamento rápido da carga, não dando tempo de ocorrer a reação peritética de formação da fase UAl_4 .

De acordo com os resultados das análises de carbono apresentados na Tabela 4.8, e com o número de fusões mostrados na Tabela 4.6, verifica-se que o revestimento do cadinho de grafita, usado nestas fusões, suportou bem a alta taxa de aquecimento a que foi submetido, impedindo o contato da carga no estado líquido com a grafita, e evitando a sua contaminação, uma vez que os teores de carbono encontrados ficaram abaixo do valor especificado na literatura.

Conforme pode ser observado na Tabela 4.9, foram encontrados silício e ferro com teores de 0,11 e 0,10 %, respectivamente. O teor de silício está dentro da especificação obtida na literatura [24]. O teor de ferro também estará dentro da faixa, se for levado em conta o

teor especificado para a liga U-Si, visto que não foi encontrado o seu teor para a liga U-Al na literatura. O cálcio com um teor que pode ser considerado baixo (0,031%), também não tem um valor de referência na literatura com o qual possa ser comparado. Em vista desses resultados, podemos dizer que o processo utilizado para o revestimento do cadinho de grafita mostrou-se adequado, pois não contaminou a liga U-Al em níveis acima do verificado na literatura.

Pode-se observar na Tabela 4.6 que, quando se usa uma potência inicial de 20 kW , o tempo total de operação, até o término do basculamento, fica em torno de *4 a 5 minutos*, o que para efeitos práticos é considerado um processo rápido, pois ajuda a evitar a formação da fase UAl_4 , e aumenta a vida útil do revestimento do cadinho, visto que, com este revestimento, foi possível realizar seis fusões sucessivas.

Ainda de acordo com os dados da Tabela 4.6, verifica-se que o rendimento mínimo obtido nestas corridas foi de $92,0\%$, sendo o valor médio de $96,3\%$. Este valor médio foi calculado usando-se as quatro últimas corridas da liga U-Al.

6.0 CONCLUSÕES.

Levando-se em consideração os resultados obtidos neste trabalho, pode-se dizer o seguinte:

As adaptações, no sistema de basculamento e na bobina, efetuadas na câmara do forno de indução permitiram que a carga líquida do cadinho de grafita fosse transferida quase que totalmente para a lingoteira, o que contribuiu para o bom rendimento obtido;

Apesar das fases U_3Si_2 e UAl_3 apresentarem composições estequiométricas bem definidas, conforme visto nos diagramas de equilíbrio de fases, e ser difícil de obter lingotes com uma única fase, o procedimento adotado nas fusões permitiram que estas fases fossem produzidas sem a presença das fases vizinhas;

O revestimento do cadinho de grafita suportou as altas taxas de aquecimento usadas nas fusões, e foi possível efetuar até seis fusões sucessivas sem que este se danificasse;

O revestimento interno (refratário à base de Al_2O_3) utilizado no cadinho de grafita impediu que as ligas fossem contaminadas por carbono em níveis acima do especificado na literatura;

As ligas não foram contaminadas com os elementos químicos, alumínio, ferro e cálcio, presentes no revestimento do cadinho de grafita, acima do especificado na literatura;

A lingoteira confeccionada em cobre, permite uma rápida velocidade de solidificação do fundido e conseqüentemente evita a formação das fases USi e UAl_4 ;

Em todos os lingotes analisados, ocorreu uma distribuição homogênea dos elementos de liga ao longo da sua seção longitudinal

A utilização de lingoteira de cobre permitiu que todos os lingotes apresentassem um bom acabamento superficial;

O processo de produção adotado neste trabalho apresentou um rendimento mínimo de 90 % na fusão da liga U_3Si_2 , e de 92 % na fusão da liga UAl_3 .

Quando comparado com outros processos, a fusão em forno de indução da liga U-Al mostrou-se adequado, pois consegue-se obter o UAl_3 sem a presença das outras fases possíveis, (UAl_2 e UAl_4) e em maior quantidade.

7.0 SUGESTÕES.

De modo a viabilizar o processo de fusão em forno de indução, para a produção da liga U_3Si_2 , utilizada na fabricação dos elementos combustíveis do reator IEA-R1, é necessário fazer-se um estudo para o aumento da escala de produção, com o objetivo de obter-se lingotes com aproximadamente 3,0 kg;

Com a intenção de viabilizar o aumento da escala de produção de ligas, é necessário que se faça uma adaptação na câmara do forno de indução, de modo a permitir que o vazamento da carga líquida ocorra por baixo, através de um orifício feito no fundo do cadinho de grafite. Desse modo pode-se utilizar uma bobina com um diâmetro maior que o atual, uma vez que não haverá necessidade de basculamento;

Para que se tenha o domínio completo no campo da produção de combustíveis metálicos para reatores de pesquisas, é necessário que seja feito um estudo a respeito da produção das outras fases dos sistemas U-Al (UAl_2 e UAl_4) e U-Si (U_3Si e U_3SiAl), bem como do sistema U-Fe, objetivando a produção da fase U_6Fe ;

É necessário que se faça um estudo mais detalhado do processo de fusão adotado com a intenção de otimiza-lo, de modo a eliminar as perdas que ocorrem durante as fusões e conseqüentemente aumentar seu rendimento, que pode ficar acima de 99,6 %, conforme pode ser observado nas Tabelas 4.1 e 4.6. Espera-se que ao se efetuar o vazamento por baixo, conforme sugerido acima, evite-se a retenção de material dentro do cadinho, contribuindo para aumentar o rendimento do processo.

8.0 REFERÊNCIAS

- [1] MAIORINO, J. R., BITELLI, U. D.. IPEN/MB-01 Um reator nuclear projetado e construído no Brasil. Revista dos END. p. 24-29.
- [2] FERNANDES, L., MORAES, V.. Aplicação da Técnica de Troca Iônica no Processo de Purificação do Molibdênio-99. In: V CGEN, Rio de Janeiro, v. II. 1994, p. 645-646.
- [3] LAINETTI, P. E. de O., SOUZA, J. A. B. de, Jr, Oswaldo J.. Desenvolvimento do processo de fabricação de miniplacas com alta concentração de urânio contendo U_3Si_2 . In: V CGEN. Rio de Janeiro, 1994. v. II. p. 597-602.
- [4] THUMMLER, F., NAZARÉ, S., ONDRACEK, G.. The technology of UAl_3 -Al irradiation test-plates. Powder Metallurgy, v. 10, n. 20, p.264-287, 1967.
- [5] THUMMLER, F., LILIENTHAL, H. E., NAZARÉ, S.. UAl_2 -Al instead of UAl_3 Al in fuel-element plates for advanced test-reactors. Powder Metallurgy, v. 12, n. 23, p. 1-22. 1969.
- [6] NAZARÉ, S.. New low enrichment dispersion fuels for research reactors prepared by PM-Techniques. Powder Metallurgy International, v. 18, n. 3 p. 150-158, 1986.
- [7] DOMAGALA, R. F., WIENCEK, T. C., THRESH, H. R.. U-Si and U-Si-Al dispersion fuel alloy development for research Nd test reactors. Nuclear Technology, v. 62, p. 353-360, sept. 1983.
- [8] YEMEL'YANOV, V. S., YEVSITYUKHIN, A. I.. THE METALLURGY OF NUCLEAR FUEL Properties and principles of the technology of uranium, thorium and plutonium. 1th. English ed. New York. Pergamon Press, 1969.

- [9] HAMMOND, C. R.. The Elements. In: Handbook of Chemistry and Physics. 54th ed. Cleveland. CRC PRESS, 1973/1974.
- [10] BRITO, S. de S.. Aspectos Econômicos. In: INTRODUÇÃO À GERAÇÃO NÚCLEO-ELÉTRICA. Belo Horizonte, Imprensa da UFMG, 1968, p. 265-308.
- [11] MELLO, J. C.. Fundamentos Teóricos. In: INTRODUÇÃO À GERAÇÃO NÚCLEO-ELETRICA, Belo Horizonte, Imprensa da UFMG, 1968, p. 1-136.
- [12] ALBERT, G.G., METALURGIA FÍSICA PARA ENGENIEROS. Reading Addison-Wesley Publishing Company, 1965. Pg. 57-58, 200.
- [13] PIRES, M. A. F., DANTAS, E. S. K., SILVA, C.M., GELLATTI, M. J. G., SILVA, A.V.. Caracterização química de dispersões UAl_x. In: V CGEN, Rio de Janeiro. v. II, 1994, p. 503-504.
- [14] Jr., NEIL, J. CARSON.. Induction melting of uranium base alloys. Nuclear Metallurgy. p. 23-29.
- [15] ABREU, S.F., MATERIAIS DE CONSTRUÇÃO, CERÂMICA E REFRATÁRIOS. In: RECURSOS MINERAIS DO BRASIL, 2 ed., Editora Edgard Blücher Ltda, São Paulo, 1973, p. 163-165.
- [16] ELLIOT, R. P., Constitution of Binary Alloys, First Supplement, MacGraw Hill, N.Y., 1965, p.233-234.
- [17] COUTINHO, T. de A.. METALOGRAFIA DE NÃO FERROSOS - Análise e Prática. ed. Edgard Blücher Ltda, São Paulo, 1980, p 24 a 40
- [18] WILKINSON, W. D.. URANIUM METALLURGY volume II: Uranium corrosion and alloys. 1th ed., John Wiley & Sons Inc., N.Y., 1962.

- [19] LAMARSH, J.R., INTRODUCTION TO NUCLEAR ENGINEERING, 1th ed., Addison-Wesley, N.Y., 1975.
- [20] VOL. A.E.. HANDBOOK OF BINARY METALLIC SYSTEMS - Structures and Properties. Vol. I, ed. by S. Monson, Jerusalem, 1966, p.313-315
- [21] HANSEN, M.. CONSTITUTION OF BINARY ALLOYS, 2 ed.. MacGraw Hill, N.Y., 1958, p. 143-144
- [22] NAZARÉ, S., ONDRACEK, G., THUMMLER, F.. Investigations on UAl_x -Al dispersion fuels for high-flux reactors. Journal of Nuclear Materials, n. 56, p. 251-259, 1975.
- [23] NETO, R. M. L., FILHO, J. M., FERREIRA, P. I.. Síntese por combustão do UAl_x : um estudo preliminar. In: V CGEN, Rio de Janeiro, v. II, 1994, p. 383-387.
- [24] LIMA, W. C. de, FERREIRA, P. I., LAINETTI, P. E. de O.. Obtenção do composto UAl_x por redução-destilação do UF_4 com alumínio. In: V CGEN, Rio de Janeiro, v. III, 1994, p. 775-780.
- [25] NAZARÉ, S.. Low enrichment dispersion fuels for research and test reactors. Journal of Nuclear Materials, 1984, p. 14-24.
- [26] TESTART, E., CASTILLO, J., CHÀVEZ, J. C. et al.. Siliciuros de uranio como alternativa de combustibles para reactores de investigacion. Nucleotecnica, n. 11, p. 31-36, oct. 1986.
- [27] HANSEN, M.. CONSTITUTION OF BINARY ALLOYS. 2nd ed, MacGraw Hill, N.Y., 1958, p. 1199-1201.
- [28] CAMPBELL, I. E., SHERWOOD, E. M.. High Temperature Materials and Technology, 1th ed., New York, Jonh Wiley & Sons Inc. 1967.

- [29] KOSHIMIZU, S., LIMA, L. F. C. P. de, NETO, R. M. L.. Obtenção de pequenos botões da liga UAl_x no forno a arco de eletrodo não consumível. In: CGEN, Rio de Janeiro, v. II, 1994. p. 425-427.
- [30] BETZ, U. et al. Vacuum induction melting-New developments in equipment, design and process control. In: The ninth international vacuum metallurgy conference on special melting, San Diego, apr., 1988.
- [31] A importância do aquecimento indutivo. Máquinas e Metais, n. 122, mar. 1975, p. 28-31.
- [32] CADDEN, J. L., JESSEN, N. C. Jr., LEWIS, P. S. Jr.. Melting of uranium alloys. Oak Ridge y-12 Plant, Tenn., Dec. 1973. Y-DA-5323.
- [33] JAYNES, G. E., TAUB, J. M., DOLL, D. T.. Development of casting techniques for uranium and uranium alloys. Nuclear Metallurgy, p. 1-15.
- [34] BUNTZ, B. J.. Uranium ingot production at atomic energy commission feed material production centers. Nuclear Metallurgy, p. 17-21
- [35] JESSEN, N. C. Jr.. Melting and casting of uranium and uranium alloys. Oak Ridge Y-12 Plant, Tenn., Jan., 1982. Y/DV-213.
- [36] CONDON, J. B., HOLCOMBE, C. E. Jr.. Crucible materials to contain molten uranium. Oak Ridge y-12 plant, Tenn., sep., 1977. Y-2084.
- [37] JESSEN, N. C. Jr., HOLCOMBE, C. E. Jr., TOWNSEND, A.B.. Application of metal oxide refractories for melting and casting reactive metals. Oak Ridge Y-12 Plant, Tenn., may 1979. Y/DA-8225
- [38] HOLCOMB, D. A.. New yttria plasters. Oak Ridge Y-12 Plant, Tenn., jan., 1978. Y-2104.

- [39] KOGER, J. W., HOLCOMBE, C. E., BANKER, J. G.. Coatings on graphite crucibles used in melting uranium. *Thin Solid Films*, n. 39, 1976, p. 297-303
- [40] Vacuum Induction Sintering And Heat Treatment Furnace IW-7. Leybold Heraeus, Catálogo de equipamento
- [41] Medium Frequency Universal Plant. Elektro-Maschinen KG-EMA, Catálogo de Equipamento.
- [42] BRAGA, D. M., SILVA, E. G. da. Fabricação de Peças Cerâmicas por Processo de Colagem. CDTN. Belo Horizonte, Nota Informativa, CT1-01/91, mar., 1991.
- [43] BRAGA, D. M. SANTOS, L. L.. Fabricação de Peças Cerâmicas por Processo de Colagem-2ª Parte. CDTN, Belo Horizonte, Nota Informativa, CT1-NT-01/91, ago, 1991.
- [44] BRAGA, D.M., SILVA, E. G. da, CARDOSO, P. E.. Fusão de ligas U-Al e U-Si em forno de indução a vácuo. In: *Vegen*, v.II, p. 579-582, 1994.
- [45] SILVA, E. G. da, BRAGA, D. M., MURTA, C. C., PAULA, J. B.. Desenvolvimento e caracterização da liga UAl_x. In: III ENAN, v.II, p.774-779, 1995.
- [46] KATZ, J. J., SEABORG, G. T., MARSS, L. R.. *The Chemistry of the Actinides Elements*. V. 1, ed. Chapman and Hall, N.Y., 1986, p. 229-231.
- [47] FINNISTON, H. M., HOWE, J. P.. Metallurgy and Fuel. In: *Progress in Nuclear Energy*, Series V, ed. McGraw-Hill, N.Y., 1956, p. 503.
- [48] SILVA, E. G. da, Fusão da liga U/Si. Nota Informativa, DETS-NI 08/90, CDTN. 1990.