

**ESTUDO DE FABRICAÇÃO DA LIGA U-Zr PARA COMBUSTÍVEL DE  
REATORES TRIGA**

*por*

*Eduardo Gomes da Silva*

*Dissertação apresentada ao Curso de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares(CCTN) da Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, como requisito parcial para obtenção do Título de Mestre em Ciências e Técnicas Nucleares (M.Sc.).*

*Área de Concentração: Energia Nuclear*

*Orientador: M.Sc. PAULO EDSON CARDOSO*

*Belo Horizonte*

*Escola de Engenharia da UFMG*

*Julho/98*



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

**TÍTULO DA DISSERTAÇÃO:**

**“ESTUDO DE FABRICAÇÃO DA LIGA U-Zr PARA COMBUSTÍVEL DE REATORES TRIGA”**

**ALUNO : EDUARDO GOMES DA SILVA**

Dissertação defendida e aprovada pela Comissão Examinadora constituída por:

**Wanderley de Vasconcelos, Doutor**

**Roberto Parreiras Tavares, Doutor**

**Wilmar Barbosa Ferraz, Doutor**

**Leonardo Márcio Vilela Ribeiro, Mestre**

**ORIENTADOR:**

**Paulo Edson Cardoso, Mestre**

Belo Horizonte, 16 de julho de 1998

Área de Concentração: Energia Nuclear

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

O trabalho, uma das formas de glorificar a Deus,  
quando concluído, deixa em nosso espírito um  
sentimento de realização, alegria e paz.

Obrigado senhor !

Dedico este trabalho  
à minha esposa **Analia** e  
a meus filhos **Davi e Leandro**,  
pelo incentivo e apoio que me deram  
ao longo desta caminhada.

## AGRADECIMENTOS

- Ao M.Sc. Paulo Edson Cardoso, pela eficiente orientação e participação direta na elaboração deste trabalho;
- Ao M.Sc. Wilmar Barbosa Ferraz, pelo apoio e interesse;
- Ao Químico Daniel Martins Braga, pelo estímulo e valiosa ajuda em todas as etapas do trabalho;
- Ao técnico João Bosco de Paula, pelo eficiente apoio na execução experimental do trabalho;
- Ao M.Sc. Clécio Campi Murta, pelo incentivo e execução das análises difratométricas;
- Ao Engenheiro Roberto P.G. Monteiro Pellacani, pela execução das análises por combustão direta;
- À Engenheira Marta Maria Avelar, pela execução das análises por via úmida;
- Ao Tecnologista Wagner de Souza pela execução das análises por nêutrons retardados;
- Ao técnico Geraldo Antônio Scoralick Martins pelos serviços de solda;
- Ao técnico Antônio Pereira Santiago pela revelação das fotografias;
- À Bibliotecária Lenira Lúcia Santos Ferreira, pelo atendimento no serviço de documentação técnica;
- Aos colegas Eder Anderson e Maria das Graças Pinho, pela colaboração na edição deste trabalho;
- Aos colegas da Supervisão de Materiais e Combustível Nuclear-CT1, pelo incentivo recebido;
- Aos colegas de outras Supervisões de quem o autor recebeu apoio na execução do trabalho;
- Ao Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear, órgão pertencente à Comissão Nacional de Energia Nuclear, na pessoa do seu superintendente;
- Ao Curso em Ciências e Técnicas Nucleares da Universidade Federal de Minas Gerais, na pessoa de seu coordenador;
- A todos estes, os sinceros agradecimentos do autor.

<b>SUMÁRIO</b> .....	VII
<b>LISTA DE TABELAS</b> .....	XI
<b>LISTA DE FIGURAS</b> .....	XII
<b>RESUMO</b> .....	XV
<b>ABSTRACT</b> .....	XVI
<b>1. INTRODUÇÃO</b> .....	1
<b>2. OBJETIVO</b> .....	3
<b>3. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA</b> .....	4
<b>3.1 Características do elemento combustível do Reator TRIGA/IPR-R1</b> .....	4
3.1.1 Coeficiente prouto de temperatura do combustível 8U-ZrHn .....	6
3.1.2 Microestrutura do combustível 8U-ZrHn .....	7
3.1.3 Algumas propriedades do combustível .....	10
<b>3.2 Características do urânio</b> .....	12
3.2.1 Propriedades físicas, químicas e mecânicas .....	13
3.2.2 Propriedades como combustível nuclear .....	15
3.2.3 Processos de fusão .....	15
<b>3.3 Características do zircônio</b> .....	18
3.3.1 Propriedades físicas e mecânicas .....	19
3.3.2 Processos de fusão .....	20
<b>3.4 Características da liga Urânio-Zircônio</b> .....	24
<b>3.5 Vantagens e desvantagens das fusões por indução e a arco com eletrodo consumível</b> .....	26
3.5.1 Vantagens da fusão em forno de indução .....	26

3.5.2 Desvantagens da fusão em forno de indução .....	26
3.5.3 Vantagens da fusão em forno a arco com eletrodo consumível.....	27
3.5.4 Desvantagens da fusão em forno a arco com eletrodo consumível.....	27
3.5.5 Aspectos de segurança nas fusões em fornos a arco e de indução .....	28
<b>4. EQUIPAMENTOS E MATERIAIS.....</b>	<b>28</b>
4.1 Forno de indução.....	28
4.2 Forno a arco com eletrodo consumível .....	30
4.3 Forno tubular .....	31
4.4 Máquina de forjamento rotativo .....	32
4.5 Máquina hidráulica de tração e compressão.....	33
4.6 Câmara de luvas .....	34
4.7 Torno universal .....	34
4.8 Prensa manual .....	35
4.9 Matéria prima .....	35
<b>5. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL.....</b>	<b>37</b>
5.1 Fusão da liga U-Zr em forno a arco com eletrodo consumível.....	37
5.2 Fusão da liga U-Zr em forno de indução .....	42
<b>6. RESULTADOS .....</b>	<b>45</b>
6.1 Caracterização da liga obtida em forno a arco com eletrodo consumível .....	45
6.1.1 Análise por varredura gama.....	45
6.1.2 Análises química (A.Q.) e por nêutrons retardados (A.N.R.) .....	46
6.1.3 Análise difratométrica .....	47



	X
6.1.4 Análise metalográfica .....	48
6.1.5 Análise por auto-radiografia .....	50
6.1.6 Ensaios mecânicos .....	50
<b>6.2 Caracterização da liga obtida em forno de indução</b> .....	<b>51</b>
6.2.1 Análises química ( <i>A.Q.</i> ) e por nêutrons retardados ( <i>A.N.R.</i> ) .....	52
6.2.2 Análise difratométrica .....	56
6.2.3 Análise metalográfica .....	56
6.2.4 Análise por auto-radiografia .....	59
6.2.5 Ensaios mecânicos .....	59
<b>7. DISCUSSÕES</b> .....	<b>60</b>
<b>8. CONCLUSÕES</b> .....	<b>65</b>
<b>9. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS</b> .....	<b>67</b>

## LISTA DE TABELAS

TABELA	TÍTULO	PAGINA
3.1	Propriedades do urânio a diversas temperaturas.....	14
3.2	Mudanças de fase do urânio por ação da temperatura.....	14
3.3	Solubilidade do carbono em urânio líquido.....	18
3.4	Propriedades físicas e mecânicas do zircônio.....	20
3.5	Teor de carbono no zircônio resultante da sua fusão em cadinho de grafita a várias faixas de temperatura.....	22
3.6	Principais vantagens e desvantagens das fusões em fornos a arco e de indução.....	27
6.1	Teor de zircônio e urânio ao longo do lingote obtido em forno a arco..	46
6.2	Distribuição de urânio após refusão em forno a arco.....	47
6.3	Parâmetros dos 04 lingotes obtidos em forno de indução.....	51
6.4	Análises químicas do zircônio e urânio e por nêutrons retardados do urânio.....	53
6.5	Teor de carbono no zircônio e no urânio antes da fusão em forno de indução.....	53
6.6	Análise de carbono após fusão em forno de indução.....	54
6.7	Teor de carbono e tempo de efervescência, após a fusão dos tarugos prensados de zircônio e urânio.....	54
6.8	Variação de carbono no zircônio puro antes e após a dupla refusão em forno a arco.....	55
6.9	Análise do teor de carbono em lingotes <b>FI</b> após refusão em forno a arco.....	56

## LISTA DE FIGURAS

FIGURA	TÍTULO	PAGINA
3.1	Desenho esquemático dos componentes do elemento combustível do reator TRIGA/IPR-R1.....	6
3.2	Diagrama de equilíbrio Zr-H.....	8
3.3	Diagrama isotérmico(T.T.T) para liga 8U-Zr.H <sub>1,0</sub> .....	9
3.4	Dilatação de $\alpha$ , $\beta$ e $\gamma$ a 800°C, em função da incorporação do hidrogênio.....	10
3.5	Curvas de variação da condutividade térmica com a temperatura para o Zr, 8U-Zr e 8U-ZrH <sub>1,0</sub> .....	11
3.6	Diagrama Tensão-Deformação para 8U-Zr e 8U-ZrH.....	12
3.7	Diagrama de fases urânio-carbono.....	17
3.8	Diagrama de fases zircônio-carbono (limitado a ~20% em peso de C)..	21
3.9	Efeito do carbono na resistência à corrosão do zircônio em meio aquoso a 315°C.....	23
3.10	Diagrama de fases urânio-zircônio.....	24
3.11	Diagrama T.T.T da liga 8U-Zr.....	25
4.1	Vista geral do forno de indução, onde se vê o gerador à esquerda, a câmara no centro e, à direita, o conjunto de bombas de vácuo.....	29
4.2	Cadinho de grafita utilizado para fundir a liga U-Zr.....	29
4.3	Lingoteira utilizada no forno de indução.....	30
4.4	Camisa refratária fabricada com cimento a base de Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .....	30
4.5	Forno a arco com eletrodo consumível, mostrando a câmara de fusão, a fonte de corrente, o painel de controle, o sistema de movimentação da haste do eletrodo e a bomba mecânica de vácuo.....	31
4.6	Forno tubular utilizado no tratamento térmico de recozimento dos lingotes U-Zr.....	31
4.7	Máquina de forjamento rotativo.....	32
4.8	Conjunto de castanhas utilizadas na máquina de forjamento.....	32
4.9	Máquina Kratos na qual se realizou a etapa de prensagem da esponja de zircônio com pedaços de urânio.....	33

4.10	Matriz utilizada para prensagem dos tarugos na máquina KRATOS....	33
4.11	Câmara de luvas onde se efetua a soldagem dos tarugos.....	34
4.12	Torno Universal para usinagem da barra U-Zr.....	34
4.13	Prensa manual utilizada para desempenar a barra da liga U-Zr após o forjamento final.....	35
4.14	Urânio, após ser seccionado em pequenos pedaços, para ser compactado com a esponja de zircônio .....	36
4.15	Esponja de zircônio utilizada nas fusões nos fornos a arco e de indução.....	36
5.1	Prensagem do tarugo U-Zr, onde se vê o sistema de matriz e punção...	38
5.2	Tarugos após prensagem.....	38
5.3	Eletrodo após a soldagem de 3 tarugos, observando-se a barra de zircaloy soldada na extremidade, para fixação na haste de alimentação do forno a arco.....	39
5.4	Vista do interior da câmara do forno, onde está posicionado o eletrodo. Na parte inferior vê-se o cadinho de cobre.....	39
5.5	Lingote U-Zr após a fusão e, ao lado, um lingote usinado na superfície. Observa-se a ausência de poros ou vazios no lingote usinado .....	10
5.6	Forjamento a quente do lingote em forja rotativa.....	41
5.7	Barras da liga U-Zr após forjamento e usinagem final.....	42
5.8	Vista do interior da câmara do forno de indução, onde se vê a bobina, camisa refratária, cadinho de grafita e a lingoteira de cobre .....	43
6.1	Espectro de varredura gama determinando a distribuição de urânio ao longo do lingote <b>FA-01</b> .....	45
6.2	Difratograma realizado em amostra do lingote obtido em forno a arco.	47
6.3-a	Micrografia de amostra (forno a arco) no estado bruto de fusão. Aumento 200X.....	48
6.3-b	Micrografia da mesma amostra e região da foto anterior. Aumento 500X.....	48
6.4-a	Micrografia de amostra (forno a arco) após o tratamento térmico. Aumento 200 X.....	49
6.4-b	Micrografia da mesma amostra e região da foto anterior. Aumento 500 X.....	49

4.10	Matriz utilizada para prensagem dos tarugos na máquina KRATOS....	33
4.11	Câmara de luvas onde se efetua a soldagem dos tarugos.....	34
4.12	Torno Universal para usinagem da barra U-Zr.....	34
4.13	Prensa manual utilizada para desempenar a barra da liga U-Zr após o forjamento final.....	35
4.14	Urânio, após ser seccionado em pequenos pedaços, para ser compactado com a esponja de zircônio .....	36
4.15	Esponja de zircônio utilizada nas fusões nos fornos a arco e de indução.....	36
5.1	Prensagem do tarugo U-Zr, onde se vê o sistema de matriz e punção...	38
5.2	Tarugos após prensagem.....	38
5.3	Eletrodo após a soldagem de 3 tarugos, observando-se a barra de zircaloy soldada na extremidade, para fixação na haste de alimentação do forno a arco.....	39
5.4	Vista do interior da câmara do forno, onde está posicionado o eletrodo. Na parte inferior vê-se o cadinho de cobre.....	39
5.5	Lingote U-Zr após a fusão e, ao lado, um lingote usinado na superfície. Observa-se a ausência de poros ou vazios no lingote usinado .....	10
5.6	Forjamento a quente do lingote em forja rotativa.....	41
5.7	Barras da liga U-Zr após forjamento e usinagem final.....	42
5.8	Vista do interior da câmara do forno de indução, onde se vê a bobina, camisa refratária, cadinho de grafita e a lingoteira de cobre .....	43
6.1	Espectro de varredura gama determinando a distribuição de urânio ao longo do lingote <b>FA-01</b> .....	45
6.2	Difratograma realizado em amostra do lingote obtido em forno a arco.	47
6.3-a	Micrografia de amostra (forno a arco) no estado bruto de fusão. Aumento 200X.....	48
6.3-b	Micrografia da mesma amostra e região da foto anterior. Aumento 500X.....	48
6.4-a	Micrografia de amostra (forno a arco) após o tratamento térmico. Aumento 200 X.....	49
6.4-b	Micrografia da mesma amostra e região da foto anterior. Aumento 500 X.....	49

6.5	Foto da auto-radiografia da amostra do lingote obtido em forno a arco	50
6.6	Foto identificando o local onde foram extraídas as limalhas para análises química e por nêutrons retardados.....	52
6.7	Difratograma realizado em amostra do lingote obtido em forno de indução.....	56
6.8-a	Micrografia de amostra (forno de indução) no estado bruto de fusão. Aumento 200X.....	57
6.8-b	Micrografia da mesma amostra e região da foto anterior. Aumento 500X.....	57
6.9-a	Micrografia de amostra (forno de indução) após tratamento térmico. Aumento 200X.....	58
6.9-b	Micrografia da mesma amostra e região da foto anterior. Aumento 500X.....	58
6.10	Foto da auto-radiografia da amostra do lingote obtido em forno de indução.....	59

## RESUMO

O combustível utilizado no reator de pesquisas TRIGA-IPR/R1 é uma liga U-ZrH que contém, em peso, 8% de urânio, 91% de zircônio e 1% de hidrogênio. Esta dissertação teve como objetivo fazer um estudo da tecnologia de fabricação da liga U-Zr, utilizando os processos de fusão em fornos a arco com eletrodo consumível e de indução. São relatadas as condições experimentais de fabricação da liga empregando-se estes processos de fusão, sendo feito também um estudo comparativo destas duas tecnologias disponíveis no CDTN. A caracterização da liga é feita utilizando-se análises químicas, difratométricas, metalográficas, nêutrons retardados, autoradiografia e ensaios mecânicos. Em ambos processos, foi constatado que existem vantagens e desvantagens e, portanto, devem ser consideradas na avaliação de uso de cada um dos referidos processos.

**ABSTRACT**

The fuel used in the TRIGA-IPR/R1 research reactor is an U-ZrH alloy that contains 8% (wt) of uranium, 91%(wt) of zirconium and 1%(wt) of hydrogen. The objective of this dissertation was to study the manufacturing technology of U-Zr alloy, using the melting processes in consumable-electrode arc and induction furnaces. Experimental conditions in manufacturing such alloy using these melting processes are reported and a comparative study of these two technologies available in CDTN is developed. The characterization of the alloy is performed, using chemical, diffractometrics, metallographic analyses and delayed neutrons, self-radiography and mechanical tests. In both processes, advantages and disadvantages were found and they should be considered when using the mentioned processes.



## 1. INTRODUÇÃO

Os primeiros reatores construídos nos anos 50 e 60 utilizavam combustíveis onde se usava urânio com enriquecimento de 90 a 93 % (em peso) do isótopo físsil,  $^{235}\text{U}$ . Entretanto, face aos riscos de proliferação de armas nucleares, restringiu-se mundialmente o fornecimento de urânio com esses níveis de enriquecimento. Houve então a necessidade de optar-se pelo emprego de urânio com enriquecimento da ordem de 20 % (em peso) de  $^{235}\text{U}$  na fabricação desses elementos combustíveis. Esta limitação levou diversos países a promoverem programas de desenvolvimento de novos combustíveis, que pudessem permitir o uso de urânio com baixo nível de enriquecimento, sem perdas significativas no desempenho, segurança e custos dos reatores até então existentes.

Dentro deste contexto, a *General Atomic*, nos E.U.A, promoveu em 1956 uma “Escola de Verão”, visando desenvolver o conceito de um novo tipo de reator. Este reator deveria ser dotado de segurança intrínseca, ou seja, a segurança garantida por princípios físicos sem depender da engenharia de sistemas. Também não existia a preocupação com a geração energética, mas sim com a produção de isótopos para diagnósticos e pesquisas médicas, engenharia e indústria, bem como com o treinamento de pessoal [1]. O resultado desse esforço foi o conceito de um reator denominado TRIGA (*Training-Research-Isotope-General-Atomic*), inerentemente seguro, onde se utiliza um elemento combustível sólido ( $8\text{U-ZrH}_n$ -vide seção 3.1), composto de  $^{235}\text{U}$  enriquecido a 20% (combustível) disperso numa matriz de hidreto de zircônio- $\text{ZrH}_n$  (moderador) [2].

Para confirmar o conceito de segurança inerente, foi feito em 1959, uma demonstração de um protótipo do novo tipo de reator. Suas barras de controle foram expelidas bruscamente por um processo pneumático e a potência do reator elevou-se até  $1.500\text{ MW}$ , caindo em seguida, sem qualquer interferência externa, para  $0,5\text{ MW}$ . O transiente total de potência, apesar de sua intensidade, não durou mais que milésimos de segundo, e não houve danos para os materiais do reator e aos equipamentos e instalações [1].

A comprovada segurança dos reatores TRIGA viabiliza seu emprego sem a necessidade de uma contenção especial, podendo ser instalado em edifícios convencionais em áreas urbanas, como cidades universitárias, hospitais ou escolas [3]. De acordo com dados da AIEA (International Atomic Energy Agency) [4] existia no mundo, em Dezembro de 1994, 272 reatores de pesquisa em operação, dos quais 18% deste total, eram do tipo TRIGA.

No CDTN, o reator TRIGA/IPR-R1, instalado no prédio central desde novembro de 1960, tem sido operado a níveis de potência de até  $100\text{ kW}$  com grande flexibilidade operacional. Entretanto, a necessidade de suprir combustível para este reator que, futuramente, deverá operar com potência de  $250\text{ kW}$ , levou a Supervisão de Materiais e Combustível Nuclear do CDTN/CNEN, no contexto do programa de materiais e de pesquisa de combustíveis nucleares, a criar um projeto com o objetivo de dominar a tecnologia de fabricação do combustível  $8\text{U-ZrH}_n$ , simulando sua obtenção a partir do U natural ( $\sim 0,7\%$  em  $^{235}\text{U}$ ). A primeira etapa deste projeto, na qual está inserido este trabalho, consiste em obter e caracterizar a liga U-Zr para, subsequente, desenvolver o processo de hidretação desta liga. Assim, pretende-se adquirir capacitação para produzir este combustível e, se necessário, fabricar a recarga do elemento combustível para o reator TRIGA/IPR-R1.

Finalizando, deve-se ressaltar que a tecnologia de fabricação da liga U-Zr foi originalmente desenvolvida pela *General Atomic*, utilizando-se o processo de fusão em forno a arco com eletrodo consumível sob vácuo, obedecendo às seguintes etapas[5]:

1. Prensagem da esponja de zircônio com pedaços de urânio;
2. Soldagem dos tarugos prensados obtendo-se um eletrodo;
3. Fusão em forno a arco deste eletrodo;
4. Conformação mecânica do lingote e
5. Usinagem final.

Esta tecnologia, com algumas alterações, foi recentemente implantada no CDTN[6].

## 2. OBJETIVO

Este trabalho realiza um estudo comparativo de obtenção da liga U-Zr empregando dois processos de fusão, um em forno a arco com eletrodo consumível (FAEC) e o outro em forno de indução (FI), sendo ambos realizados sob vácuo.

No primeiro processo, a esponja de zircônio é mecanicamente misturada com fragmentos de urânio natural e a mistura, nos teores adequados, é prensada em forma de tarugos cilíndricos. Estes tarugos são soldados, de modo a formar um eletrodo da liga U-Zr a ser fundido em forno a arco com eletrodo consumível. Após a fusão, o lingote é forjado a quente em máquina de forja rotativa (Swaging) e finalmente usinado.

No segundo processo, é empregado o método de fusão em forno de indução, no qual são eliminadas as etapas de prensagem e soldagem necessárias no processo anterior. Neste, a esponja de zircônio e fragmentos de urânio natural são fundidos diretamente em um cadinho de grafita e vazados em lingoteira de cobre com as dimensões do eletrodo utilizado no forno a arco com eletrodo consumível. Entretanto, como urânio e zircônio são elementos altamente reativos, o contato destes metais no estado líquido com o cadinho de grafita, apresenta o inconveniente de serem contaminados pelo carbono. Portanto, é estudada a possibilidade de emprego dessa rota de fabricação, através da redução dos níveis desta contaminação, via diminuição do tempo de efervescência do banho, alteração no posicionamento da carga dentro do cadinho e ainda com refusões em forno a arco com eletrodo consumível. É feito também um estudo comparativo destas duas tecnologias disponíveis no CDTN, onde os resultados são analisados e discutidos no contexto deste trabalho.

Para caracterização da liga, são realizadas análises química (via úmida e combustão), nêutrons retardados, difratométrica, metalográfica, auto-radiografia e ensaios mecânicos, visando avaliar a adequação e viabilidade de uso de cada um destes processos.

### 3. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

Nesta revisão é feita uma síntese das características requeridas para um elemento combustível ser utilizado em reatores TRIGA. Além disto são apresentadas as propriedades físicas, químicas e metalúrgicas do urânio, do zircônio, da liga U-Zr e do combustível 8U-ZrH. São descritos e comparados os processos de fusão em forno a arco com eletrodo consumível e forno de indução, com suas vantagens e desvantagens.

#### 3.1 Características do elemento combustível do Reator TRIGA/IPR-R1

O elemento combustível sólido (8U-ZrH) utilizado no reator de pesquisa TRIGA/IPR-R1, é constituído por  $^{235}\text{U}$  enriquecido a 20% (combustível) disperso numa matriz de hidreto de zircônio ( $\text{ZrH}_n$ , moderador). Contém 8% (em peso) de urânio, 91% (em peso) de zircônio e 1% (em peso) de hidrogênio, o que corresponde, conforme demonstrado abaixo, a uma proporção atômica U:Zr:H de 0,03:1:1 respectivamente, para o caso dos elementos encapsulados em tubos de alumínio atualmente em uso neste reator.

Chamando de  $n_U$ ,  $n_{Zr}$  e  $n_H$ , o número de átomos de urânio, zircônio e hidrogênio, respectivamente, para 100 g no elemento combustível, teremos;

$$n_U \cong 8,0 \text{ [g]} \times 6,02 \times 10^{23} \text{ [at./at.g]} \div 238,03 \text{ [g/at.g]} = 2,0 \times 10^{22} \text{ átomos}$$

$$n_{Zr} \cong 91,0 \text{ [g]} \times 6,02 \times 10^{23} \text{ [at./at.g]} \div 91,22 \text{ [g/at.g]} = 60,2 \times 10^{22} \text{ átomos}$$

$$n_H \cong 1,0 \text{ [g]} \times 6,02 \times 10^{23} \text{ [at./at.g]} \div 1,01 \text{ [g/at.g]} = 60,2 \times 10^{22} \text{ átomos}$$

ou seja,

$$\% \text{ átomos U} = 2,0 \times 10^{22} \div 122,4 \times 10^{22} = 1,6$$

$$\% \text{ átomos Zr} = 60,2 \times 10^{22} \div 122,4 \times 10^{22} = 49,2$$

$$\% \text{ átomos H} = 60,2 \times 10^{22} \div 122,4 \times 10^{22} = 49,2$$

O núcleo do reator forma um reticulado cilíndrico, onde estão atualmente instalados 58 elementos combustíveis, 27 elementos falsos de grafita, uma fonte de nêutrons (Ac+Be), um terminal pneumático de irradiação, um tubo central de irradiação e três barras de controle[7].

A segurança inerente, que distingue os reatores TRIGA dos outros, se deve às características de seu combustível, que é projetado de modo a limitar os níveis máximos de potência. Isto decorre essencialmente por estarem misturados, no elemento combustível, o moderador ( $ZrH_n$ ) com o combustível ( $^{235}U$  enriquecido a 20%). Como resultado, no momento em que a potência do reator se eleva, pela introdução de reatividade no núcleo, ocorre uma elevação simultânea de temperatura na mistura combustível-moderador. Este acréscimo de temperatura no combustível aumenta a energia média dos nêutrons térmicos, o que ocasiona uma redução da seção de choque do  $^{235}U$  e, conseqüentemente, um decréscimo na reatividade[8]. Esta característica, exclusiva deste combustível (ver seção 3.1.1-coeficiente pronto de temperatura do combustível 8U-ZrH<sub>n</sub>), assegura que, em caso de uma eventual incursão de temperatura, a potência do reator será reduzida a um nível seguro [9].

No caso do reator TRIGA/IPR-R1, o elemento combustível (Figura 3.1) [7] possui geometria cilíndrica e é revestido por um tubo de alumínio com 0,8 mm de espessura. Este revestimento tem o objetivo de acondicionar e evitar o contato direto do urânio com a água, protegendo-o contra a corrosão e impedindo a contaminação da água por material radioativo. Incluindo os terminais de alumínio, na parte superior e inferior, o elemento combustível tem um comprimento total de 722,4 mm, tendo sua parte ativa 355,6 mm de altura e 35,6 mm de diâmetro. O terminal inferior mantém o elemento em posição na placa inferior do núcleo e o superior permite seu manuseio. Em cada extremidade da parte ativa do elemento combustível, é colocado um disco de “veneno” nuclear queimável, que no reator IPR/R1, é constituído de óxido de samário. Desta forma, uma quantidade adequada de “veneno” queimável é incorporada em cada elemento combustível, com o objetivo de reduzir ao mínimo o efeito devido a envenenamento por produtos de fissão e também por queima do combustível sobre a reatividade. Completando o elemento, é posicionado em cada extremidade da parte ativa, um cilindro de grafita com o mesmo diâmetro (35,6 mm) e altura de 101,6 mm, que serve de refletor vertical para o núcleo. Por fim, o elemento combustível assume a forma final mediante a inserção dos terminais de apoio, que são de alumínio. Após completada a montagem, cada elemento possuirá cerca de 37 g de  $^{235}U$  e peso total de 3,0 Kg [7].

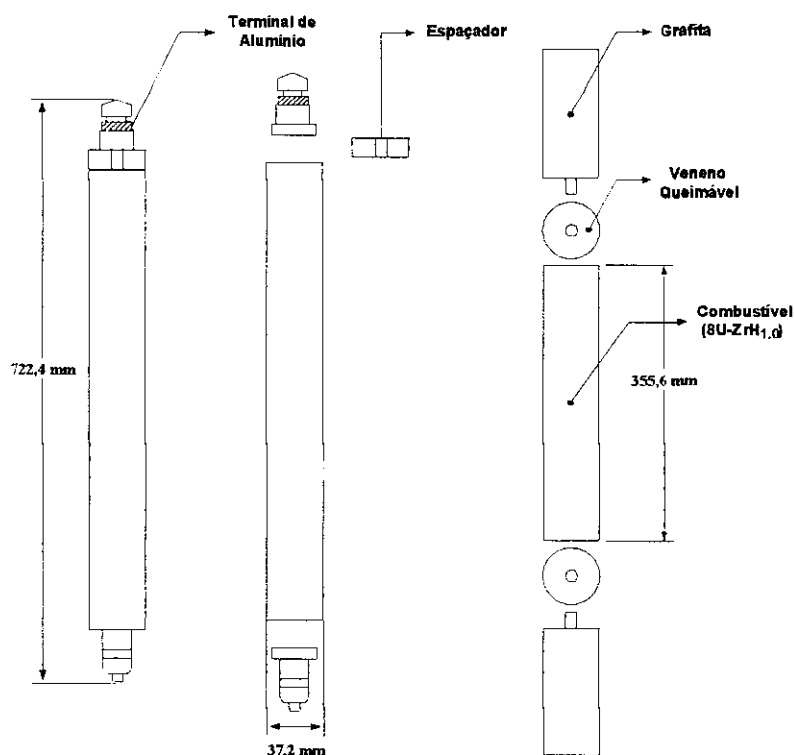


FIGURA 3.1 - Desenho esquemático dos componentes do elemento combustível do reator TRIGA/IPR-R1 [7].

### 3.1.1 Coeficiente pronto de temperatura do combustível $8U-ZrH_n$

O coeficiente pronto de temperatura é dado por  $\alpha = \Delta\rho/\Delta T$ , ou seja, a razão entre a variação da reatividade ( $\Delta\rho$ ) e a variação da temperatura ( $\Delta T$ ) do combustível. Seu valor é de fundamental importância para a segurança do reator, pois, ao se adicionar uma reatividade  $\rho_0$  num instante  $t=0$ , a potência tende a subir e com ela a temperatura do combustível, podendo então ocorrer três casos distintos:

Se  $\alpha < 0$ ,  $\rightarrow \rho$  diminui com o tempo;

Se  $\alpha \cong 0$ ,  $\rightarrow \rho$  permanece igual a  $\rho_0$ ;

Se  $\alpha > 0$ ,  $\rightarrow \rho$  aumenta com o tempo.

No reator TRIGA, como o moderador ( $ZrH_n$ ) é parte integrante do elemento combustível, sua temperatura acompanha simultaneamente a temperatura do combustível. Portanto, seu coeficiente pronto de temperatura será função da variação conjunta das propriedades do

combustível e moderador com a temperatura. Neste caso seu valor é negativo ( $\alpha < 0$ ), o que se deve principalmente a:

- Aumento do número de átomos de hidrogênio em estado excitado na rede cristalina do  $ZrH_n$ , aumentando a probabilidade dos nêutrons termalizados ganharem energia em colisões com os núcleos do hidrogênio e, conseqüentemente, aumentando o livre percurso médio dos nêutrons no interior do combustível;
- Alargamento *Doppler* das bandas de ressonância do  $^{238}U$ , aumentando as capturas pelo  $^{238}U$ ;
- Expansão térmica do moderador sólido, tornando menos eficaz a moderação por aumentar a distância média entre dois  $ZrH_n$  e, conseqüentemente, aumentando a probabilidade de fuga;
- Maior proporção relativa de captura na água, cuja temperatura não varia imediatamente [7].

Estes efeitos extinguem pronta e seguramente os transitórios de potência, permitindo ao reator estabilizar-se em uma nova temperatura, sem requerer atuação dos controles. Portanto, os reatores TRIGA são estáveis e inerentemente seguros.

### 3.1.2 Microestrutura do combustível 8U-ZrHn

O diagrama de equilíbrio da liga Zr-H (Figura 3.2) [39] mostra que o zircônio puro sofre uma transformação alotrópica a  $862^\circ\text{C}$ , sendo a fase  $\alpha\text{-Zr}$  (Hexagonal Compacta-HC) estável abaixo desta temperatura e a fase  $\beta\text{-Zr}$  (Cúbico de Corpo Centrado-CCC) estável acima de  $862^\circ\text{C}$ . A solubilidade do **hidrogênio** em  $\alpha\text{-Zr}$  é máxima à temperatura de aproximadamente  $580^\circ\text{C}$ , diminuindo progressivamente, tanto com o aumento ou abaixamento da temperatura, sendo que à temperatura ambiente o limite de solubilidade é mínimo. A temperaturas acima de  $550^\circ\text{C}$  a solubilidade do hidrogênio na fase  $\beta\text{-Zr}$  ocorre até aproximadamente 1,0% (em peso), sendo que a partir daí, inicia-se a precipitação da fase **hidreto**  $\gamma$  (Tetragonal de Face Centrada-TFC), que na faixa de  $1,5\% < \text{hidrogênio} \leq 2\%$  (em peso), independentemente da temperatura é a fase única.

Ao aquecer uma liga, com  $0,5\% \leq \text{hidrogênio} \leq 1,5\%$  (em peso) a temperaturas acima de  $550^\circ\text{C}$ , teremos mudança de fase no campo bifásico- $\alpha\text{-Zr} + \gamma \rightarrow \beta\text{-Zr} + \gamma$ , o que acarretará em

aumento de volume do elemento combustível, tanto pela expansão natural que um corpo sofre ao ser aquecido, quanto pela transformação alotrópica  $\alpha\text{-Zr (HC)} \rightarrow \beta\text{-Zr (CCC)}$ . Desta forma, quando se utiliza uma liga na relação acima, deve-se limitar a temperatura de trabalho no sentido de evitar o tensionamento entre o elemento e o tubo de alumínio que o encapsula. Se isto ocorrer poderá gerar microtensões, causando danos à integridade do revestimento e, conseqüentemente, a necessidade da substituição de todo o conjunto. Entretanto, para a liga com  $1,5\% < \text{hidrogênio} \leq 2\%$  (em peso) estas alterações volumétricas no combustível não existirão, tendo em vista que nestes casos só ocorre a presença de uma única fase, a fase **hidreto**  $\gamma$ .

A adição de  $8,0\%$  (em peso) de urânio numa liga binária Zr-H com  $1,0\%$  (em peso) de hidrogênio provoca uma ligeira mudança na composição desta liga. Entretanto, esta adição de urânio não altera, significativamente, o diagrama de equilíbrio Zr-H, pois o urânio permanece quase que inteiramente em solução sólida, onde a ocorrência do urânio precipitado é mínima [10]. Portanto, o diagrama de equilíbrio Zr-H (Figura 3.2), será o diagrama utilizado para a liga  $8\text{U-ZrH}_n$ , onde  $n \leq 2$ . Neste diagrama, para aproximadamente  $0,5\%$  (em peso) de hidrogênio, constata-se a presença de uma reação eutetóide ( $\beta \rightarrow \alpha + \gamma$ ) a  $537^\circ\text{C}$ . Entretanto, a incorporação de  $8\%$  (em peso) de urânio provocará uma pequena alteração nesta temperatura de transformação eutetóide para  $550^\circ\text{C}$ .

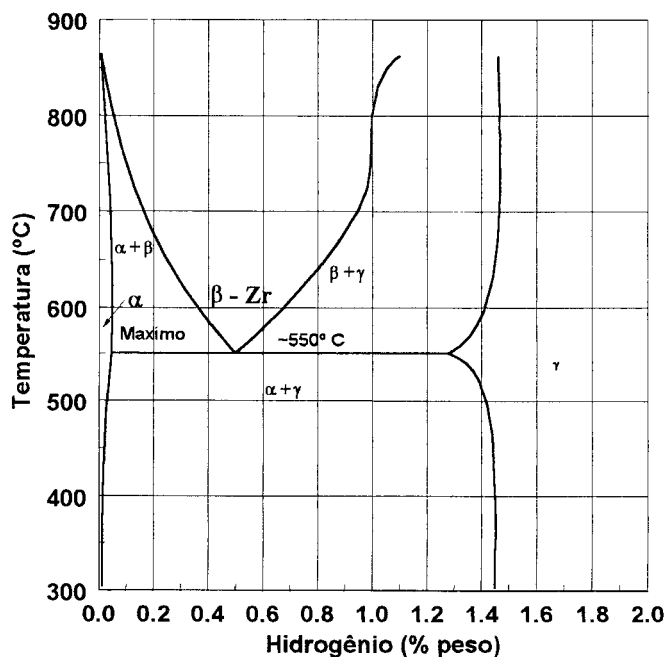


FIGURA 3.2 - Diagrama de equilíbrio Zr-H [39].

A cinética da reação  $\beta + \gamma \rightarrow \alpha + \gamma$  para uma liga  $8\text{U-ZrH}_{1,0}$ , ou seja,  $1,0\%$  (em peso) de hidrogênio é vista no diagrama Tempo, Temperatura, Transformação-TTT na Figura 3.3 [38]. A



curva para início de transformação foi obtida plotando os resultados de ensaios dilatométricos em função do tempo, assumindo que a fração transformada é diretamente proporcional à mudança de volume. Como pode ser visto, acima de 450°C a transformação se inicia em tempo inferior à resposta do dilatômetro (~6 segundos), tornando incerto o tempo de início da transformação.

Como foi visto anteriormente, a temperaturas abaixo de 550°C, a fase  $\beta$  não será mais estável. No entanto, a reação  $\beta \rightarrow \alpha$  pode ser suprimida, ao praticar-se taxas de resfriamento suficientemente rápidas. Neste caso, obtém-se um  $\beta$  **superesfriado** ( $\alpha'$ ), o qual, com o tempo, tende a decompor-se isotermicamente na fase de equilíbrio  $\alpha$ . Nota-se que abaixo de aproximadamente 300°C, a cinética de decomposição de  $\alpha'$ , torna-se, progressivamente, mais lenta. Com base na Figura 3.3 [38], é possível inferir que um tratamento isotérmico a 200°C, por exemplo, exigirá um tempo extremamente elevado para que a decomposição se inicie.

A temperatura exata para início de transformação martensítica, não pode ser determinada devido a rápida taxa na qual ocorre esta reação mas, por exames metalográficos, parece ser um pouco acima de 500°C [38]

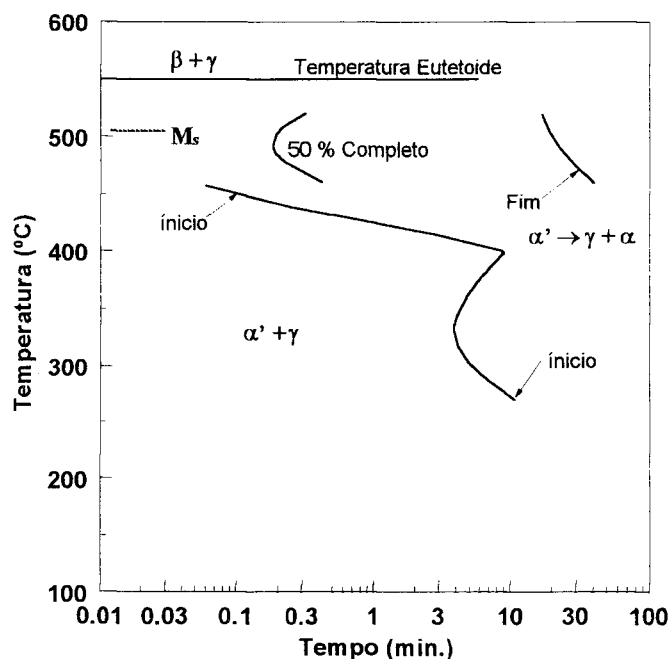


FIGURA 3.3 - Diagrama isotérmico (TTT) para liga 8U-ZrH<sub>1,0</sub> [38].

### 3.1.3 Algumas propriedades do combustível

Um dos fenômenos que decorrem da hidretação do zircônio é o da sua expansão. A Figura 3.4 [39] mostra a expansão linear em função da razão H:Zr, sendo que para **H:Zr  $\geq 1,5$** -fase  $\gamma$ , nenhuma mudança na densidade ocorre.

Desta forma é importante notar que medidas de expansão permitem inferir o nível de enriquecimento em hidrogênio. Assim, uma liga **H:Zr  $\cong 1,0$**  deverá apresentar uma expansão da ordem de 3% e um corpo de prova com L de comprimento (antes da hidretação), apresentará 1,03 L (após sua hidretação).

O coeficiente de expansão linear do hidreto  $\gamma$  foi medido pela *General Atomic* e encontrou-se um valor de  $7 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ .

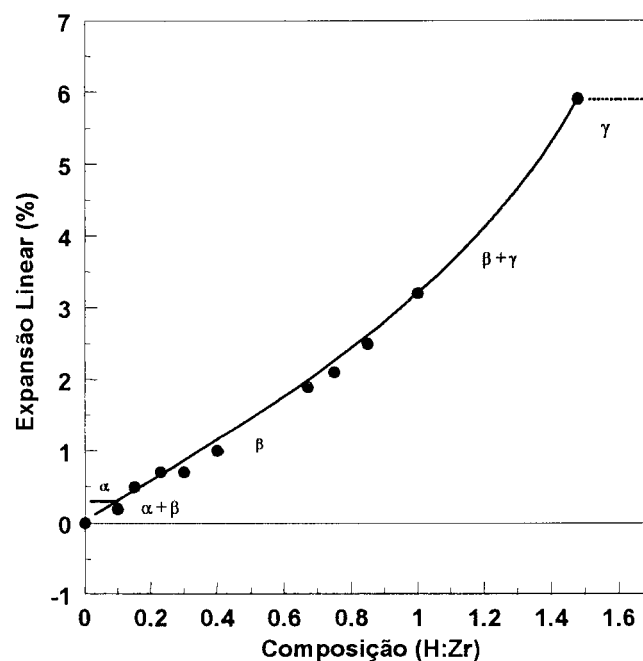


FIGURA 3.4 - Dilatação de  $\alpha$ ,  $\beta$  e  $\gamma$  a  $800^{\circ}\text{C}$ , em função da incorporação do hidrogênio [39].

A variação da condutividade térmica do Zr, da liga 8U-Zr e do combustível  $8\text{U-ZrH}_{1,0}$ , com a temperatura são mostrados na Figura 3.5 [39]. Para a liga 8U-Zr a condutividade à temperatura ambiente, o valor medido pela *General Atomic* foi de  $0,14 \text{ W/cm}^{\circ}\text{C}$  [39]. Este valor é relativamente baixo, pois é menor que um décimo do valor da condutividade térmica do alumínio.

A *General Atomic* também determinou os valores das resistividades elétricas à temperatura ambiente, sendo encontrados os valores de *45 microhms.cm*, *73 microhms.cm* e *53 microhms.cm*, para o zircônio, liga 8U-Zr e combustível 8U-ZrH<sub>1,0</sub>, respectivamente [8].

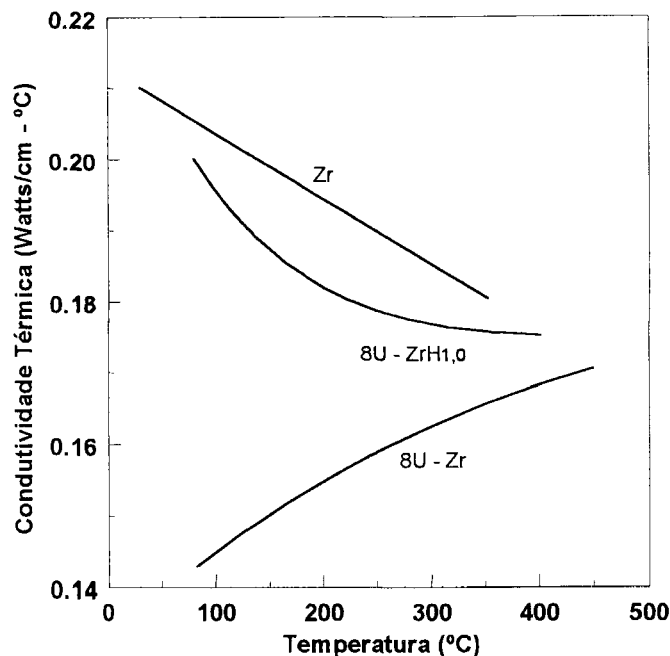


FIGURA 3.5 - Curvas de variação da condutividade térmica com a temperatura para o Zr, 8U-Zr e 8U-ZrH<sub>1,0</sub> [39].

O calor específico do zircônio à temperatura ambiente é de  $6,30 \text{ cal/mol}^\circ\text{C}$  e de  $7,5 \text{ cal/mol}^\circ\text{C}$  para ZrH<sub>1,2</sub>. Portanto, verifica-se que a adição de átomos de hidrogênio aumenta seu calor específico em  $1,2 \text{ cal/mol}^\circ\text{C}$ .

Todas estas propriedades têm um importante papel no comportamento térmico e nas características de transferência de calor no elemento combustível 8U-ZrH<sub>1,0</sub>. A reatividade dos hidretos com a água é de particular interesse quanto às propriedades químicas do combustível, pois, sendo a hidratação uma reação exotérmica, a água deve reagir mais facilmente com o zircônio do que com os hidretos. Esta comprovação ocorre na oxidação do zircônio com a água, uma vez que nesta são liberados  $124 \text{ Kcal/mol}$ , ao passo que com o hidreto-ZrH<sub>1,0</sub> somente  $104 \text{ Kcal/mol}$ . E ainda, experiências realizadas pela *General Atomic* [39] mostram que os hidretos têm relativamente baixa reatividade química, não só com a água mas também com o ar.

Outra consequência do processo de hidretação é a de que, quando se aumenta a proporção H:Zr, a liga torna-se progressivamente mais frágil. Seu módulo de elasticidade diminui levemente, mas o *limite de resistência* (carga máxima em tração uniaxial por unidade de área) reduz de  $10 \times 10^4 \text{ psi}$  (8U-Zr) para  $3,3 \times 10^4 \text{ psi}$  (8U-ZrH<sub>1,0</sub>), ou seja, cai 67% quando a liga é hidretada. Além disso, enquanto a ruptura da liga 8U-Zr é precedida por deformação plástica, nos hidretos este comportamento não ocorre. A Figura 3.6 [39] mostra estas propriedades.

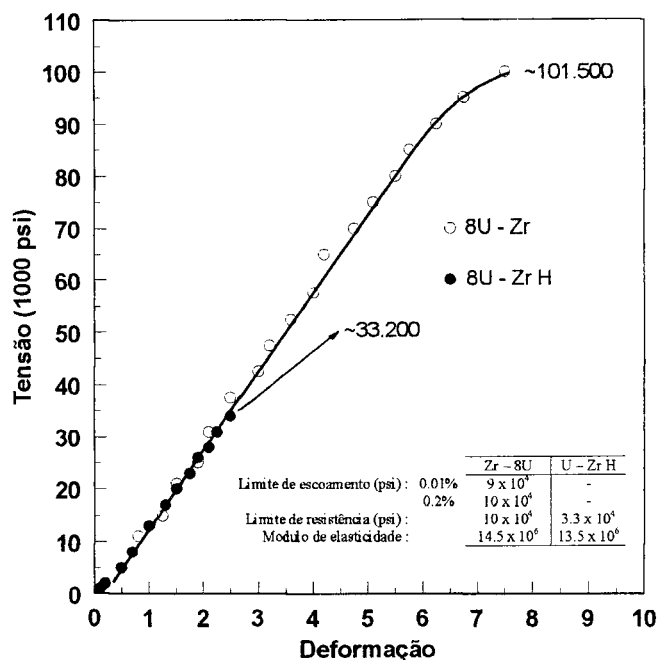


FIGURA 3.6 - Diagrama Tensão-Deformação para 8U-Zr e 8U-ZrH [39].

A difusão do hidrogênio sob gradiente térmico é bem conhecida para  $H:Zr \leq 1,5$  em temperaturas acima de  $250^\circ\text{C}$ . Entretanto, para  $H:Zr \geq 1,5$  uma experiência por *700 horas* em temperaturas acima de  $650^\circ\text{C}$  [38], mostrou que não ocorre nenhuma migração significativa de hidrogênio sob gradientes de  $100^\circ\text{C}/\text{cm}$ .

### 3.2 Características do urânio

O urânio foi descoberto em 1789 pelo químico alemão Klaproth, recebendo o nome do planeta que havia sido descoberto 5 anos antes. Como Klaproth não conseguiu obter o urânio metálico por redução de seu óxido com carbono, ele o caracterizou como sendo um elemento *submetálico*. Assim foi até que em 1841 o químico francês Peligot obteve o urânio puro por redução do tetracloreto de urânio por potássio metálico. Entretanto, a caracterização deste metal só foi possível a partir de 1936, quando sua estrutura cristalina foi determinada cientificamente pelo método de raio X.

Na verdade, a história do uso de urânio pode ser dividida em 3 períodos. O primeiro, que vai da sua descoberta até 1896, foi um período em que o urânio só interessava a um pequeno grupo de químicos, pois dele produziam um pigmento amarelo para pintura. O segundo período vai de 1894 até 1941, iniciando com a descoberta da radiação no minério de urânio pelo físico francês Henri Becquerel. Este fato atraiu a atenção de todo mundo científico e em 1898 Pierre e Marie Curie descobrem a radioatividade dos elementos rádio e polônio que acompanham o urânio natural. Assim, este período é caracterizado pela extração do rádio (alta radioatividade) do minério de urânio. Finalmente, o terceiro período se iniciou em 1941 e vem até os dias de hoje com a descoberta do uso da energia atômica do urânio [45].

### 3.2.1 Propriedades físicas, químicas e mecânicas

O urânio é um metal que apresenta elevada reatividade ao ar, tendo a 500°C uma velocidade de oxidação de  $157 \text{ mg/cm}^2.h$  [11], ao passo que para o zircônio, esta oxidação nesta temperatura, é de somente  $\sim 10^{-2} \text{ mg/cm}^2.h$ . Portanto, é necessário que operações a altas temperaturas sejam realizadas sob condições que previnam sua oxidação.

Este é um metal denso, dúctil, ligeiramente paramagnético, sendo pirofórico quando finamente dividido. Após o polimento, sua superfície adquire coloração prateada, mas após poucas horas em contato com o ar, adquire inicialmente a coloração dourada com manchas azuladas e finalmente torna-se escura, resultado provável do aumento da espessura do óxido formado em sua superfície. Na Tabela 3.1 são apresentadas algumas de suas propriedades [12].

TABELA 3.1 - Propriedades do urânio a diversas temperaturas [12].

Densidade	19,05 g/cm <sup>3</sup>
Temperatura de fusão	1130°C
Dureza (Recozido a 770°C/1hora)	152 Brinell
Calor específico,18°C	0,028 cal/g/°c
Resistividade elétrica,27°C	30 microhms.cm
Condutividade térmica,70°C	0,071 cal/cm/seg/°C
Limite elástico(0,2%),25°C	28 x 10 <sup>3</sup> psi
Limite de resistência,25°C	56 x 10 <sup>3</sup> psi

Após investigações sobre as transformações de fase, foi determinado que as três modificações alotrópicas do urânio ocorrem conforme é mostrado na Tabela 3.2 [13].

TABELA 3.2 - Mudanças de fase do urânio por ação da temperatura [13].

FASE	FAIXA DE TEMPERATURA (°C)	ESTRUTURA CRISTALINA	OBSERVAÇÕES
$\alpha$	Abaixo de 663	ortorrômbica	altamente anisotrópica
$\beta$	663 - 764	tetragonal	ligeiramente anisotrópica
$\gamma$	764 - 1130	C.C.C	isotrópica

Um dos mais importantes requisitos exigidos das ligas de urânio, é que o elemento de liga tenha baixa seção de choque de captura de nêutrons, para que a carga de <sup>235</sup>U no reator seja reduzida. Neste sentido, o zircônio satisfaz esse critério, pois sua seção de choque de absorção é de apenas 0,18 barn.

Outro requisito, não menos importante, é a estabilidade dimensional do elemento combustível durante a operação do reator, pois eventuais alterações dimensionais podem provocar uma distribuição não uniforme do refrigerante e, como consequência, um superaquecimento local com falha do seu revestimento. Estas ligas de urânio devem, não apenas permanecer estáveis, mas também apresentar resistência mecânica compatível com a carga a que são submetidas, nas condições de trabalho do núcleo de um reator em operação [14].

### 3.2.2 Propriedades como combustível nuclear

Alguns isótopos do urânio, ou seja,  $^{235}\text{U}$  e  $^{233}\text{U}$ , são substâncias capazes de sofrer fissão através da interação com nêutrons térmicos. Destes 2 isótopos, apenas o  $\text{U}^{235}$  ocorre na natureza ( $\sim 0,7\%$  em peso), sendo o outro ( $\text{U}^{233}$ ) obtido em reatores nucleares, pelo bombardeamento do tório por nêutrons. Esta é a razão pela qual o isótopo  $^{235}\text{U}$  é chamado de combustível nuclear primário, ao passo que o  $^{233}\text{U}$  é chamado de combustível nuclear secundário [15].

O emprego do urânio puro como combustível apresenta algumas limitações pois, além da percentagem de  $\text{U}^{235}$  ser baixa ( $\sim 0,7\%$ ), não apresenta adequada estabilidade dimensional a temperaturas intermediárias ( $T < 663^{\circ}\text{C}$ ), sofrendo danos por radiação, originados de produtos de fissão. A principal causa de sua instabilidade é devida à anisotropia da fase  $\alpha$ , ou seja, ocorre expansão no plano (010) e contração no plano (100) perpendiculares entre si. Com isso, o urânio metálico reage diferentemente aos esforços provocando aumento de volume, tornando-o instável e sujeito a fraturas e deformações [13].

Portanto, para melhorar as características do urânio como combustível para reatores nucleares, torna-se necessário ligá-lo a outros elementos, de forma que a fase  $\gamma$ , que não apresenta anisotropia e é estável apenas a  $T > 764^{\circ}\text{C}$ , possa permanecer (estável) a baixas temperaturas.

### 3.2.3 Processos de fusão

O processo de fusão é uma etapa essencial na fabricação de ligas de urânio, devido, particularmente, às impurezas eventualmente presentes na matéria prima. Duas das principais técnicas empregadas para a fusão e lingotamento de urânio, conforme apresentado por W.D. Wilkinson [16], são as fusões em fornos a arco elétrico e por indução eletromagnética. Estes processos podem ser realizados sob vácuo ou atmosfera inerte, sendo o primeiro, o que apresenta

condições mais favoráveis, pois possibilita a passagem das impurezas para a fase vapor, quando as pressões de vapor destas impurezas forem superiores às da câmara do forno.

Para definir o equipamento adequado para a fusão, a temperatura a que se deve atingir é um fator limitante. No caso de fusão em forno de indução, se a liga tiver seu ponto de fusão acima da faixa de operação do cadinho disponível (de material refratário), o recurso será realizá-la em forno a arco onde o cadinho é de cobre refrigerado a água. Ambos os processos apresentam limitações relacionadas ao nível de temperatura que se deve atingir. No caso do forno a arco, provido de cadinho de cobre refrigerado, tal limitação relaciona-se com a massa de cobre e com a vazão de água de refrigeração. Para o forno de indução com cadinho a base de material refratário, sua limitação é pela temperatura de fusão deste refratário, o que normalmente ocorre quando se funde ligas de zircônio, titânio, nióbio e tântalo que apresentam pontos de fusão acima da temperatura de uso da maioria dos refratários. Assim, a seleção de um cadinho adequado passa a ser de crucial importância, principalmente, para o processo de fusão em forno de indução. O material grafita, entre os materiais disponíveis para fabricação de cadinhos, é o que tem as melhores propriedades, pois sua resistência a choques térmicos permite que ele seja aquecido e resfriado rapidamente. Além disso, por ele ser um bom condutor elétrico, a indução de um campo eletromagnético variável gerará correntes elétricas nas paredes do cadinho e, conseqüentemente, calor por efeito Joule em adição às correntes induzidas na própria carga. Entretanto, devido à baixa solubilidade e reatividade do urânio com o carbono e ainda à formação de carbonetos em altas temperaturas, a fusão em cadinho de grafita pode acarretar aumentos do teor de carbono em até 0,05% em peso [17], sendo que em fusões repetidas, este teor pode aumentar ainda mais. A formação do carboneto, que ocorre quando é atingido o limite de solubilidade em uma dada temperatura, pode ser evitada revestindo-se as paredes internas do cadinho com material cerâmico [18]. Dentre estes materiais podemos citar os óxidos de urânio, cálcio, zircônio, tório e alumínio [19, 20, 21, 22,23]. No entanto, quando utilizados com ligas de alto ponto de fusão, um dos problemas associados a estes revestimentos é o de sua reatividade. O óxido, ao atingir sua temperatura limite, reage prontamente com a grafita, liberando monóxido de carbono e, conseqüentemente, formando carboneto do metal. Por isto, o urânio pode vir a ser contaminado com o carbono ou oxigênio proveniente deste monóxido[20]. Portanto, faz-se necessário escolher um revestimento que seja adequado para as condições de composição e temperatura da liga desejada.



Sendo o urânio muito reativo ao carbono a altas temperaturas, deve-se efetuar um aquecimento e vazamento do metal líquido no menor intervalo de tempo possível, evitando-se assim um contato prolongado do material fundido com o cadinho [18, 22, 24].

A Figura 3.7 mostra o diagrama de fases urânio-carbono [25]. Neste observa-se uma reação eutética (Líquido  $\rightarrow$   $\gamma$ +UC) com 0,05% (em peso) de carbono a  $1116,6^{\circ}\text{C}$ . A solubilidade do carbono é mínima nas fases  $\gamma$ -U e  $\beta$ -U, sendo praticamente nula em  $\alpha$ -U. Entretanto, acima da linha “liquidus” ocorre uma elevada solubilidade do carbono em urânio e, a aproximadamente  $1450^{\circ}\text{C}$ , o urânio pode dissolver em torno de 0,17% (em peso) de carbono, antes que sejam formados carbonetos com o excesso de carbono.

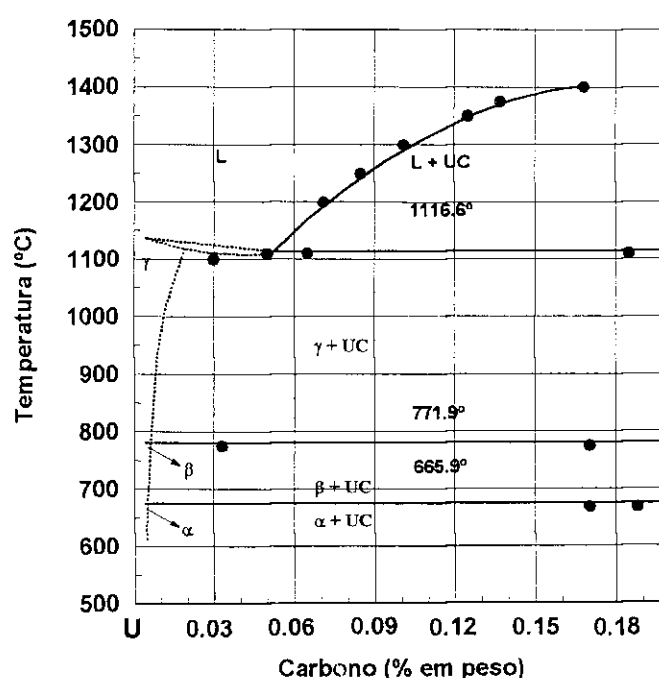


FIGURA 3.7 - Diagrama de fases urânio-carbono [25].

Considerando que, após sucessivas fusões, as paredes internas de um mesmo cadinho de grafita tornam-se revestidas por um filme de carboneto de urânio, é esperado que este revestimento possibilite a redução da contaminação do urânio fundido com o carbono. Entretanto, como pode ser constatado na Tabela 3.3 [26], este revestimento só exerce o efeito protetor do cadinho até  $1650^{\circ}\text{C}$ - $1750^{\circ}\text{C}$ , pois acima desta faixa de temperatura ocorre sua total decomposição [27].

TABELA 3.3 - Solubilidade do carbono em urânio líquido [26].

TEMPERATURA (°C)	CARBONO (% PESO)	ÁTOMO C/ÁTOMO U
1116,6	0,016	0,003
1350-1400	0,10	0,020
1450-1500	0,17	0,034
1550-1600	0,36	0,072
1650-1700	0,42	0,084
1750-1800	0,51	0,102
1850-1900	1,60	0,325
1950-2000	1,74	0,354
2080-2130	2,92	0,592

Esta Tabela fornece a solubilidade do carbono no urânio líquido, a diversas temperaturas. Pode-se observar que a altas temperaturas a fusão em cadinhos de grafita poderá ocasionar uma considerável carbonetação do metal.

### 3.3 Características do zircônio

Foi descoberto por Klaproth em 1789 e isolado por Berzélius [44] em 1824, quando reduziu fluoreto duplo de potássio e zircônio pelo sódio e obteve pela primeira vez um pó de zircônio muito impuro. O zircônio, devido às impurezas sempre associadas ao minério, teve suas propriedades mecânicas ignoradas até que em 1914, Lely e Hamburger, na Alemanha, obtiveram pela primeira vez um zircônio razoavelmente puro e dúctil, pois até então era considerado um metal excessivamente frágil. Entretanto, os blocos metálicos obtidos naquela oportunidade (por processos de metalurgia do pó) mostraram-se, como até então, um metal ainda frágil.

Foi somente em 1945, que Krol, desenvolvendo o método obtido por Von Zeppelin, reduziu o tetracloreto de zircônio ( $ZrCl_4$ ) pelo magnésio e obteve um zircônio com um grau de

pureza suficiente para salientar suas propriedades, particularmente sua ductilidade e notável resistência aos agentes químicos, estimulando assim sua produção em escala industrial.

A metalurgia de extração do zircônio difere muito daquela dos metais tradicionais como ferro e o cobre, por exemplo. O zircônio, como no caso do titânio, possui elevada reatividade química a altas temperaturas com relação ao oxigênio, nitrogênio e hidrogênio, por exemplo. Também apresenta elevada solubilidade no estado líquido, de óxidos, nitretos e hidretos, introduzindo assim dificuldades adicionais nos processos de obtenção e transformação. Por isto o zircônio e o titânio têm a metalurgia e a tecnologia de transformações muito semelhantes [28][29].

### 3.3.1 Propriedades físicas e mecânicas

O zircônio, quando é utilizado como elemento de liga com o urânio, apresenta uma série de vantagens sobre outros metais. Isto porque, além de conferir ductilidade à liga, possui alta resistência à corrosão em relação à água, uma seção de choque de absorção de nêutrons relativamente baixa e um alto ponto de fusão. Entretanto, o zircônio e suas ligas sofrem com a radiação, pois esta faz com que sua dureza aumente, diminuindo sua ductilidade[13].

Sua temperatura de fusão é elevada e verifica-se uma mudança de fase a  $862^{\circ}\text{C}$ , o que afeta suas propriedades, pois nessa temperatura ele deixa de apresentar a estrutura hexagonal ( $\alpha\text{-Zr} < 862^{\circ}\text{C}$ ), transformando-se alotropicamente para cúbico centrado ( $\beta\text{-Zr} > 862^{\circ}\text{C}$ ).

As propriedades físicas e mecânicas do zircônio [40, 41, 42, 43] são apresentadas na Tabela 3.4 a seguir:

TABELA 3.4 - Propriedades físicas e mecânicas do zircônio [40, 41, 42, 43].

Estrutura cristalina	HC e CCC
Temperatura de fusão	1852°C
Densidade	6,50 g/cm <sup>3</sup>
Dureza Brinell	30
Calor específico, 24°C	0,067 Cal/g/°C
Resistividade elétrica	40 microhms.cm
Seção de choque de absorção	0,18 barn
Coef.de expansão térmica linear	5,8 x 10 <sup>-6</sup> /°C
Condutividade térmica(100 °C)	0,049 cal/seg/cm/°C
Limite elástico (0,2%), 24°C	1,4 X 10 <sup>4</sup> psi
Limite de resistência, 24°C	3,2 X 10 <sup>4</sup> psi

### 3.3.2 Processos de fusão

A fusão do zircônio, como nos casos do titânio, urânio e outros metais reativos a temperaturas elevadas, requer o emprego de tecnologia específica, devido às dificuldades que resultam desta sua característica. Assim, são necessários cuidados para evitar sua contaminação por gases que compõem a atmosfera e que envolvem a carga durante as fases de fusão, solidificação e resfriamento e, ainda, por elementos que compõem o cadinho[31], como foi referido anteriormente.

Em função destas limitações, as técnicas disponíveis para a fusão de zircônio e suas ligas, requerem o emprego de equipamentos apropriados, como são os fornos de indução, a arco com eletrodo consumível e não consumível, feixe de elétrons (*electronbeam*) e mais recentemente a plasma [32], nos quais seja possível fazer vácuo ou pressurizá-lo com gás inerte. Neste trabalho, como já citado anteriormente, serão abordadas apenas as técnicas de fusão por indução e a arco com eletrodo consumível, pois estes são os equipamentos disponíveis no laboratório.

Tendo em vista que o zircônio reage com quase todos os refratários, a fusão por indução sob vácuo ou atmosfera inerte, tem sido realizada em cadinhos de grafita sem o revestimento de suas paredes internas. Entretanto, à semelhança do que foi discutido para o urânio, esta condição pode resultar em uma contaminação pelo carbono na faixa de 0,17% à 0,24% (em peso) e ainda, obter uma dureza na faixa de 170 à 229 Brinell[33]. O diagrama de fases zircônio-carbono na Figura 3.8 [46], evidencia o incremento da solubilidade do carbono no zircônio a temperaturas acima de 1850°C.

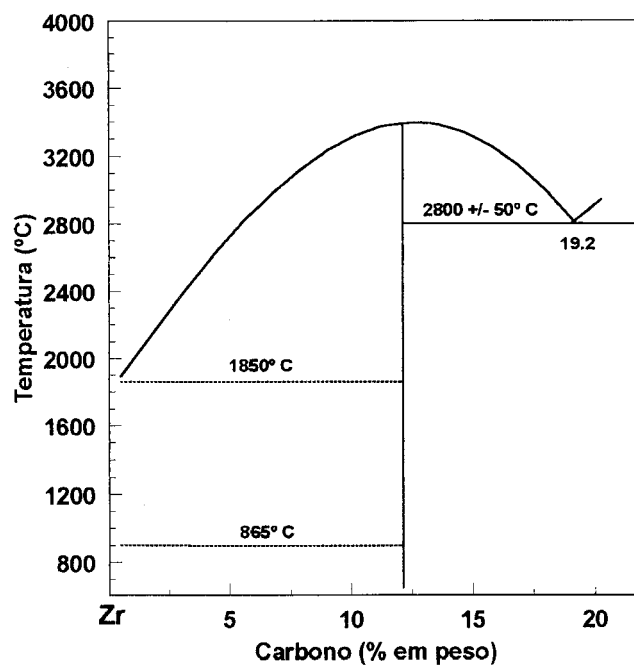


FIGURA 3.8 - Diagrama de fases zircônio-carbono (limitado a ~ 20% em peso de carbono) [46].

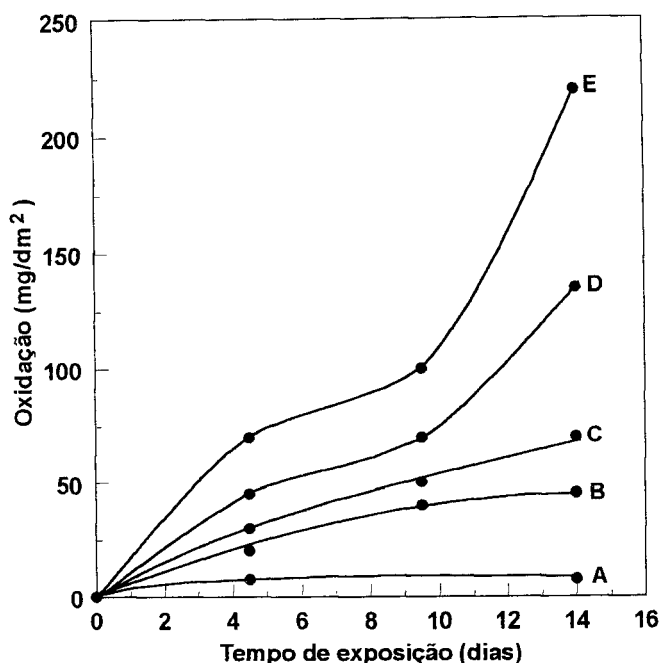
A esponja de zircônio ao ser fundida em cadinho de grafita a várias isotermas, apresentou-se contaminada pelo carbono nos níveis mostrados na Tabela 3.5 [46], guardando estreita correspondência com os níveis de contaminação esperado, a partir da linha *liquidus* mostrado na Figura 3.8.

TABELA 3.5 - Teor de carbono no zircônio resultante da sua fusão em cadinho de grafita a várias faixas de temperatura [46].

AMOSTRA	TEMPERATURA (°C)	CARBONO (% PESO)
1	<u>1820-1830</u>	<u>0,35</u>
2	1920-1935	0,48
3	1950-1970	0,47
4	2070-2100	0,56
5	2135-2145	0,78
6	2330-2370	1,98
7	2545-2565	2,81
8	2690-2710	3,70
9	2790-2800	4,40
10	2845-2855	19,15

A formação de carbonetos, extremamente duros, decorrente da fusão em cadinhos de grafita, afeta de maneira significativa as propriedades mecânicas do zircônio, principalmente a relacionada à sua dureza. Embora a dureza e o limite de resistência se correlacionem, não se verificam aumentos significativos desta última propriedade, aparentemente pelo fato dos carbonetos se apresentarem de modo descontínuo [47].

A resistência à corrosão do zircônio diminui em níveis maiores, quanto maior for a contaminação pelo carbono, conforme pode ser observado na Figura 3.9 [48]. Nesta Figura podem ser observadas curvas que mostram ganho de peso decorrente da oxidação do zircônio em água a  $315^{\circ}\text{C}$ , em função do tempo de exposição (dias). Assim, quando se deseja preservar a resistência à corrosão original, o carbono deve ser mantido no valor mínimo, pois experiências mostram que o ataque acelerado é aparentemente devido à corrosão preferencial da fase carboneto [48].



Teor de carbono (ppm)				
A	B	C	D	E
300	400	600	900	1000

FIGURA 3.9 - Efeito do carbono na resistência à corrosão do zircônio em meio aquoso a  $315^{\circ}\text{C}$  [48].

Através de análise termo-diferencial, constatou-se que não há alterações na transformação de  $\alpha\text{-Zr}$  para  $\beta\text{-Zr}$  que possam ser atribuídas à contaminação de carbono dissolvido no zircônio, pois qualquer efeito do carbono pode ser “mascarado” pela presença de oxigênio, nitrogênio, ferro e outras impurezas presentes[46].

Uma comparação entre as propriedades do zircônio fundido por indução e a arco sob vácuo, mostra que as primeiras apresentam maior dureza, são menos dúcteis e possuem uma resistência a corrosão inferior. O zircônio fundido por indução, apesar de apresentar propriedades inferiores relativamente ao fundido a arco, apresenta a vantagem de ser um processo de menor custo, permitindo a utilização de uma carga de qualidade inferior e com menor número de etapas de preparação, ou seja, não há necessidade das etapas de prensagem e soldagem, necessárias no processo a arco com eletrodo consumível[34].

### 3.4 Características da liga Urânio-Zircônio

Como pode ser visto no diagrama de fases urânio-zircônio, mostrado na Figura 3.10 [37], a fase  $\beta$ -Zr apresenta uma larga faixa de solubilidade no estado sólido com o  $\gamma$ -U, acima de  $862^{\circ}\text{C}$ .

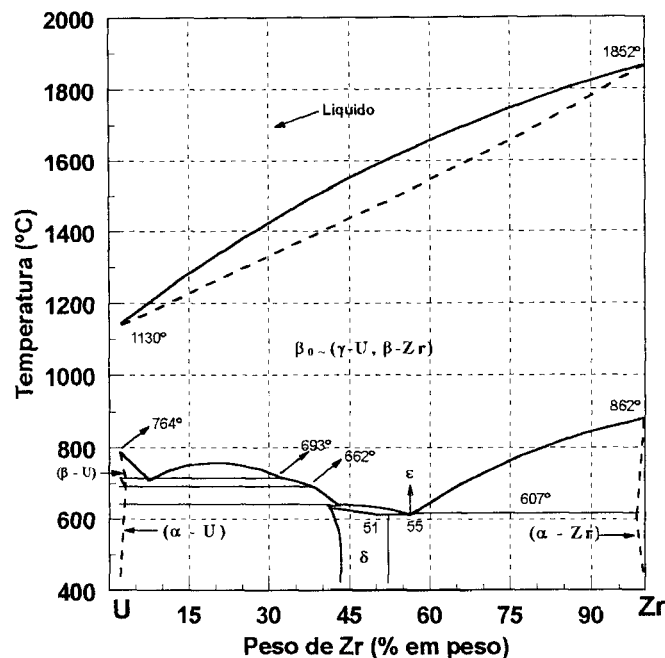


FIGURA 3.10 - Diagrama de fases urânio-zircônio [37].

Mediante o resfriamento lento da liga 8U-Zr, apontado na figura, obtém-se, à temperatura ambiente, uma mistura das fases  $\delta$  ( $\text{UZr}_2$ ) e  $\alpha$ -Zr. Para a determinação das quantidades (relativas) destas fases, faz-se necessário, inicialmente, calcular (regra das fases) os percentuais da fase  $\alpha$  e da liga 55Zr-45U, de composição eutetóide, que aqui chamaremos de fase  $\epsilon$ , conforme abaixo:

$$\epsilon = (100-92)/(100-55)100 = 17,8\%$$

$$\alpha = (92-55)/(100-55)100 = 82,2\%$$

ou seja, uma mistura de 17,8%  $\epsilon$  + 82,2%  $\alpha$

Entretanto, para se determinar a totalidade das fases  $\delta$  +  $\alpha$  participantes, é necessário primeiro conhecer os percentuais de  $\delta$  e de  $\alpha$  na composição eutetóide ( $\epsilon$ ), ou seja;

$$\delta (\epsilon) = (100-55)/(100-51)100 = 91,8\%$$

$$\alpha (\epsilon) = (55-51)/(100-51)100 = 8,2\%$$



Se em  $\epsilon$  temos 91,8% de  $\delta$  e 8,2% de  $\alpha$ , pode-se determinar para 8U-Zr, a contribuição de cada fase presente. Logo,

$$\delta = (0,178 \times 0,918)100 = 16,3\%$$

$$\alpha = (0,178 \times 0,082)100 = 1,5\%$$

daí, teremos;

$$\delta_{\text{total}} = 16,3\%$$

$$\alpha_{\text{total}} = 82,2 + 1,5 = 83,7 \%$$

Sob resfriamento lento ( $T_{\text{inicial}} \cong 900^{\circ}\text{C} \rightarrow T_{\text{final}} \cong 500^{\circ}\text{C}$ ), a microestrutura resultante eventualmente se assemelha à de um aço recozido, onde  $\epsilon$  se apresentaria com morfologia lamelar, típica das reações eutetóides.

Observando o diagrama TTT da liga 8U-Zr, mostrado na Figura 3.11 [49], é possível constatar que a condição estabelecida no parágrafo anterior pode ser alcançada mediante uma velocidade de resfriamento  $(900-500)/100 \cong 4^{\circ}\text{C}/\text{min.}$ , por favorecer o desenvolvimento da reação eutetóide.

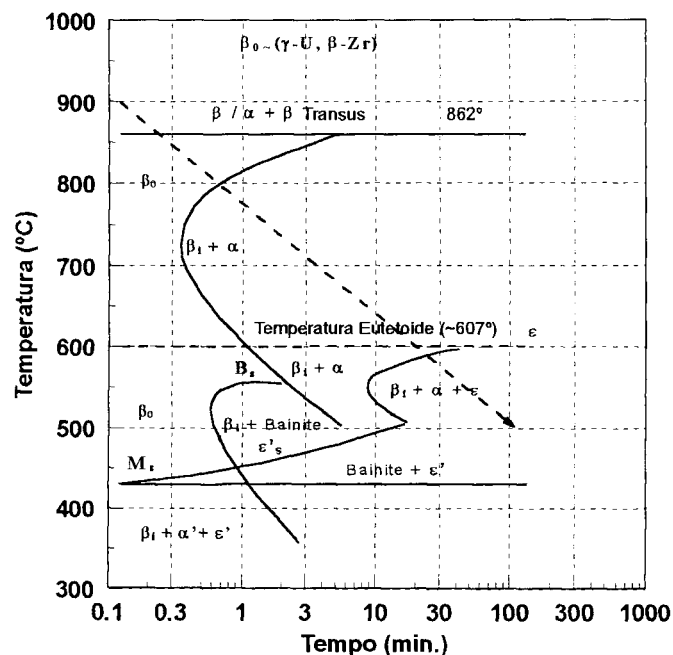


FIGURA 3.11 - Diagrama TTT da liga 8U-Zr [49].

Aparentemente, essa deve ser a condição mais adequada da liga a ser hidretada, devido à sua estabilidade microestrutural. No entanto, parece prudente evitar sua permanência por tempo prolongado a altas temperaturas, de modo a impedir um crescimento excessivo do grão, já que o processo de hidretação é fragilizante. Para saber se essa é de fato a melhor condição (recozimento em liga bruta de fusão) o ensaio de tração (após o recozimento) deverá indicar um limite de resistência da ordem de  $\cong 100,8 \text{ Ksi} \cong 10 \times 10^4 \text{ Psi}$  referenciado na literatura [38], o qual, também é afetado pelo tamanho de grão.

### **3.5 Vantagens e desvantagens das fusões por indução e a arco com eletrodo consumível**

Os processos de fusão por indução ou arco são diferentes em vários aspectos, exceto que em ambos pode-se utilizar o vácuo, ou seja, um nível de contaminação pela atmosfera de magnitude similar. Portanto, o método a se escolher irá depender da liga e das propriedades que se espera obter.

Deve-se salientar que o processo por indução, influencia principalmente as propriedades que são sensíveis à precisão da composição química, ao passo que as realizadas pelo processo a arco influenciam as propriedades relacionadas à segregação ou às heterogeneidades microestruturais [35].

A seguir são apresentadas as vantagens e desvantagens destes processos.

#### 3.5.1 Vantagens da fusão em forno de indução;

1. É possível controlar com precisão a composição da liga;
2. tempo que o material permanece fundido é ilimitado;
3. É possível controlar o tempo e a temperatura após a fusão;
4. Os elementos voláteis podem ser adicionados ao banho antes do lingotamento, após pressurização com gás inerte.

#### 3.5.2 Desvantagens da fusão em forno de indução;

1. A liga fundida pode ser contaminada pelo cadinho de grafita ou, se for o caso, pelo material refratário utilizado como revestimento.

2. Há riscos de acidentes (seção 3.5.5- Aspectos de segurança nas fusões em fornos a arco e de indução).

### 3.5.3 Vantagens da fusão em forno a arco com eletrodo consumível;

1. Não há contaminação através do cadinho;
2. Resfriamento a uma velocidade constante favorece a obtenção de um lingote com uma superfície lisa e regular, reduzindo os defeitos de segregação, porosidade e rechupes;
3. A temperatura muito alta do arco e ainda, sob vácuo, favorece a eliminação de certas impurezas, bem como de gases, dificultando a contaminação com outros componentes do forno.

### 3.5.4 Desvantagens da fusão em forno a arco com eletrodo consumível;

1. O eletrodo tem que estar na exata composição da liga;
2. Há possibilidade de perda de elementos de liga voláteis[36].
3. Há riscos de acidentes (seção 3.5.5- Aspectos de segurança).

Na Tabela 3.6 [36] são apresentadas, resumidamente, as principais vantagens e desvantagens destes processos.

TABELA 3.6 - Principais vantagens e desvantagens das fusões em fornos a arco e de indução [36].

	<b>ARCO</b>	<b>INDUÇÃO</b>
Gradiente de composição	Alto	Baixo
Nível de contaminação	Baixo	Alto
Controle do banho	Ruim	Adequado
Controle elementos voláteis	Ruim	Adequado
Riscos de acidentes	Elevado	Elevado

### 3.5.5 Aspectos de segurança nas fusões em fornos a arco e de indução

Um aspecto a ser considerado nas fusões a arco e por indução é que há possibilidade de ocorrerem acidentes durante a operação, uma vez que o cadinho do forno a arco ou a bobina do forno de indução, ambos de cobre refrigerados a água, podem ser perfurados por uma eventual descarga elétrica. Neste caso, a água entrará em contato com o metal fundido, poderá vaporizar e conseqüentemente, a pressão subirá rapidamente. Na fusão de metais reativos, a água poderá dissociar-se, produzindo hidrogênio, com riscos de explosão, caso haja entrada de oxigênio na câmara do forno [36].

Devem-se tomar várias precauções para evitar este tipo de acidente, porém, a mais importante é assegurar que o operador tenha um controle visual durante toda a fusão. Em conseqüência, é necessário dispor de:

- Válvula de segurança ajustada para atuar a um dado nível de pressão interna;
- Sistema que permita alta velocidade de bombeamento, contra uma brusca elevação da pressão;
- Anteparo de proteção do operador[36].

## 4. EQUIPAMENTOS E MATERIAIS

Neste item relacionam-se e descrevem-se os equipamentos com seus respectivos acessórios e materiais utilizados neste trabalho.

### 4.1 Forno de indução

A Figura 4.1 mostra um forno de indução, modelo IW-7P, fabricado pela Leybold-Heraus. Este forno possui um sistema de vácuo, constituído por uma bomba mecânica e uma difusora, permitindo obter um vácuo melhor que  $10^{-3}$  Torr. O forno tem incorporado a ele uma fonte universal da marca EMA, modelo MFAS 50, projetada para operações de aquecimento indutivo, com um gerador de alta potência (50 kW) e frequência média de 4,8 kHz.

Em 1990, técnicos do CDTN adaptaram em sua câmara um sistema de basculamento da bobina, um suporte para a lingoteira e uma tampa com visor. Tal adaptação se fez necessário para viabilizar a realização de fusões de ligas pois, originalmente, com a bobina fixa, este equipamento só permitia operações de sinterização e tratamentos térmicos. Deve-se ressaltar que a bobina,

parte do sistema de aquecimento, é a responsável pela transferência da potência do gerador para o cadinho e a carga.

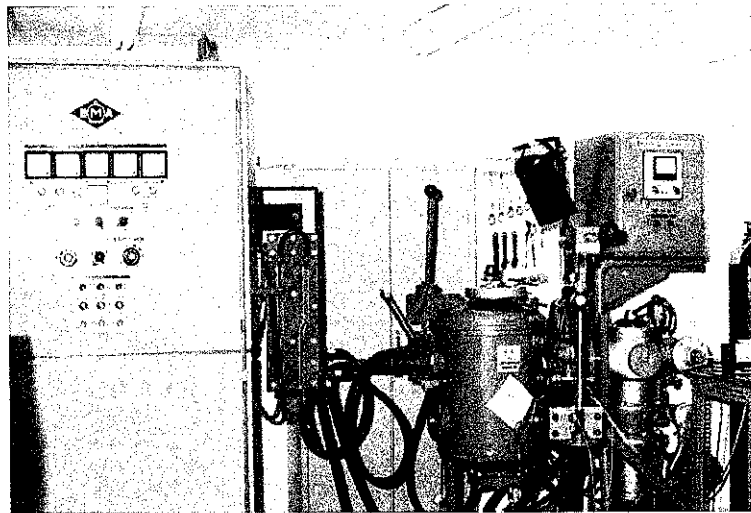


FIGURA 4.1. Vista geral do forno de indução, onde se vê o gerador à esquerda, a câmara no centro e, a direita, o conjunto de bombas de vácuo.

A Figura 4.2 mostra a camisa refratária que fica posicionada no interior da bobina e que tem o objetivo de isolar a referida bobina de cobre do cadinho de grafita. Na Figura 4.3, sem o revestimento interno de suas paredes, é mostrado o cadinho de grafita no qual funde-se a liga U-Zr e que fica colocado dentro da camisa refratária. Para realizar o lingotamento foi fabricado uma lingoteira de cobre bipartida sem refrigeração, conforme esta mostrado na Figura 4.4.



FIGURA 4.2 - Cadinho de grafita utilizado para fundir a liga U-Zr.

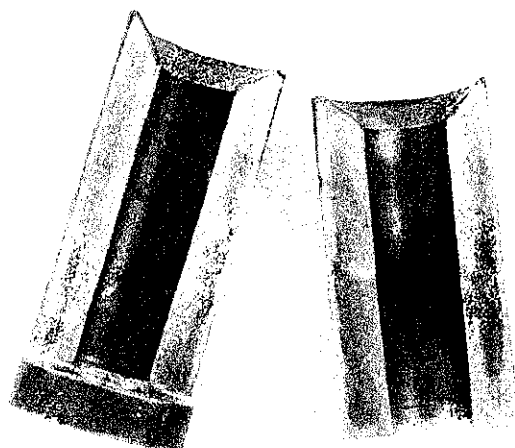


FIGURA 4.3 - Lingoteira utilizada no forno de indução.

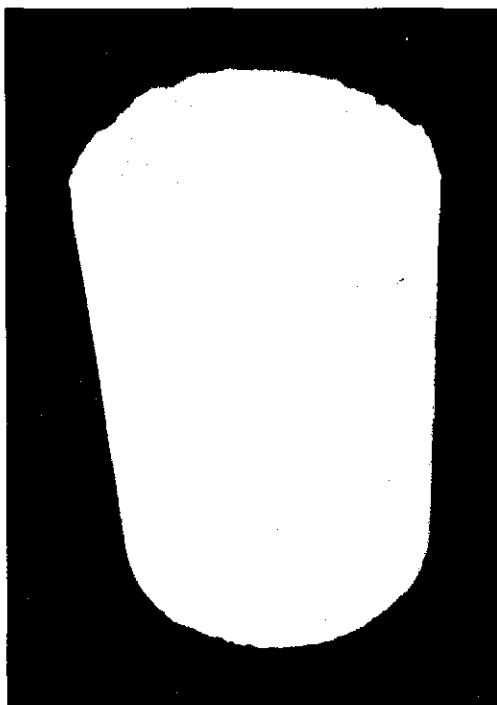


FIGURA 4.4 - Camisa refratária fabricada com cimento a base de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

#### 4.2 Forno a arco com eletrodo consumível

Foi projetado e fabricado no CDTN para fusão de ligas o forno a arco com eletrodo consumível mostrado na Figura 4.5. Trabalha com vácuo de até  $5 \times 10^{-3}$  Torr, em condições semi-automáticas de alimentação do eletrodo e capacidade máxima de corrente de 1000 A. Possui um cadinho de cobre refrigerado a água, com capacidade para aproximadamente 1 kg de Zr.

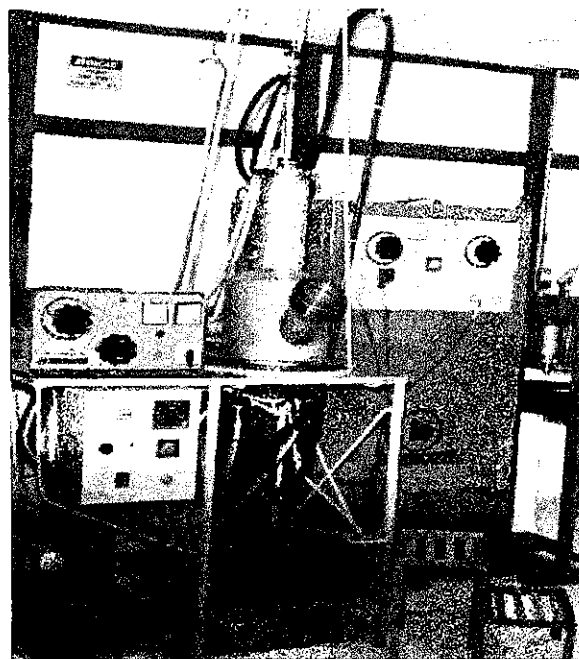


FIGURA 4.5 - Forno a arco com eletrodo consumível, mostrando a câmara de fusão, a fonte de corrente, o painel de controle, o sistema de movimentação da haste do eletrodo e a bomba mecânica de vácuo.

### 4.3 Forno tubular

A Figura 4.6 mostra um forno tubular, fabricado pela Lindberg Hevi-Duty, para tratamentos térmicos até  $1200^{\circ}\text{C}$ , com atmosfera inerte.

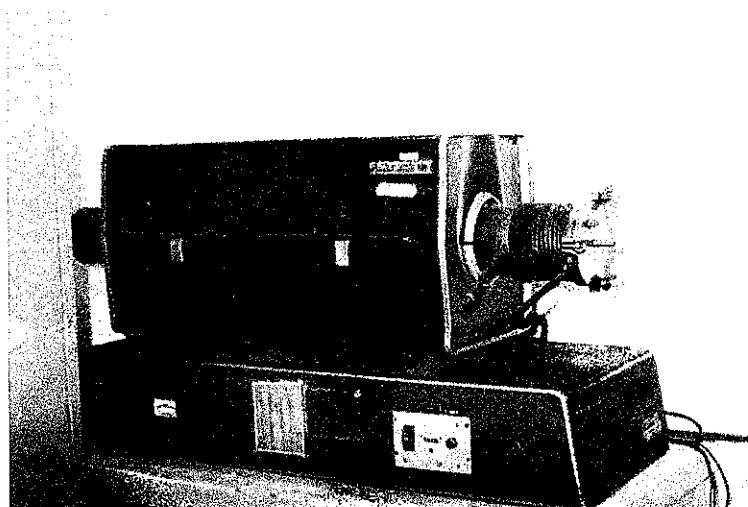


FIGURA 4.6 - Forno tubular utilizado no tratamento térmico de recozimento dos lingotes U-Zr.

#### 4.4 Máquina de forjamento rotativo

A Figura 4.7 mostra a máquina de forjamento, fabricada pela Swaging Machines (Fenn) e que foi utilizada para a obtenção das barras de seção circular. Na Figura 4.8 é mostrado o conjunto de castanhas utilizadas, na referida máquina, em função dos diâmetros inicial e final da barra.

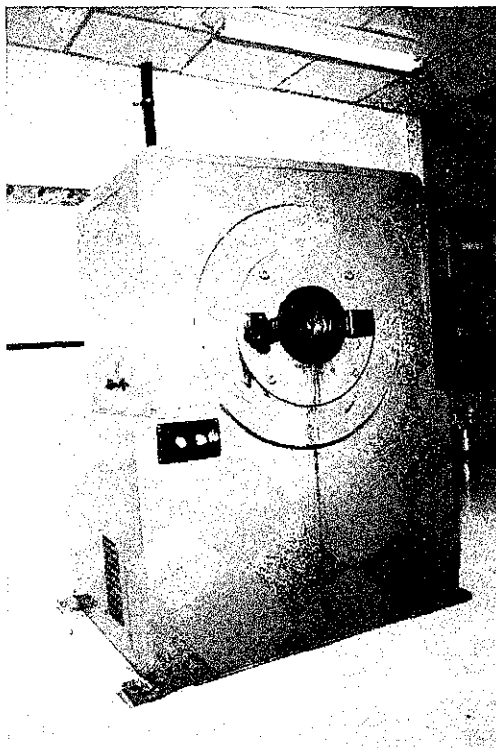


FIGURA 4.7 - Máquina de forjamento rotativo.

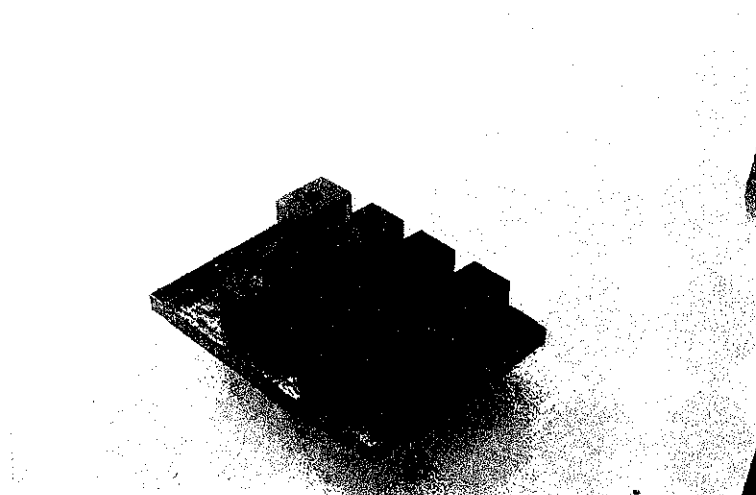


FIGURA 4.8 - Conjunto de castanhas utilizadas na maquina de forjamento.



#### 4.5 Máquina hidráulica de tração e compressão

A Figura 4.9 mostra a máquina hidráulica, marca KRATOS, com capacidade máxima de até 100 toneladas. Na Figura 4.10 é mostrado a matriz bipartida que foi adaptada na referida máquina para prensar tarugos de até 150 mm de comprimento.

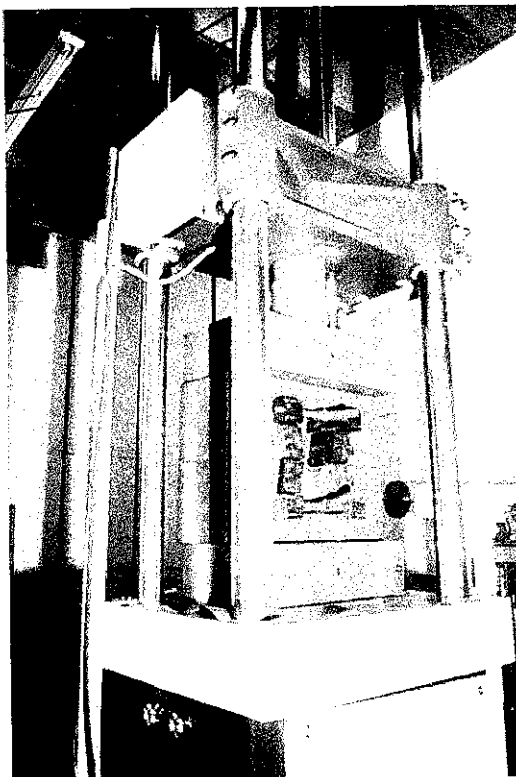


FIGURA 4.9 - Máquina Kratos na qual se realizou a etapa de prensagem da esponja de zircônio com pedaços de urânio.

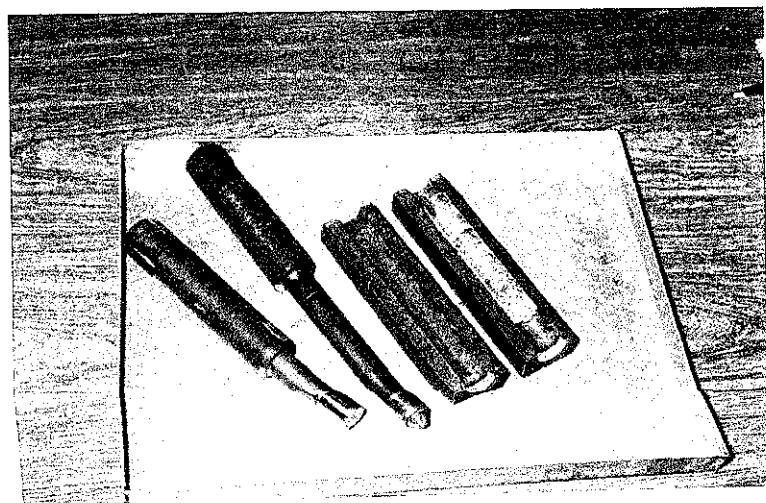


FIGURA 4.10 - Matriz utilizada para prensagem dos tarugos na máquina KRATOS.

#### 4.6 Câmara de luvas

A Figura 4.11 mostra uma câmara de luvas, também projetada e fabricada no CDTN, para realização de solda TIG nos tarugos prensados.

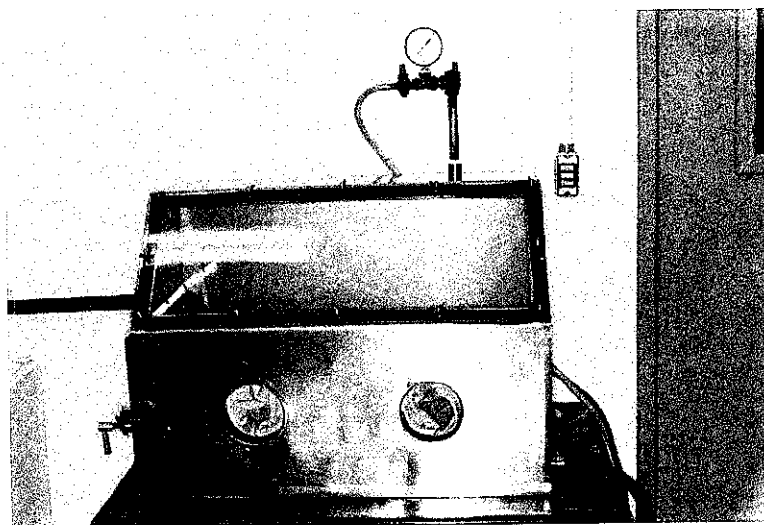


FIGURA 4.11 - Câmara de luvas onde se efetua a soldagem dos tarugos.

#### 4.7 Torno universal

A Figura 4.12 mostra o torno universal, marca Sanches Blanes, modelo CR, com sistema de anteparo contra respingos do líquido de refrigeração.

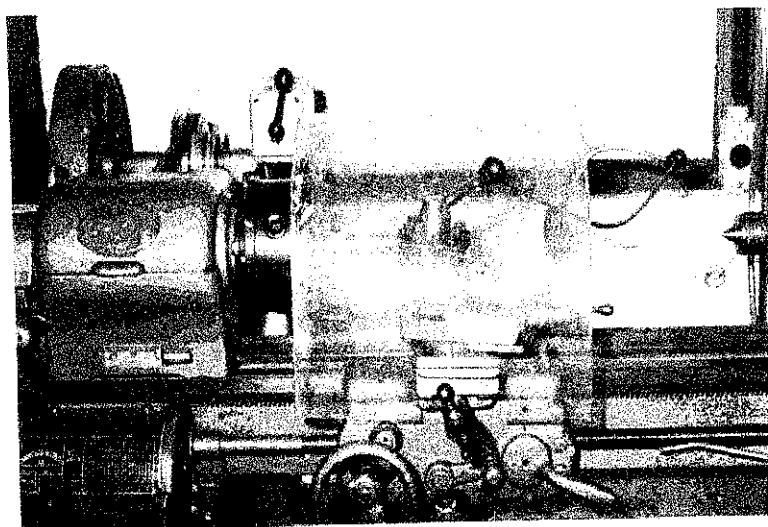


FIGURA 4.12 - Torno universal para usinagem da barra U-Zr.

#### 4.8 Prensa manual

A Figura 4.13 mostra a prensa com capacidade máxima de até 12 toneladas.

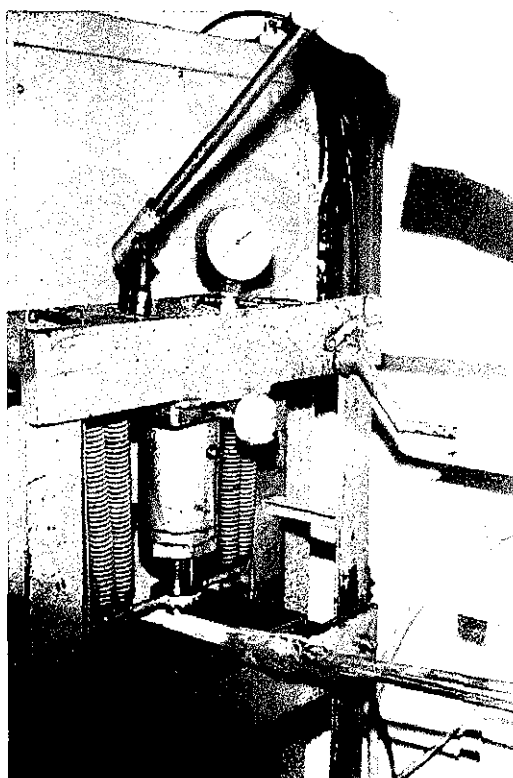


FIGURA 4.13 - Prensa manual utilizada para desempenar a barra da liga U-Zr após o forjamento final.

#### 4.9 Matéria prima

Para produção da liga U-Zr, o urânio natural foi fornecido pelo Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) e a esponja de zircônio pelo Centro Tecnológico da Marinha em São Paulo (CTMSP). O urânio fornecido com 1 polegada de diâmetro foi seccionado em pequenos pedaços, como pode ser visto na Figura 4.14. Antes de sua fusão, para retirar a camada de óxido que se forma em sua superfície, fez-se necessário uma decapagem química, utilizando solução aquosa de ácido nítrico a 20%, durante 20 minutos. O zircônio na forma de esponja, como pode ser visto na Figura 4.15, foi submetido a uma limpeza química, utilizando-se acetona em uma cuba de ultra-som.



FIGURA 4.14 - O urânio, após ser seccionado em pequenos pedaços, para ser compactado com a esponja de zircônio.



FIGURA 4.15 - Esponja de zircônio utilizada nas fusões nos fornos a arco e de indução.

## 5. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Neste capítulo são relatadas as técnicas de fusão pelos processos em forno a arco com eletrodo consumível e em forno de indução, ambos sob vácuo.

### 5.1 Fusão da liga U-Zr em forno a arco com eletrodo consumível

Toda a tecnologia para obtenção da liga U-Zr em forno a arco e sob vácuo, existente no CDTN, foi desenvolvida no próprio Centro, projetando-se e construindo-se equipamentos, componentes e ferramentas [6]. Em paralelo, foi também desenvolvida a tecnologia de prensagem do urânio e zircônio, a soldagem do eletrodo e a conformação mecânica do lingote em forja rotativa.

No período de desenvolvimento do forno foram feitos testes, fundindo-se cargas a base de zircônio e de diversos outros materiais, como aço carbono, aço inoxidável, ligas de alumínio e titânio [50]. O titânio serviu para simular o zircônio, já que, no início deste trabalho, a disponibilidade deste metal era pequena. O titânio, produzido pela Companhia Vale do Rio Doce e o zircônio nos laboratórios do IPEN, ambos na forma de esponja, foram fornecidos ao CDTN para esse projeto de fusão da liga U-Zr. Posteriormente, a COPESP forneceu uma esponja de zircônio importada, de melhor qualidade e que foi utilizada neste trabalho.

Assim, a obtenção da liga U-Zr pelo processo de fusão em forno a arco com eletrodo consumível, segue as etapas de prensagem da esponja de zircônio com pedaços de urânio metálico, soldagem dos tarugos compactados, fusão do eletrodo, conformação mecânica e usinagem final.

Para prensagem do urânio (Figura 4.14) com a esponja de zircônio (Figura 4.15), de forma a obter um tarugo compacto, foi utilizada a máquina hidráulica de tração e compressão da marca KRATOS (Figura 4.9), com capacidade de 100 t, com uma matriz para compactação construída em aço-matriz na forma bipartida (Figura 4.10).

Após a realização de diversos testes para determinar a carga de prensagem versus densidade do compacto, definiu-se por uma carga correspondente a  $7,5 \text{ t/cm}^2$ . Como resultado, foram obtidos tarugos com cerca de  $150 \text{ mm}$  de comprimento por  $24 \text{ mm}$  de diâmetro e com densidade de 78% da densidade teórica.

A Figura 5.1 mostra a prensagem do tarugo, onde se vê o sistema de matriz e punção e na Figura 5.2 a seqüência de 3 tarugos prensados que, após soldados, darão origem ao eletrodo a ser fundido no forno a arco.

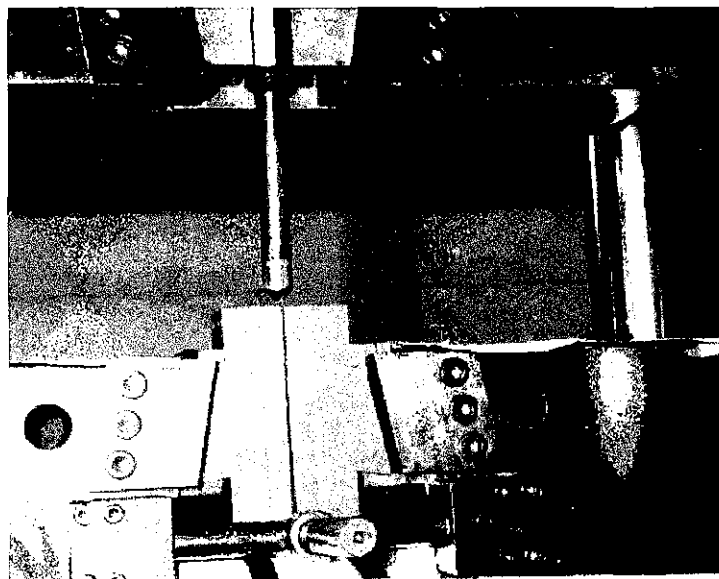


FIGURA 5.1 - Prensagem do tarugo U-Zr, onde se vê o sistema de matriz e punção.

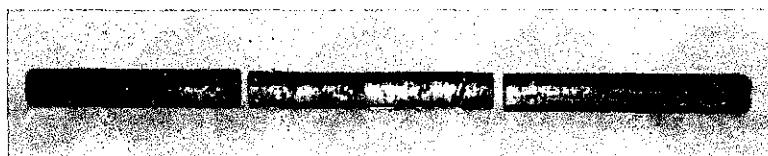


FIGURA 5.2 - Tarugos após prensagem.

Para soldagem destes tarugos empregou-se o processo TIG ( Tungsten Inert Gas) em câmara fechada (Figura 4.11), na qual foi feito um vácuo da ordem de mmHg, de modo a evitar uma possível contaminação do ambiente por vapores produzidos durante a soldagem. Entre a bomba de vácuo e a câmara foi instalado um “trap”. Os 3 tarugos foram fixados em gabarito apropriado, dentro da câmara, de modo a se conseguir, após a soldagem, um eletrodo com o melhor alinhamento possível. Em uma das extremidades do gabarito foi também posicionada uma pequena barra de zircaloy e a mesma soldada ao eletrodo. Esta barra teve como objetivo permitir a fixação do eletrodo na haste de alimentação do forno.

Os tarugos, soldados entre si, originaram um eletrodo com cerca de  $450\text{ mm}$  de comprimento e diâmetro de  $24\text{ mm}$ , sendo que os melhores parâmetros de soldagem deram-se com corrente de  $150\text{ A}$  e tensão de arco de  $20\text{ V}$ . A Figura 5.3 mostra o eletrodo após a soldagem.



FIGURA 5.3 - Eletrodo após a soldagem de 3 tarugos, observando-se a barra de zircaloy soldada na extremidade, para fixação na haste de alimentação do forno a arco.

A Figura 5.4 mostra o interior da câmara do forno, no qual está evidenciado, na parte superior, o eletrodo fixado no bocal da haste de alimentação e, na parte inferior, o cadinho de cobre, sendo a haste de alimentação e cadinho refrigerados a água. O procedimento para fusão do eletrodo, quando executado manualmente, requer um controle da alimentação do eletrodo, pois a estabilidade do arco depende da distância eletrodo-banho. Portanto, foi necessário realizar um grande número de experimentos preliminares, visando fixar os parâmetros adequados para a etapa de fusão do eletrodo.

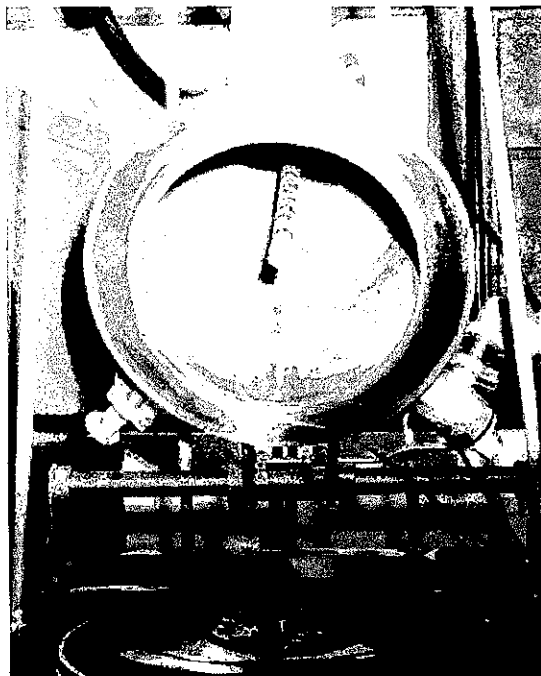


FIGURA 5.4 - Vista do interior da câmara do forno, onde está posicionado o eletrodo. Na parte inferior vê-se o cadinho de cobre.

Após estes experimentos verificou-se que a corrente adequada para fundir o eletrodo seria de  $850 A$ , com uma tensão de  $29 V$ , resultando uma taxa de fusão de  $0,24 kg/min$ .

Antes de energizar o sistema, é colocado no fundo do cadinho “aparas” de zircônio com a finalidade de se abrir, por contato, o arco voltaico entre o eletrodo e o cadinho. A seguir é feito

um vácuo de  $10^{-3}$  Torr na câmara e em seguida energizado o sistema. As “aparas” são fundidas e geram vapor na abertura do arco que contribuem para a manutenção do mesmo. Assim que o arco é aberto e estabilizado, o sistema automático de alimentação do eletrodo é imediatamente acionado. Finalmente, obtém-se um lingote que, no estado bruto de fusão, possui 50 mm de diâmetro e 75 mm de comprimento.

A Figura 5.5 mostra, à direita, o tarugo da liga U-Zr em estado bruto de fusão e, à esquerda, o tarugo após usinagem superficial, onde nota-se um acabamento superficial adequado (ausência de poros ou vazios).

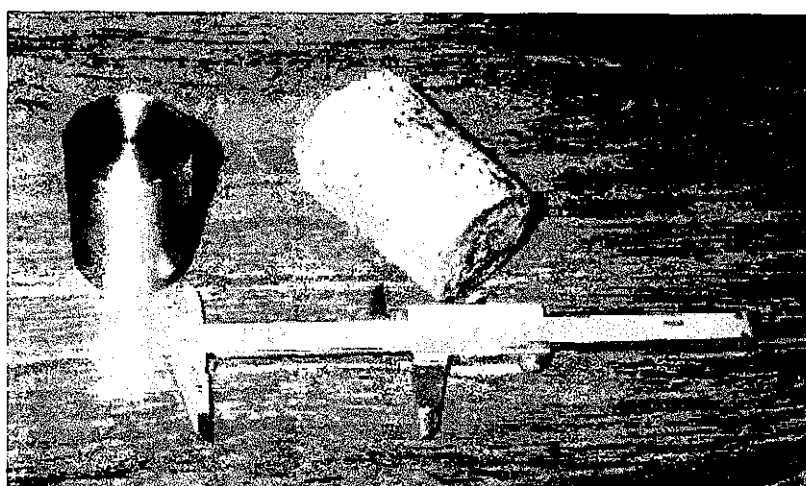


FIGURA 5.5 - Lingote U-Zr após a fusão e, ao lado, um lingote usinado na superfície. Observa-se a ausência de poros ou vazios no lingote usinado.

A etapa de conformação mecânica foi realizada em forja rotativa, utilizando um conjunto de 6 pares de matrizes, conforme mostrado nas Figuras 4.7 e 4.8. O lingote tem seu diâmetro reduzido de 50 mm para 24 mm, através dos 6 passos de redução, conforme seqüência abaixo:

- |                                   |                                   |
|-----------------------------------|-----------------------------------|
| 1) de 50 para 46 mm $\approx$ 08% | 4) de 35 para 31 mm $\approx$ 11% |
| 2) de 46 para 39 mm $\approx$ 15% | 5) de 31 para 27 mm $\approx$ 13% |
| 3) de 39 para 35 mm $\approx$ 10% | 6) de 27 para 24 mm $\approx$ 11% |

Devido ao trabalho de redução do diâmetro, o lingote tem sua dureza aumentada, inviabilizando a seqüência de redução. Assim, fez-se necessário proceder um tratamento térmico entre cada passo de redução, visando eliminar os efeitos do encruamento provocados pela deformação plástica. Para tanto estabeleceu-se, como condição de tratamento térmico, manter o



lingote a uma temperatura de  $800^{\circ}\text{C}$ , por aproximadamente 5 minutos. Na Figura 4.6, é mostrado o forno tubular utilizado para realizar este tratamento.

A Figura 5.6 mostra o lingote sendo introduzido na forja rotativa, imediatamente após o tratamento térmico a temperatura de  $800^{\circ}\text{C}$ .

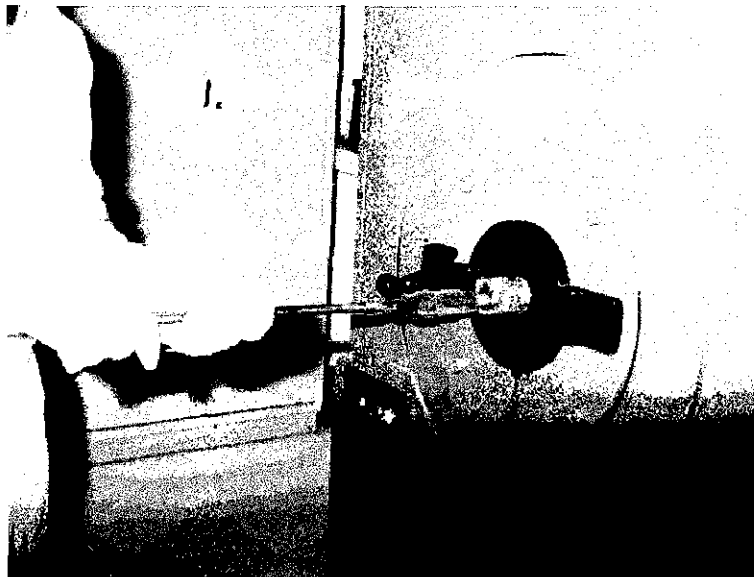


FIGURA 5.6 - Forjamento a quente do lingote em forja rotativa.

Após o último passo de redução, para eliminar qualquer empenamento resultante do forjamento, o eletrodo é desempenado a quente em uma pequena prensa manual (Figura 4.13). Em seguida, são cortadas suas extremidades, usando-se um disco diamantado. De uma extremidade retira-se o rabicho de “pega” da pinça, que é “soldado” ao lingote, no próprio forno, no final da fusão do eletrodo e da outra extremidade a rebarba provocada pelo forjamento. Na Figura 5.7 mostra-se uma barra após o forjamento e desempeno, e ainda 3 outras barras após usinagem superficial final.

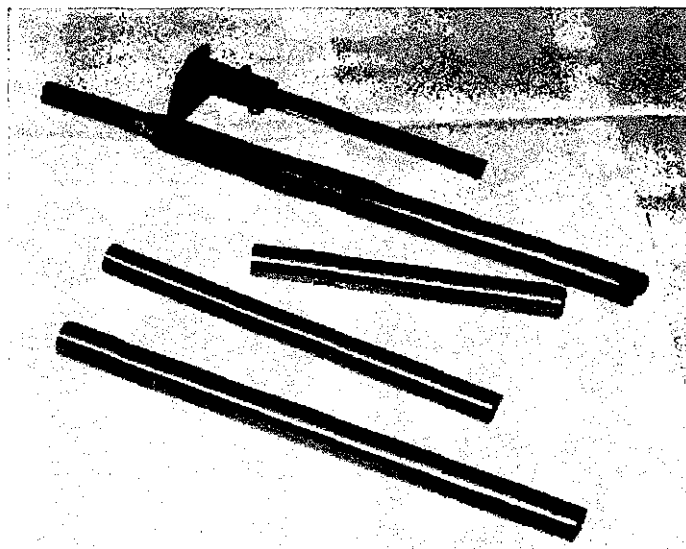


FIGURA 5.7 - Barras da liga U-Zr após forjamento e usinagem final.

A usinagem da barra é realizada em um torno universal (Figura 4.12), no qual foi necessário adaptar um sistema de anteparo contra respingos do líquido de refrigeração.

### 5.2 Fusão da liga U-Zr em forno de indução

Com o objetivo de avaliar o outro processo de produção desta liga, conforme proposto neste trabalho, empregou-se o forno de indução a vácuo (Figura 4.1). Como já citado anteriormente, neste processo são eliminadas as etapas de *prensagem* e *soldagem do eletrodo* tendo-se, ainda, a expectativa de se obter uma melhor distribuição do urânio ao longo das direções longitudinal e transversal do lingote.

Foram fabricados cadinhos de grafita com  $87 \text{ cm}^3$  de volume (Figura 4.2) e capacidade para fundir até  $600 \text{ g}$  da liga U-Zr. O vazamento da liga fundida deu-se em uma lingoteira de cobre (Figura 4.3) não refrigerada, de forma cilíndrica e bipartida, de modo a facilitar a retirada do fundido após sua solidificação. O material escolhido para fabricar a lingoteira foi o cobre, devido à sua alta capacidade em dissipar o calor, favorecendo um bom acabamento superficial[10], bem como uma rápida desgaseificação do fundido, obtendo-se um lingote livre de defeitos do tipo bolhas e poros.

Para evitar o centelhamento entre o cadinho de grafita e a bobina, isolou-se o cadinho com uma camisa refratária (Figura 4.4) fabricada com cimento de alumina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Após uma série de operações, foi constatado que esta camisa resiste no máximo a 4 operações, pois sua baixa resistência aos esforços gerados por mudanças bruscas de temperatura (choques térmicos) provocam inúmeras fissuras e trincas ao longo da mesma.

A Figura 5.8 mostra o interior da câmara, onde se vê o conjunto da bobina, camisa refratária, cadinho de grafita e a lingoteira.

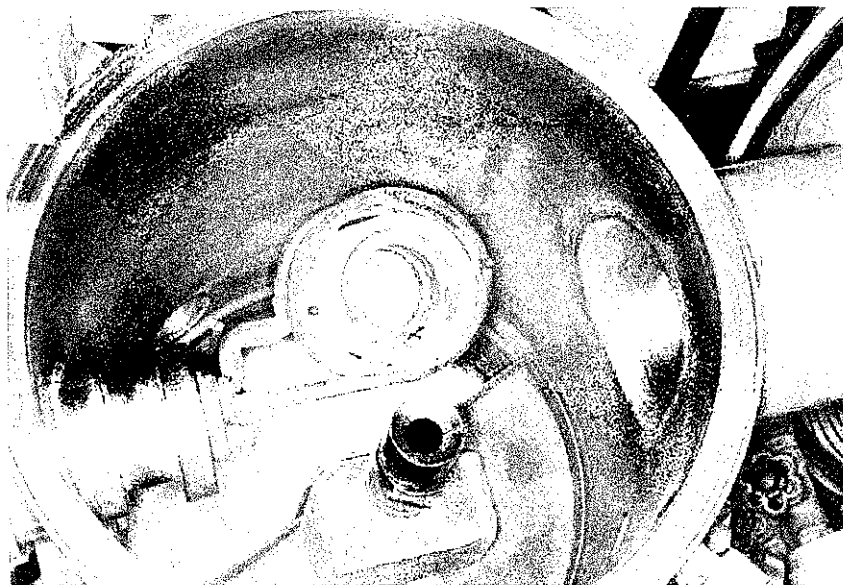


FIGURA 5.8 - Vista do interior da câmara do forno de indução, onde se vê a bobina, camisa refrataria, cadinho de grafita e a lingoteira de cobre.

O posicionamento da carga dentro do cadinho de grafita foi o mesmo em todas as fusões. O zircônio, de ponto de fusão superior e densidade inferior ao do urânio, foi carregado no fundo do cadinho, devido ao perfil de temperatura que se obtém ao longo do cadinho (mais alto na posição inferior). Assim, o urânio foi posicionado sobre o zircônio, retardando sua fusão e, conseqüentemente, reduzindo o tempo de contato com o carbono, que possui alta solubilidade no urânio líquido [17, 26] (Tabela 3.3).

Na preparação da carga, procurou-se evitar que a mesma ficasse pressionada nas paredes internas do cadinho e impedida de descer para o banho, à medida que ocorresse sua fusão. O volume da carga foi calculado e dimensionado de tal forma que ela, no estado líquido, ocupasse no máximo 70% do volume útil do cadinho ( $\cong 61 \text{ cm}^3$ ) e assim, facilitasse o controle de efervescência do fundido, não permitindo sua projeção para fora do cadinho.

Supondo que neste processo as maiores dificuldades seriam aquelas decorrentes da alta temperatura de fusão do zircônio em relação ao urânio e, conseqüentemente, os níveis de contaminação com o carbono, foi realizada uma série de testes preliminares. Nestes, como observou-se na seção 5.1, também empregaram-se esponjas de titânio em substituição ao zircônio, devido à pouca disponibilidade deste último e, também, devido à sua similaridade ao zircônio, relativamente ao alto ponto de fusão e à afinidade por carbono.

As primeiras experiências tiveram como objetivo ajustar os parâmetros deste processo como, por exemplo, a taxa de aquecimento, o tempo de efervescência e a potência. Foram estabelecidos três pontos básicos que nortearam as fusões subseqüentes:

1. Preparar a carga no cadinho e evacuar a câmara até um vácuo melhor que  $10^{-2}$  Torr;
2. Fixar a potência do forno em 25 kW e iniciar o aquecimento até a completa fusão da carga. Para tal, verificou-se ser necessário um período de 5 minutos;
3. Elevar a potência do forno para 30 kW, visando aumentar rapidamente a temperatura do banho, manter por 1 minuto e finalmente desenergizar, efetuando imediatamente o lingotamento.

Tal procedimento teve como objetivo, realizar a fusão no menor tempo possível, evitar a solidificação da liga dentro do cadinho durante o lingotamento e, principalmente, permitir maior efervescência do banho, favorecendo a eliminação de impurezas voláteis, segregação das não voláteis para sua superfície [11] e evitar a macrosegregação. A alta velocidade de aquecimento e, portanto, pouco tempo de contato do material fundido com o cadinho, teve como objetivo a redução da contaminação pelo carbono. Um conjunto de 4 lingotes denominados de **FI**, foram selecionados e serão apresentados a seguir.

## 6. RESULTADOS

Os resultados das caracterizações dos processamentos da liga U-Zr, como descritos nos procedimentos experimentais (seções 5.1 e 5.2), são apresentados a seguir.

### 6.1 Caracterização da liga obtida em forno a arco com eletrodo consumível

Fixados os parâmetros que envolvem as etapas deste processo (seção 5.1), foram realizados vários testes para se estabelecer as condições operacionais adequadas. Após várias fusões, selecionou-se o lingote FA-01 para ser caracterizado e analisado neste trabalho.

#### 6.1.1 Análise por varredura gama

Para esta análise foi necessário realizar uma montagem que, basicamente, consistiu em posicionar o lingote numa blindagem de chumbo. Nesta blindagem fez-se uma “janela” e, em frente, posicionou-se um detetor de Ge-Li. Durante 50 minutos, em cada posição predeterminada ao longo do lingote, foi realizada a contagem integral do espectro  $\gamma$  do urânio natural. Desta forma, determinou-se qualitativamente a distribuição do urânio na direção longitudinal do lingote FA-01. O resultado está mostrado na Figura 6.1.

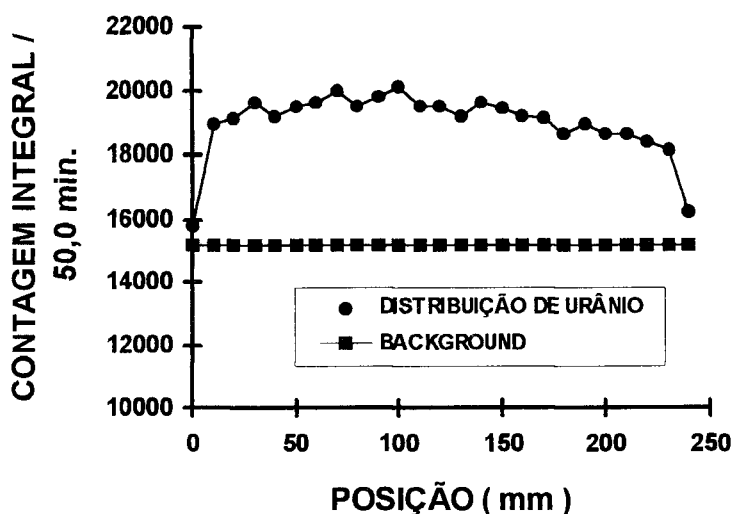


FIGURA 6.1 - Espectro de varredura gama determinando a distribuição de urânio ao longo do lingote FA-01.

Nesta figura constata-se que, após a primeira fusão em forno a arco, houve uma variação de até aproximadamente 20% ao longo do lingote na contagem integral registrada pelo detector. Isto indica que, certamente, não ocorreu uma distribuição homogênea do urânio na direção longitudinal do lingote.

#### 6.1.2 Análises química (A.Q.) e por nêutrons retardados (A.N.R.)

Para quantificar os teores de urânio e zircônio, foram retiradas três amostras (A,B,C) na direção longitudinal do lingote **FA-01**. Os métodos empregados na análise química foram volumetria para o urânio e gravimetria para o zircônio, sendo que, para o primeiro, também realizou-se a análise por nêutrons retardados, visando comparar os resultados deste processo com os obtidos por análise química. Os resultados estão mostrados na Tabela 6.1.

TABELA 6.1 - Teor de zircônio e urânio ao longo do lingote obtido em forno a arco, para três amostras A, B e C

ZIRCÔNIO (% peso)			URÂNIO (% peso-A.Q.)			URÂNIO (% peso-A.N.R.)		
A	B	C	A	B	C	A	B	C
94	93	93	5,0	6,3	5,6	5,5	6,6	6,1

Os resultados mostrados na Tabela 6.1 confirmam a análise qualitativa obtida por varredura gama (Figura 6.1), ou seja, ocorreu uma significativa variação na distribuição de urânio ao longo do lingote. Para obter uma melhoria neste aspecto, foi então realizada a refusão em forno a arco, com o posterior forjamento do lingote. Como anteriormente, também foram retiradas três amostras na direção longitudinal mas, desta vez, enviados somente para A.N.R., uma vez que este processo analítico é mais ágil e os resultados podem ser prontamente obtidos. Na Tabela 6.2. são mostrados estes resultados.

TABELA 6.2 - Distribuição de urânio após refusão em forno a arco, para três amostras A, B e C.

URÂNIO (% peso-A.N.R.)		
A	B	C
5,4	5,9	5,5

A Tabela 6.2 indica que, após a refusão em forno a arco, a distribuição de urânio ao longo do lingote apresentou uma sensível melhoria.

### 6.1.3 Análise difratométrica

As medidas por difração de RX foram feitas em difratômetro Rigaku, modelo Geigerflex, com o uso de um tubo de cobre e cristal monocromador, com as seguintes condições operacionais:

-tensão: 40 kV; corrente: 30 mA; fator de escala: 400; constante de tempo: 2 s; velocidade do goniômetro: 4° 2θ/min; velocidade do registrador: 20mm/min. O resultado está mostrado na Figura 6.2.

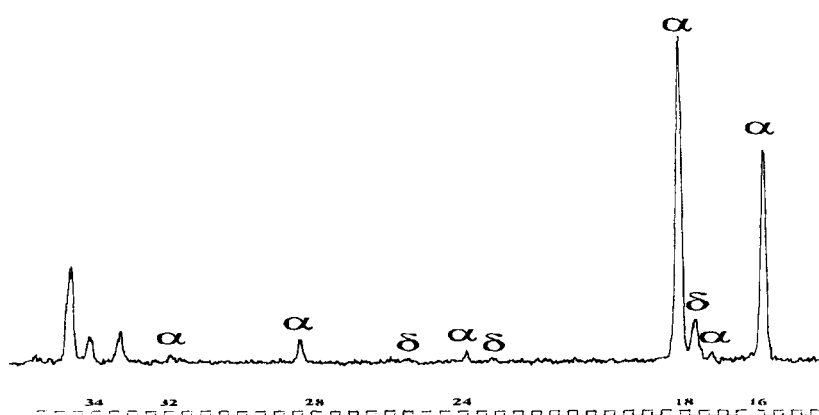


FIGURA 6.2 - Difratograma realizado em amostra do lingote obtido em forno a arco.

Como era esperado, tendo por base o diagrama de equilíbrio da liga U-Zr( Figura 3.10), o difratograma, Figura 6.2, mostra que há predominância da fase α (Zr) e em menor quantidade a fase δ (UZr<sub>2</sub>).

#### 6.1.4 Análise metalográfica

Para o exame metalográfico, utilizou-se as amostras da análise difratométrica que foram polidas e atacadas com uma solução de 45% HNO<sub>3</sub>, 45% H<sub>2</sub>O e 10% HF[51]. As micrografias foram obtidas em um microscópio óptico Ortholux II Pol-BK Leitz Wetzlar, com câmara fotográfica Orthomat, com aumentos de 200 e 500 X. Nas Figuras.6.3-a e 6.3-b são mostradas as amostras no estado bruto de fusão e nas Figuras 6.4-a e 6.4-b, após um tratamento térmico de recozimento a 900<sup>o</sup>C por 5 minutos.

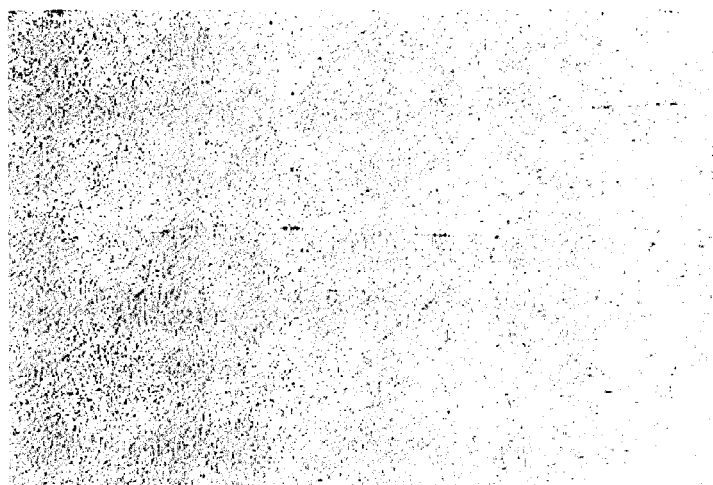


FIGURA 6.3-a - Micrografia de amostra (forno a arco) no estado bruto de fusão.

Aumento 200X



FIGURA 6.3-b - Micrografia da mesma amostra e região da foto anterior.

Aumento 500X



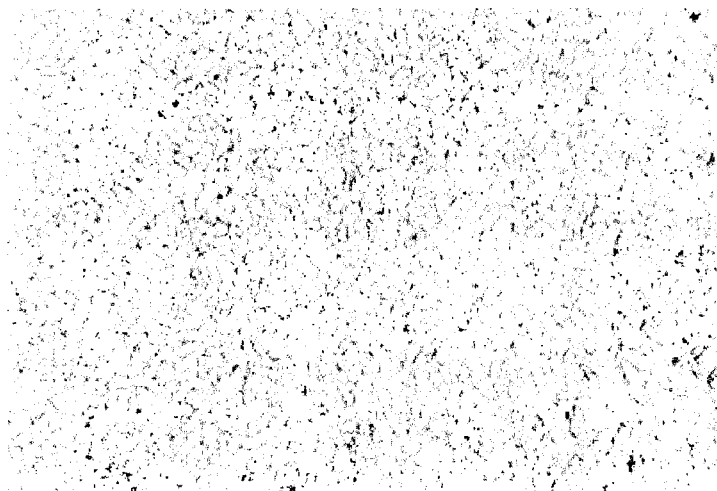


FIGURA 6.4-a - Micrografia de amostra (forno a arco) após o tratamento térmico.  
Aumento 200X

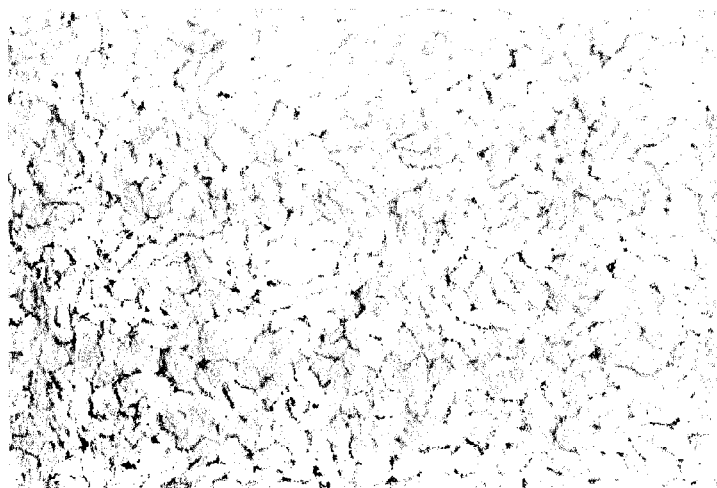


FIGURA 6.4-b - Micrografia da mesma amostra e região da foto anterior.  
Aumento 500X

Observa-se nas Figuras 6.3-a e 6.3-b a presença predominante da fase  $\alpha$  (Zr), na tonalidade clara e em menor quantidade (escura), a fase  $\delta$  ( $UZr_2$ ). Nota-se também a presença de inclusões alinhadas, provavelmente oriundas de impurezas presentes na matéria prima. Nas Figuras 6.4-a e 6.4-b, está evidenciado a mudança na morfologia das fases presentes, de acicular (estado bruto de fusão) para equiaxial, após o tratamento térmico.

### 6.1.5 Análise por auto-radiografia

Para esta análise qualitativa, três amostras foram extraídas do lingote obtido em forno a arco e expostas em filme radiográfico/Kodak-INDUSTREX AA-5 por 5 dias, cujo resultado está mostrado na Figura 6.5.

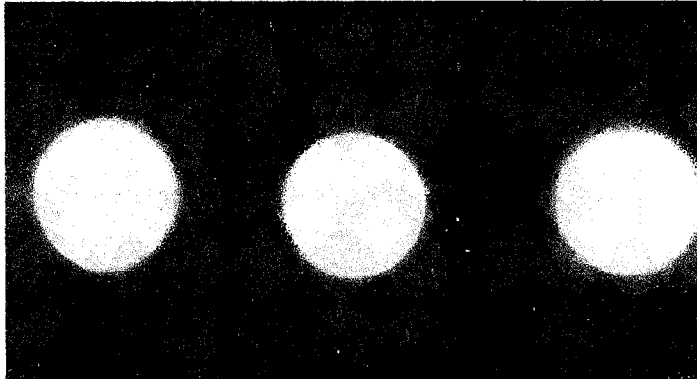


FIGURA 6.5 - Foto da auto-radiografia da amostra do lingote obtido em forno a arco.

Note-se que a referida Figura, uma foto da auto-radiografia, revela a presença de urânio na região branca distribuído homogeneamente em toda seção.

### 6.1.6 Ensaios mecânicos

Para o ensaio de tração foi utilizada a máquina INSTRON-MOD.TT-DML, com capacidade para 10 t, de acordo com a norma ASTM/E-8 (*Métodos para ensaio de tração de materiais metálicos*). Os resultados são mostrados abaixo:

- Limite de resistência- $\sigma_u \cong 75,6 \text{ kgf/mm}^2 \cong 108 \text{ ksi} \cong 107.549 \text{ psi}$ .
- Limite de escoamento- $\sigma_{y(0,2)} \cong 68,9 \text{ kgf/mm}^2 \cong 98 \text{ ksi} \cong 97.975 \text{ psi}$ .
- Módulo de elasticidade- $E \cong 1,8 \times 10^3 \text{ kgf/mm}^2 \cong 2,6 \times 10^6 \text{ psi}$
- Deformação-  $e = \Delta L/L_0 \cong 2,9 \text{ mm}/32\text{mm} \cong 9,0\%$

Para o ensaio de dureza Brinell (HB), utilizou-se um durômetro Diatestor, com carga de 62,5 kgf, esfera de 2,5 mm e o ensaio foi realizado de acordo com a norma ASTM/E-10 (*Métodos de ensaio para dureza Brinell de materiais metálicos*). As medidas foram realizadas em amostras retiradas na seção transversal do corpo de prova utilizado no ensaio de tração. O valor médio encontrado de um número de 5 avaliações foi de aproximadamente 218 HB. Deve-se ressaltar que

os ensaios de tração e dureza foram realizados no lingote após o tratamento térmico de recozimento a  $900^{\circ}\text{C}$  por 5 minutos.

## 6.2 Caracterização da liga obtida em forno de indução

Pelo processo de fusão em forno de indução obteve-se os lingotes **FI-01**, **FI-02**, **FI-03** e **FI-04**, cuja composição e condições de operação são mostrados na Tabela 6.3. Como o detetor Ge-Li não estava em condições de operação, não foi possível realizar, nestes lingotes, a análise qualitativa por varredura gama para se obter a distribuição do urânio na direção longitudinal do lingote.

TABELA 6.3 - Parâmetros dos 04 lingotes obtidos em forno de indução.

PARÂMETROS	FI-01	FI-02	FI-03	FI-04
Peso de urânio(g)	45,0	42,0	45,7	22,2
Peso de zircônio(g)	515,0	485,0	525,6	254,2
Peso total(g) -	560,0	527,0	571,3	276,4
Cadinho de grafita	1 <sup>a</sup> fusão	2 <sup>a</sup> fusão	3 <sup>a</sup> fusão	4 <sup>a</sup> fusão
Vácuo(Torr)	$10^{-2}$	$10^{-2}$	$10^{-2}$	$10^{-3}$
Potência até fusão (kW)	25	25	25	25
Potência após fusão (kW)	25	30	30	25
Tempo até fusão (m)	4,50	4,50	4,25	4,50
Tempo após fusão (m)	1,00	1,00	1,00	0,25
Tempo total (m)	5,50	5,50	5,25	4,75
Peso lingote (g)	476,0	510,2	562,7	262,9

### 6.2.1 Análises química (A.Q.) e por nêutrons retardados (A.N.R.)

Para uma melhor representatividade, os 4 lingotes obtidos em forno de indução foram seccionados transversalmente e 4 amostras (A,B,C,D) retiradas em cada uma das extremidades seccionadas, como evidenciado na Figura 6.6

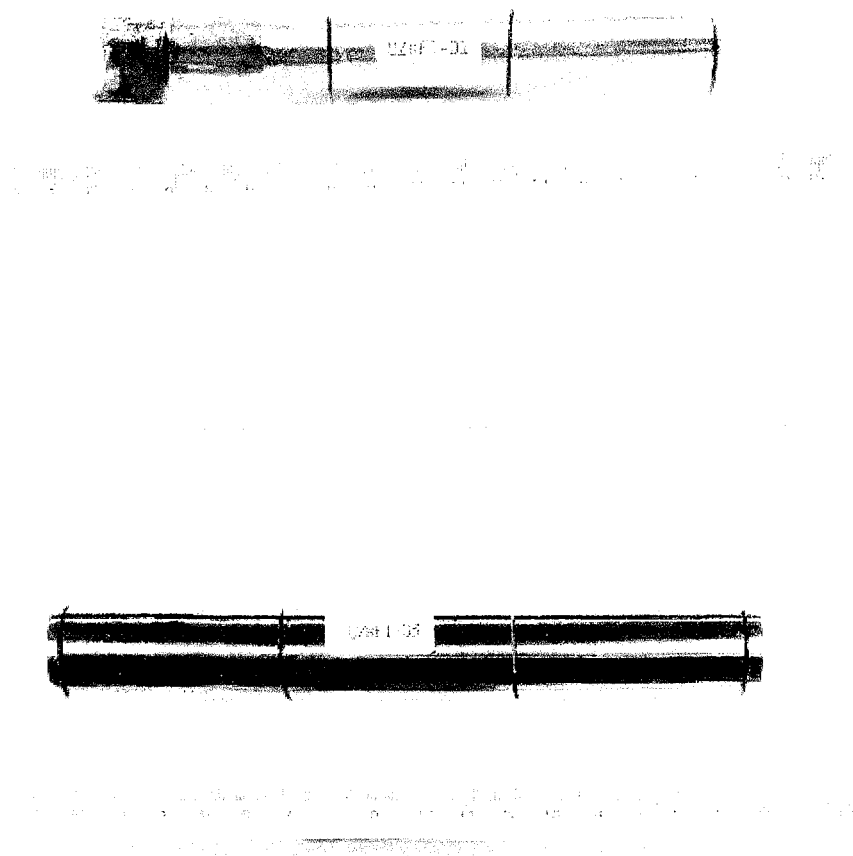


FIGURA 6.6 - Foto identificando o local onde foram extraídas as limalhas para análises química e por nêutrons retardados.

Os resultados das análises químicas de zircônio e urânio, cujos métodos são descritos na seção 6.1.2, estão apresentados na Tabela 6.4 juntamente com a análise de urânio por nêutrons retardados.

TABELA 6.4 - Análises química do zircônio e urânio e por nêutrons retardados do urânio, para quatro amostras A, B, C e D.

LINGOTES	ZIRCÔNIO (%PESO)				URÂNIO (%PESO-A.Q.)				URÂNIO (%PESO-A.N.R.)			
	A	B	C	D	A	B	C	D	A	B	C	D
FI-01	91	91	92	91	7,9	7,9	7,9	7,9	8,1	7,8	7,9	7,7
FI-02	93	92	90	92	7,9	7,9	7,9	7,8	8,1	7,9	7,9	8,0
FI-03	91	91	91	92	7,8	7,8	7,8	7,8	7,8	7,8	7,9	8,0
FI-04	92	92	91	91	-	-	-	-	8,1	8,1	8,3	8,2

Tendo em vista que estes lingotes foram fundidos em cadinhos de grafita sem revestimento, foi necessário realizar análise de carbono para identificar os níveis de contaminação. A Tabela 6.5 apresenta o teor de carbono contido inicialmente na carga e, na Tabela 6.6, os resultados obtidos após a fusão em forno de indução.

TABELA 6.5 - Teor de carbono no zircônio e no urânio antes da fusão em forno de indução.

CARGA	CARBONO (% PESO)
Zr	0,010 a 0,020
U	0,083

TABELA 6.6 - Análise de carbono após fusão em forno de indução, para as amostras A, B, C e D

LINGOTES	CARBONO (% PESO)			
	A	B	C	D
FI-01	0,32	0,31	0,32	0,32
FI-02	0,29	0,30	0,29	0,29
FI-03	0,30	0,28	0,32	0,29
FI-04	0,20	0,19	-	0,20

Mesmo com a técnica de retardar a fusão do urânio, posicionando-o dentro do cadinho sobre a esponja de zircônio (seção 5.2), sua fusão ocorreu aproximadamente 1,0 minuto antes do zircônio. Parece que a contaminação com o carbono, conforme evidenciado na Tabela 6.6, decorra do fato do urânio líquido permanecer por tempo excessivo ( $\approx 2$  minutos) em contato com o cadinho de grafita. Para reduzir este tempo de contato e assim minimizar essa contaminação, foram realizadas mais 2 fusões em forno de indução adotando-se o seguinte procedimento: O zircônio e o urânio foram previamente prensados, de modo que o urânio, quando no estado líquido, pudesse permanecer retido no tarugo até a completa fusão do zircônio, não entrando em contato com o cadinho. Os demais procedimentos foram os mesmos descritos na seção 5.2 e os resultados da análise de carbono, após concluído estas fusões, estão mostrados na Tabela 6.7.

TABELA 6.7 - Teor de carbono e tempo de efervescência, após a fusão dos tarugos prensados de zircônio e urânio.

LINGOTES	CARBONO (%PESO)	TEMPO (MIN.)
FI-05	0,34	1,00
FI-06	0,26	0,50

Como a contaminação por carbono no processo de fusão em forno de indução parece ser inevitável, o passo seguinte foi unir os dois processos pois, se for possível reduzir o carbono nas

altas temperaturas do arco, será possível usar as vantagens da fusão em forno de indução associadas com as de forno a arco.

Para esta etapa do trabalho, foi necessário fabricar uma lingoteira com dimensões e geometria correspondentes à do eletrodo utilizado no forno a arco, isto é, 24 mm de diâmetro. Em seguida, foram realizadas fusões de zircônio puro no forno de indução, sendo que um dos lingotes foi refundido duas vezes no forno a arco. Após a fusão em forno de indução e a dupla refusão em forno a arco, amostras foram extraídas do lingote para análise de carbono e os resultados estão na Tabela 6.8.

TABELA 6.8-Variação de carbono no zircônio puro antes e após a dupla refusão em forno a arco.

ZIRCÔNIO PURO	CARBONO (% PESO)
Após a fusão em forno de indução	0,24 a 0,38
Após a 1ª refusão em forno a arco	0,14
Após a 2ª refusão em forno a arco	0,13

Os resultados apresentados na Tabela 6.8, indicam que não há necessidade da 2ª refusão em forno a arco, tendo em vista que a redução significativa ocorreu somente após a 1ª refusão.

Na expectativa de que esta redução também ocorresse com a liga U-Zr, foram refundidos em forno a arco os 3 lingotes **FI-01/FI-02/FI-03**. Após estas refusões, novas amostras foram retiradas dos lingotes **FI** e submetidas à análise de carbono. Os resultados podem ser vistos na Tabela 6.9.

TABELA 6.9 - Análise do teor de carbono em lingotes FI após refusão em forno a arco.

LINGOTES	CARBONO (% PESO)
FI-01	0,32
FI-02	0,29
FI-03	0,29

Como pode ser constatado, a esperada redução no teor de carbono, como a que ocorreu no lingote de zircônio puro após refusão em forno a arco (Tabela 6.8), não se repetiu na liga U-Zr.

### 6.2.2 Análise difratométrica

Esta análise foi realizada no mesmo equipamento e nas mesmas condições operacionais (seção 6.1.3) utilizadas no difratograma do lingote obtido em forno a arco.

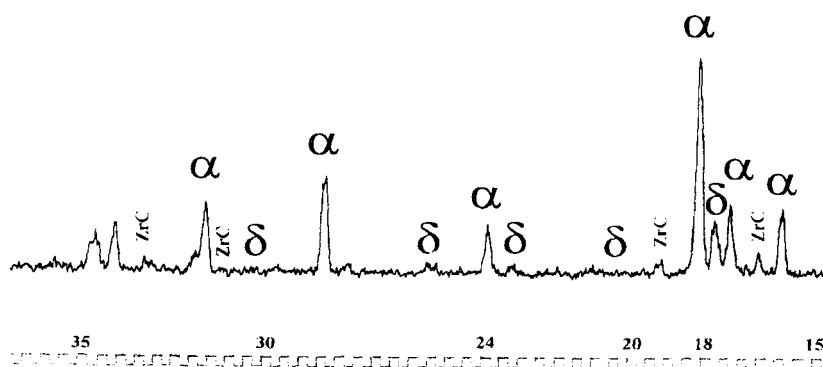


FIGURA 6.7 - Difratograma realizado em amostra do lingote obtido em forno de indução.

No difratograma, Figura 6.7, constata-se que há uma ampla predominância da fase  $\alpha$  (Zr), uma menor quantidade a fase  $\delta$  ( $\text{UZr}_2$ ) e, ainda, traços de carboneto de zircônio (ZrC).

### 6.2.3 Análise metalográfica

O exame metalográfico foi realizado nas amostras da análise difratométrica, adotando-se o mesmo equipamento e procedimento de preparação citados na seção 6.1.4. As análises



metalográficas foram realizadas em amostras no estado bruto de fusão e após o tratamento térmico de recozimento a  $900^{\circ}\text{C}$  por 5 minutos.

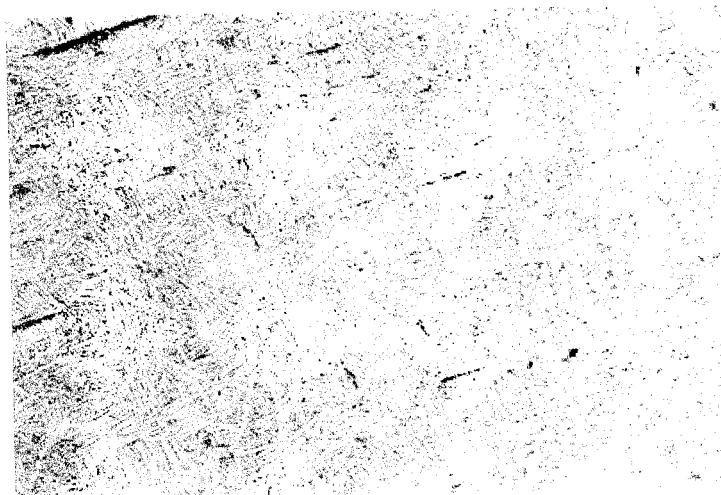


FIGURA 6.8-a - Micrografia de amostra (forno de indução) no estado bruto de fusão -  
Aumento 200X

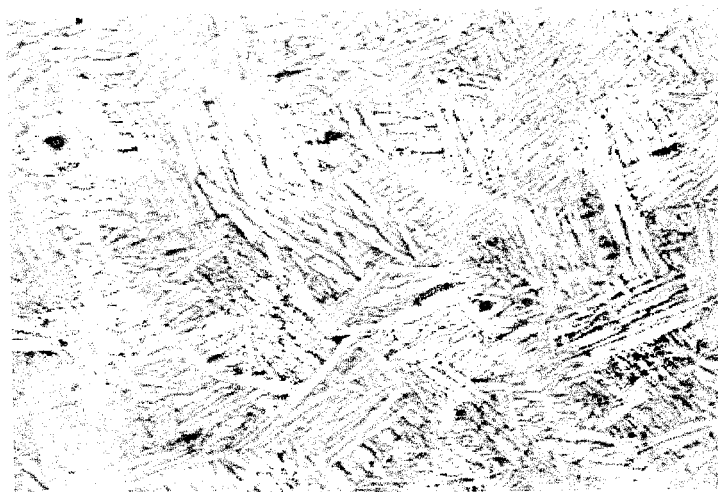


FIGURA 6.8-b - Micrografia da mesma amostra e região da foto anterior  
Aumento 500X

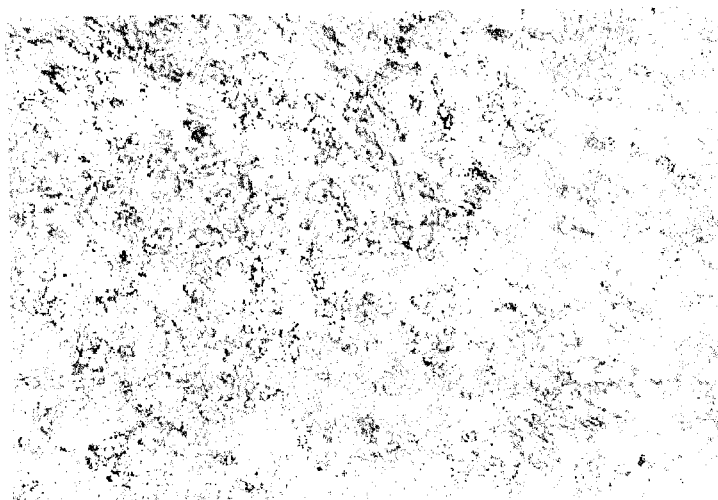


FIGURA 6.9-a - Micrografia de amostra (forno de indução) após tratamento térmico.

Aumento 200X

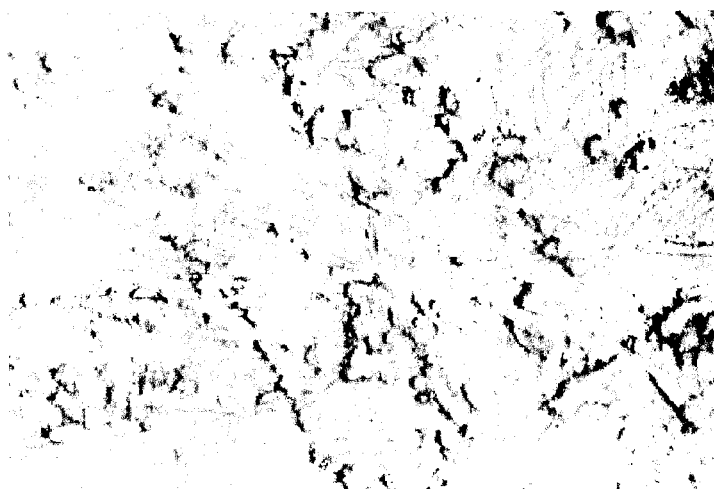


FIGURA 6.9-b - Micrografia da mesma amostra e região da foto anterior

Aumento 500X

Nas Figuras 6.8-a e 6.8-b estão evidenciadas as estruturas da amostra no estado bruto de fusão. Consta-se que há predominância da fase  $\alpha$  (Zr), na tonalidade clara e em menor quantidade a fase  $\delta$  ( $UZr_2$ ), na tonalidade escura. Verifica-se também a presença de inclusões alinhadas, provavelmente ricas em carbono. Nas Figuras 6.9-a e 6.9-b estão evidenciadas as estruturas obtidas após o tratamento térmico de recozimento. Nestas, observa-se a mudança na morfologia, de acicular para equiaxial.

#### 6.2.4 Análise por auto-radiografia

Os lingotes **FI-01/FI-02/FI-03** foram seccionados transversalmente e, retirada amostras que após exposição em filme radiográfico/Kodak-INDUSTREX AA-5 por 5 dias, apresentaram os resultados mostrados na Figura 6.10.

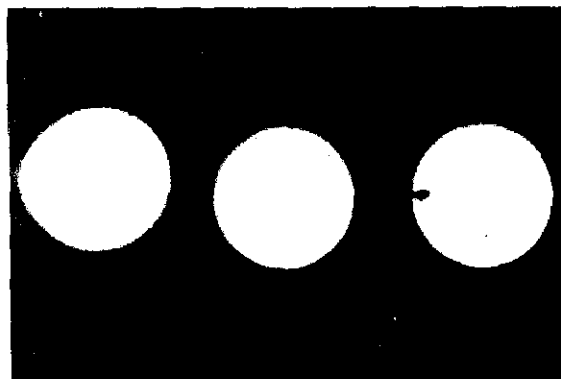


FIGURA 6.10 - Foto da auto-radiografia da amostra do lingote obtido em forno de indução.

Esta Figura, uma foto da auto-radiografia, revela a presença de urânio distribuído uniformemente na região clara e a presença de pequenos defeitos, evidenciados, nos pontos escuros.

#### 6.2.5 Ensaios mecânicos

Os ensaios de tração e de dureza Brinell (HB) foram realizados nos mesmos equipamentos e nas mesmas condições descritas na seção 6.1.6. Os resultados do ensaio de tração são mostrados abaixo:

- Limite de resistência- $\sigma_{\mu} \cong 84,8 \text{ kgf/mm}^2 \cong 121 \text{ ksi} \cong 120.585 \text{ psi}$
- Limite de escoamento- $\sigma_{\gamma}(0,2\%) \cong 74,3 \text{ kgf/mm}^2 \cong 106 \text{ ksi} \cong 105.654 \text{ psi}$ .
- Módulo de elasticidade- $E \cong 2,3 \times 10^3 \text{ kgf/mm}^2 \cong 3,3 \times 10^6 \text{ psi}$
- Deformação-  $e = \Delta L/L_0 \cong 2,0\text{mm}/32\text{mm} \cong 6,3\%$

No ensaio de dureza o valor médio encontrado, também de um número de 5 avaliações, foi de aproximadamente 247 HB. Os ensaios de tração e dureza foram realizados no lingote submetido ao tratamento térmico de recozimento a  $900^{\circ}\text{C}$  por 5 minutos.

## 7. DISCUSSÕES

Neste capítulo são comparados e discutidos os resultados obtidos nos dois processos aqui estudados, bem como as limitações e soluções encontradas para cada um deles.

No processo de fusão em forno a arco, os resultados apresentados na Tabela 6.1 e na Figura 6.1, mostram que ocorreu uma variação na distribuição de urânio ao longo do lingote. Como sugerido por DYRKACZ [35], certamente o eletrodo não se apresentava na exata composição da liga. Tudo indica que, durante a etapa de prensagem, houve má distribuição dos componentes ao longo do mesmo. Visando atenuar esta distribuição e confirmar o previsto pela General Atomic [5], que após refusões sucessivas obtém-se uma homogeneização satisfatória, o referido lingote foi então refundido. Os resultados, após esta refusão, podem ser vistos na Tabela 6.2. Ao comparar estes resultados, com os obtidos na primeira fusão e apresentados na Tabela 6.1, constata-se que ocorreu uma melhoria na distribuição de urânio ao longo do lingote após a refusão. Além disso, pode-se constatar na Tabela 6.1, uma significativa redução no teor de urânio devido, possivelmente, a “perdas” que ocorreram durante as etapas de soldagem, forjamento, corte das extremidades e usinagem do lingote. Verifica-se também que, para as mesmas amostras, os teores de urânio determinados por análise química e nêutrons retardados, apresentaram uma variação de aproximadamente 10% em seus resultados.

Em relação ao processo de fusão em forno de indução e como pode ser observado na Tabela 6.4, os lingotes apresentaram uma distribuição de urânio homogênea, confirmando DYRKACZ na referência [35]. Esta homogeneidade ocorreu inclusive no lingote **FI-04**, que permaneceu apenas 0,25 minutos (Tabela 6.3) em efervescência após sua completa fusão. Tal fato é extremamente importante, pois reduzindo-se o tempo de contato da carga, no estado líquido, com o cadinho de grafita sem revestimento, conseqüentemente, será reduzido o nível de contaminação pelo carbono. Verifica-se também que, neste processo, praticamente não ocorreram “perdas”, isto é, redução no teor de urânio durante o processo de fusão.

Conforme WILKINSON [16], quando na liga pelo menos um dos componentes apresenta alto ponto de fusão, a seleção de um cadinho adequado é de fundamental importância. Para a fusão da liga U-Zr em forno de indução, a escolha de um cadinho a base de material refratário foi eliminada, tendo em vista que a temperatura de fusão do zircônio (1852°C) [40,41,42,43] está acima da temperatura de trabalho dos refratários disponíveis no laboratório. A grafita, por apresentar melhores propriedades, particularmente, devido à sua boa resistência a choques térmicos e condutividade térmica, foi o material selecionado para ser usado como cadinho.

Entretanto, a alta reatividade do urânio e do zircônio com o carbono, formando carbonetos em altas temperaturas, sugeriu que se realizasse uma série de fusões preliminares, usando-se um revestimento interno nas paredes do cadinho de grafita. Foram testados vários revestimentos com material cerâmico[18], entre eles, os óxidos de zircônio( $ZrO_2$ ), tório( $ThO$ ) e alumínio( $Al_2O_3$ ) [19,20,21,22,23]. Não obstante e como previsto por CONDON e HOLCOMBE [19], o resultado não foi satisfatório pois, todos os revestimentos empregados, reagiram com o grafita em altas temperaturas, liberando monóxido de carbono e, conseqüentemente, contaminando a carga e danificando o cadinho. Portanto, a solução foi utilizar o cadinho de grafita sem revestimento interno, sabendo-se, previamente, que tal condição resultaria na contaminação da liga pelo carbono.

Como o titânio tem metalurgia e propriedades muito semelhantes ao zircônio [28,29,32] e ainda, em virtude da pouca disponibilidade deste último, uma série de experimentos foram realizados utilizando-se o titânio. Estas fusões permitiram ajustar as variáveis essenciais do processo, tais como, potência, velocidade de aquecimento e tempo de efervescência. Nesta fase de fusões com titânio, também foram realizadas um grande número de análises de carbono e, como previsto na literatura [26,33], constatou-se que os níveis de contaminação pelo carbono foram superiores a 0,17% em peso.

Concluído esta fase, foram então realizadas as fusões da liga U-Zr em forno de indução. De acordo com a literatura [17,25,26,27,33,46] e comparando os resultados analíticos, mostrado nas Tabelas 6.5 e 6.6, constata-se que foi muito significativo o nível de contaminação por carbono nos lingotes **FI-01**, **FI-02** e **FI-03**. No lingote **FI-04** ocorreu uma contaminação menor, possivelmente, como citado em [18,22,24], em virtude do pouco tempo de contato da liga, no estado líquido, com o cadinho de grafita. Na tentativa de reduzir, parcialmente, a contaminação decorrente do contato do urânio fundido com o grafita, a carga de zircônio e urânio foi previamente prensada, buscando criar uma condição na qual o zircônio sólido pudesse atuar com barreira a esse contato. Entretanto, conforme pode ser visto na Tabela 6.7, os lingotes **FI-05** e **FI-06** apresentaram altos níveis de contaminação pelo carbono.

As análises difratométricas, tanto no lingote obtido em forno a arco como no de indução, revelaram a presença predominante da fase  $\alpha$  (Zr). A fase  $\delta$  ( $UZr_2$ ) apareceu em menor quantidade em concordância com o previsto no diagrama de fases da liga U-Zr mostrado na Figura 3.10 [37]. Também foi observado a presença de traços de carboneto de zircônio (ZrC) no lingote obtido em forno de indução.

Como era esperado, houve conformidade entre os resultados das análises difratométricas e metalográficas, conforme pode ser constatado nas Figuras 6.2-a, 6.2-b, 6.3-a e 6.3-b, das amostras retiradas do lingote fundido em forno a arco e nas Figuras 6.6-a, 6.6-b, 6.7-a e 6.7-b, das amostras retiradas do lingote fundido no forno de indução. Nestas Figuras observa-se a presença predominante da fase  $\alpha$  (Zr) e em menor quantidade da fase  $\delta$  ( $\text{UZr}_2$ ). Na amostra obtida em forno de indução, as inclusões podem estar relacionadas à presença de carboneto de zircônio, visto que este foi detectado na análise feita por difratometria. Como observado no diagrama de transformação-tempo-temperatura da Figura 3.11 citado em [49], a taxa de resfriamento aplicada nestes lingotes, após o tratamento térmico de recozimento, não foi suficiente para uma completa mudança na morfologia da estrutura (acicular para equiaxial). Pode-se observar, que a transformação da estrutura bruta de fusão para recozida não foi totalmente desenvolvida.

Nas auto-radiografias, Figuras 6.4 e 6.8, pode-se constatar, qualitativamente, que as amostras obtidas em forno a arco e que têm menor teor de urânio, impressionaram o filme em menor intensidade quando comparado com as amostras obtidas em forno de indução. Constata-se também que, em ambas, o urânio está uniformemente distribuído, apresentando pequenos defeitos na amostra obtida em forno de indução.

Quanto aos resultados obtidos nos ensaios de tração de corpos de prova dos dois processos, verifica-se que o *limite de resistência* do lingote **FA-01** obtido em forno a arco,  $\sigma_{\mu} \cong 75,6 \text{ kgf/mm}^2 \cong 108 \text{ ksi} \cong 107.549 \text{ psi}$ , está 7% acima do encontrado pela General Atomic [39], conforme visto na Figura 3.6. Entretanto, o *limite de resistência* encontrado para o lingote **FI-01** do forno de indução,  $\sigma_{\mu} \cong 84,8 \text{ kgf/mm}^2 \cong 121 \text{ ksi} \cong 120.585 \text{ psi}$ , está aproximadamente 20% acima do encontrado pela General Atomic. O aumento mais acentuado do limite de resistência, no lingote **FI-01**, de acordo com LUSTMAN [47] é decorrente da fusão em cadinhos de grafita e está associado à presença de carbonetos, extremamente duros. Verifica-se também um alongamento de  $\cong 9,0\%$  no lingote obtido em forno a arco e de  $\cong 6,3\%$  no lingote obtido em forno de indução. Com relação aos resultados do ensaio de dureza, nota-se que a dureza de 247 HB, obtida no lingote fundido em forno de indução, comparada com a dureza de 218 HB obtida no lingote fundido em forno a arco, está de acordo com o incremento no limite de resistência. Conforme previsto por LUSTMAN [47], a formação de carbonetos de zircônio afetam de maneira significativa as propriedades mecânicas do zircônio e suas ligas, principalmente sua dureza.

Procurando reunir as vantagens de ambos processos de fusão, ou seja, ausência de contaminação e possibilidade de redução do carbono[30] na fusão a arco, com a adequada distribuição dos componentes (homogeneidade) obtida na fusão por indução, outros experimentos foram realizados unindo estes processos. Inicialmente, fundiu-se uma carga de zircônio puro no forno de indução, seguido de um basculamento imediato. Em seguida, o lingote de zircônio foi refundido no forno a arco. Havia a expectativa, segundo KUHN [30], de que o oxigênio presente na câmara do forno, nas altas temperaturas do arco elétrico, pudesse reagir com o carbono formando CO e portanto, reduzindo sua concentração. Os resultados apresentados na Tabela 6.8 que correspondem a fusão em forno de indução, seguido de dupla refusão em forno a arco, indicam que, realmente, ocorre uma significativa redução nos teores de carbono após a primeira refusão. Entretanto, como pode ser verificado na Tabela 6.9, quando foram refundidos em forno a arco os lingotes **FI-01, FI-02 e FI-03** da liga U-Zr, a esperada redução de carbono não se repetiu. Aparentemente, no caso do zircônio puro, como o lingotamento foi realizado imediatamente após sua fusão, parece que o tempo não foi suficiente para a formação da fase carboneto e o carbono permaneceu em solução como impureza. No caso da liga U-Zr, o tempo de efervescência de 1 minuto, dado para homogeneização da liga e após a completa fusão do zircônio, pode ter sido suficiente para o carbono, presente no cadinho de grafita, formar carbonetos. Assim sendo, tudo indica que a redução nos teores de carbono, após a refusão em forno a arco e ocorrida somente com o zircônio puro, foi devida ao carbono que se encontrava dissolvido e não aquele que formou a fase carboneto.

Diante do exposto, constata-se que a fusão da liga U-Zr em cadinho de grafita sem revestimento, na melhor das hipóteses, terá uma contaminação de carbono de, no mínimo, 0,14% em peso. Portanto, com esta contaminação e após sua hidretação, a proporção atômica dos elementos nesta liga será o seguinte:

Chamando de  $n_U$ ,  $n_{Zr}$ ,  $n_H$  e  $n_C$ , o número de átomos de urânio, zircônio, hidrogênio e carbono, respectivamente, para 100 g no elemento combustível, teremos;

$$n_U \cong 8,0 \text{ [g]} \times 6,02 \times 10^{23} \text{ [at./at.g]} \div 238,03 \text{ [g/at.g]} = 2,0 \times 10^{22} \text{ átomos}$$

$$n_{Zr} \cong 90,86 \text{ [g]} \times 6,02 \times 10^{23} \text{ [at./at.g]} \div 91,22 \text{ [g/at.g]} = 60,1 \times 10^{22} \text{ átomos}$$

$$n_H \cong 1,0 \text{ [g]} \times 6,02 \times 10^{23} \text{ [at./at.g]} \div 1,01 \text{ [g/at.g]} = 60,2 \times 10^{22} \text{ átomos}$$

$$n_C \cong 0,14 \text{ [g]} \times 6,02 \times 10^{23} \text{ [at./at.g]} \div 12,0 \text{ [g/at.g]} = 0,7 \times 10^{22} \text{ átomos}$$

ou seja,

$$\% \text{ átomos U} = 2,0 \times 10^{22} \div 123,0 \times 10^{22} = 1,6$$

$$\% \text{ átomos Zr} = 60,1 \times 10^{22} \div 123,0 \times 10^{22} = 48,9$$

$$\% \text{ átomos H} = 60,2 \times 10^{22} \div 123,0 \times 10^{22} = 48,9$$

$$\% \text{ átomos C} = 0,7 \times 10^{22} \div 123,0 \times 10^{22} = 0,6$$

Este cálculo mostra que foi obtida uma liga quaternária, na qual teremos, em relação à liga original (8U-ZrH<sub>n</sub>), a adição de 0,6% em átomos de carbono. Mesmo não tendo sido encontradas referências bibliográficas que abordem a influência do carbono nas propriedades gerais deste combustível, deve-se ressaltar que a presença do carbono nesta liga poderá provocar alterações em suas propriedades nucleares devido à similaridade existente entre o carbono e o hidrogênio no que diz respeito a moderação neutrônica. Também poderá ocorrer redução em sua resistência a corrosão, conforme citado por LUSTMAN, BENJAMIN [48], em relação ao ataque acelerado devido a corrosão preferencial da fase carboneto.



## 8. CONCLUSÕES

O principal objetivo deste trabalho foi realizar um estudo comparativo da fusão em forno a arco com eletrodo consumível e em forno de indução para se obter a liga U-Zr. Dos resultados obtidos neste trabalho pode-se concluir que:

1. processo de fusão, realizado em forno a arco, mostrou-se adequado para a obtenção da liga U-Zr. Entretanto, a distribuição do urânio ao longo do lingote, deve ser melhorada. Para isto será necessário, durante a etapa de prensagem do tarugo, adequar a distribuição do urânio no zircônio;
2. Na fusão em forno a arco, para se conseguir uma homogeneização adequada da liga, será necessário refundir o lingote;
3. A liga U-Zr, obtida em forno a arco, apresenta propriedades mecânicas semelhantes às observadas na literatura;
4. processo de fusão em forno de indução apresenta, em relação a fusão em forno a arco com eletrodo consumível, vantagens operacionais e de custo, visto que não é necessário preparar o eletrodo por prensagem, soldagem e forjamento;
5. Este processo tem como vantagem a homogeneização da liga em uma única fusão. Entretanto, apresenta como desvantagem a contaminação da liga pelo carbono;
6. A contaminação da liga na fusão por indução, pode ser minimizada utilizando-se a seguinte metodologia:
  - Iniciar o processo de fusão, ajustando um acoplamento no sistema de modo a se obter uma potência elevada;
  - Reduzir o tempo de eferescência da liga U-Zr, após a fusão da carga, para 0,25 minutos;
  - Inicialmente, colocar o zircônio dentro do cadinho e depois o urânio, de modo que este seja o último a fundir;

7. Mesmo com a metodologia descrita anteriormente, a contaminação pelo carbono na liga parece ser inevitável. Este carbono, mesmo presente em pequenas quantidades, poderá competir com o hidreto de zircônio ( $ZrH_n$ ) na função de moderador;
8. Os resultados mostram que a presença de carbono na liga U-Zr, também provoca alterações em suas propriedades mecânicas;
9. Como os dois processos de fusão da liga U-Zr apresentam vantagens e desvantagens, conciliar estes dois processos parece ser a melhor condição de obtenção desta liga. Entretanto, será de fundamental importância estabelecer, principalmente com relação as propriedades nucleares, a influência da contaminação pelo carbono no combustível  $8U-ZrH$  utilizado nos Reatores TRIGA de modo a se obter um parâmetro de referência;
10. A principal deficiência do processo de fusão em forno a arco está relacionada à homogeneização da liga U-Zr. Se esta questão for solucionada, certamente os problemas de fusão da liga U-Zr estarão resolvidos.

## 9.REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] Reator nuclear TRIGA/IPR-R1 do CDTN. Informe CDTN, Dez.1994. Número especial.
- [2] Instituto de Pesquisas Radioativas. Descrição do Reator TRIGA MARK I. Belo Horizonte: IPR, 1960.( IPR-Publicação 14 ).
- [3] Trinta anos de operação do reator TRIGA do CDTN; um breve histórico. Informe CDTN, v.1, n.1, nov.1990.
- [4] International Atomic Energy Agency. Directory of Nuclear Research Reactors. Vienna,1995.
- [5] General Atomic, Technical foundations of TRIGA. San Diego: 1958, p.77 ( GA-471 ).
- [6] BRAGA,DANIEL MARTINS; SILVA,EDUARDO GOMES; CARDOSO,PAULO EDSON; Estudo de fabricação da liga UZr para combustível de reatores tipo TRIGA, VI CGEN, tópico ciclo do combustível, 1996.
- [7] Empresas Nucleares Brasileiras, Relatório de análise de segurança - Reator IPR-R1 Belo Horizonte, NUCLEBRAS, Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear, 1982( NB/CDTN/02/1982).
- [8] WALLACE,W.P.; SIMNAD, M.T.; TUROULIN B.Symposium on the fabrication of fuel elements, Nuclear Metallurgy, Vol.5, p 49-55, 1958.
- [9] General Atomic. Triga Mark I Reactor mechanical maintenance an operating manual. San Diego; Ca.: 1960. ( GA 1544 ).
- [10] General Atomic. Transformation Kinetics of an Uranium-Zirconium-Hydrogen Alloy. San Diego, Ca.1960( GA-1478).
- [11] FREITAS,C.T.DE;CINTRA,S.H.L.;GENTILE,E.F.;CAPOCCHI,J.D.T.-Fusão e lingotagem de Urânio sob vácuo em forno elétrico de laboratório. Metalurgia,Vol.24,n 125, p 279, Abril, 1968.

- [12] *The Metallurgy of Nuclear Fuel, Properties and principles of the Technology of Uranium, Thorium and Plutonium.* V.S.Yemel'yanov and A.I.Yevstyukhin. Pergamon Press, First English edition, p 18-33, 1969.
- [13] COSTA,J.R. Curso de introdução ao estudo dos ciclos de combustíveis nucleares. São Paulo,S.P. INF IEA 21,Marco, 1972.
- [14] *The Metallurgy of Nuclear Fuel, Properties and principles of the Technology of Uranium, Thorium and Plutonium.* V.S.Yemel'yanov and A.I.Yevstyukhin. Pergamon Press, First English edition, p 89-90, 1969.
- [15] *The Metallurgy of Nuclear Fuel, Properties and principles of the Technology of Uranium, Thorium and Plutonium.* V.S.Yemel'yanov and A.I.Yevstyukhin. Pergamon Press, First English edition, p 8, 1969.
- [16] WILKINSON,W.D- *Uranium Metallurgy*, vol.I, Cap.2 e 3, Interscience Publishers, Ind.N.Y.,1962.
- [17] HARRINGTON,C.D. AND RUEHLE A. *Uranium Production Technology*, 1959.
- [18] BUNTZ,B.J..Uranium ingot production at atomic energy commission feed material production centers. *Nuclear Metallurgy*, p 17-21.
- [19] JESSEN, N.C.JR.. *Melting and casting of uranium and uranium alloys.* Oak Ridge Y-12 plant, Tenn., Jan.1982. Y/DV-213.
- [20] CONDON,J.B., HOLCOMBE,C.E.JR. *Crucible materials to contain molten uranium.* Oak Ridge Y-12 plant, Tenn.,sep 1977.Y-2084.
- [21] JESSEN,N.C.JR., HOLCOMBE,C.E.JR. Townsend,A.B..*Aplication of metal oxide refractories for melting and casting reactive metals.* Oak Ridge Y-12 Plant,Tenn., may 1979. Y/DA - 8225.
- [22] HOLCOMB,D.A. *New yttria plasters.* Oak Ridge Y-12 Plant, Tenn.Jan.1978.Y-2104.
- [23] 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.

- [24] JAYNES, GEORGE E., TAUB, JAMES M., DOLL, DENTON T.. Development of casting techniques for uranium and uranium alloys. *Nuclear Metallurgy*, p.1-15.
- [25] BLUMENTHAL, B.J. *Nucl. Mat.* 2, 3, 197 (1960).
- [26] WILKINSON, W.D.- *Uranium Metallurgy Volume II: Uranium corrosion and alloys*. 1th ed. New York: John Wiley & Sons, Inc., 1962-P.947-948.
- [27] *The Metallurgy of Nuclear Fuel, Properties and principles of the Technology of Uranium, Thorium and Plutonium*. V.S.Yemel'yanov and A.I.Yevstyukhin. Pergamon Press, First English edition, p 85, 1969.
- [28] SHELTON, S.M. et alii-Zirconium metal production. In: *International Conference on the peaceful uses of Atomic Energy, Geneva, 8-20 Aug., 1955 Proceedings*. N.Y. 1956. V.8, p.505-550.
- [29] LUSTMAN, BENJAMIN-Zirconium production methods In: *The Metallurgy of Zirconium*. N.Y., McGraw-Hill Book Company, Inc., 1955. p.50-115.
- [30] KUHN, W.E. *Arcs in inert atmospheres and vacuum*, N.Y., John Wiley & Sons, Inc., 1956. p.181-182.
- [31] BUSSINGER, S.M., YAMAZATO, T., *Metalurgia do zircônio e fabricação do zircaloy, monografia*  
CETN/UFGM, Belo Horizonte, 1979.
- [32] BOMBERGER, H.B. AND JOES, F.H. The melting of Titanium. *Journal of Metals*. Dec. 1984.
- [33] *Steel, Vacuum melting Titanium and Zirconium*, Vo.128, n 5, p 77, June 18, 1951.
- [34] H.A.SALLER, R.F.DICKERSON Y E.L.FOSTER, *Vacuum Metallurgy*, The electrochemical Society, p.49, 1955.
- [35] W.W.DYRKACZ, *Metal progress* 75(5), 138 (1959).
- [36] *Técnica del vacío en metalurgia. Fusión por arco en vacío*. J.A.Belk. Ediciones Urmo. Bilbao, España, p 106-128, 1967.

- [37] ASM-Handbook-V.3-Binary alloy phase diagrams-1992.
- [38] General Atomic. Metallurgy of Triga Fuel Elements. San Diego.1961,p.4-7.( GA-1949 ).
- [39] General Atomic, Technical foundations of TRIGA. San Diego: 1958, p.69-72 ( GA-471 ).
- [40] BRADY,G.S., CLAUSER, H.R.(Eds.). Zirconium. In: Materials Handbook. 13.ed. New York,NY: Mc Graw-Hill, 1991.p932-933.
- [41] HINO.J.(Comp.). Zirconium, In: AMERICAN SOCIETY FOR METALS. Metals handbook. 8 ed. Metals Park: ASM, 1961 v.1: Properties and selection of metals.
- [42] webster,r.t.(comp.).Zirconium. In: AMERICAN SOCIETY FOR METALS. Metals Handbook.9 ed.Metals Park: ASM, 1979.V.2.: Properties and selection:nonferrous alloys and pure metals.
- [43] J.H.SCHEMEL ASTM Manual on Zirconium and hafnium.STP.639 pg.4,Dez.77.
- [44] HAYDT H.M., Redução de óxido de zircônio por magnésio em solução em zinco.Tese Doutorado USP.São Paulo.1972.
- [45] The Metallurgy of Nuclear Fuel, Properties and principles of the Technology of Uranium, Thorium and Plutonium. V.S.Yemel'yanov and A.I.Yevstyukhin. Pergamon Press, First English edition, p.3-5, 1969.
- [46] LUSTMAN,BENJAMIN-Zirconium production methods.In: The Metallurgy of Zirconium. N.Y.,McGraw-Hill Book Company.Inc.,1955.p.449-450.
- [47] LUSTMAN BENJAMIN-Zirconium production methods.In: The Metallurgy of Zirconium. N.Y.,McGraw-Hill Book Company.Inc.,1955.p.518-537.
- [48] LUSTMAN,BENJAMIN-Zirconium production methods.In: The Metallurgy of Zirconium. N.Y.,McGraw-Hill Book Company.Inc.,1955.p 616-618.
- [49] D.L.DOUGLASS, L.L.MARAH, JR., G.K.MANNING; "Transformation Kinetics of zirconium-uranium alloys",Trans.ASM,Vol.50,1958, p 305-322.

[50] CARDOSO, PAULO EDSON; Desenvolvimento de fusão de ligas de zircônio em forno a arco sob vácuo, XIV CBRAVIC-Congresso Brasileiro de aplicação de vácuo na Indústria e Ciência, Set/93.

[51] J.H.SCHEMEL ASTM Manual on Zirconium and hafnium. STP.639, pg.80, Dez.77.

**ESTUDO DE FABRICAÇÃO DA LIGA U-Zr PARA COMBUSTÍVEL DE  
REATORES TRIGA**

*por*

*Eduardo Gomes da Silva*

*Dissertação apresentada ao Curso de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares(CCTN) da Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, como requisito parcial para obtenção do Título de Mestre em Ciências e Técnicas Nucleares (M.Sc.).*

*Área de Concentração: Energia Nuclear*

*Orientador: M.Sc. PAULO EDSON CARDOSO*

*Belo Horizonte*

*Escola de Engenharia da UFMG*

*Julho/98*