

BR 8920369

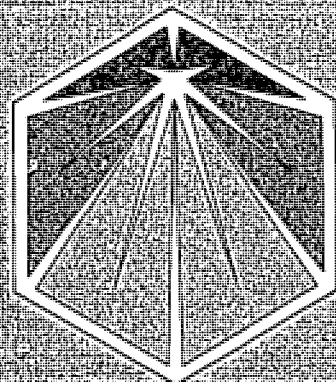
Ministério da Aeronáutica
Departamento de Pesquisa e Desenvolvimento
Centro Técnico Aeroespacial

LIGAS METÁLICAS DE URÂNIO PARA EMPREGO EM
REATORES RÁPIDOS REGENERADORES

por

C. Moura Neto
Odmar Simões Pires

CTA - RP
RELATÓRIO DE PESQUISA IEAv-023/88 (Ago 88)



INSTITUTO DE ESTUDOS AVANÇADOS

LIGAS METÁLICAS DE URÂNIO PARA EMPREGO EM REATORES RÁPIDOS REGENERADORES

C. Moura Neto e Odmir Simões Pires *

Instituto de Estudos Avançados/CTA
Instituto Tecnológico de Aeronáutica/CTA *

Devido às fracas propriedades mecânicas do urânio metálico, é necessário ligá-lo com elementos de liga, a fim de aumentar sua resistência mecânica, sua resistência a corrosão e sua estabilidade dimensional, quando submetido a ciclagem térmica. Este trabalho propõe-se a estudar dois tipos de liga: U-Zr e U-Ti, dando-se ênfase à extensiva solubilidade sólida na fase gama do urânio, o que as tornam favoráveis ao seu emprego como combustíveis metálicos em reatores rápidos regeneradores.

As ligas estudadas foram preparadas em forno por bombardeamento de elétrons e submetidas a testes de difração de R-X, fluorescência de R-X, microdureza, metalografia óptica e análises químicas. Os valores encontrados estão concordantes com os dados obtidos da literatura.

Das ligas estudadas, verificou-se que a liga U-Zr apresentou melhores características para emprego como combustível em reatores regeneradores.

1. INTRODUÇÃO

O presente trabalho tem a finalidade de se estudar ligas metálicas de urânio, que possam ser potencialmente empregadas como combustíveis em reatores rápidos regeneradores. Está diretamente associado ao projeto de reatores rápidos em andamento no Instituto de Estudos Avançados do CTA, cujo objetivo principal é o estudo e a pesquisa para o projeto de um reator rápido experimental [1].

2. OS COMBUSTÍVEIS METÁLICOS

Os combustíveis metálicos são, reconhecidamente, apresentados como aqueles com melhores propriedades físicas e melhor desempenho de regeneração, e foram empregados no início do desenvolvimento de reatores térmicos e rápidos. Recentemente, têm atraído a atenção dos pesquisadores pelo fato de possibilitarem a construção de reatores, caracterizados por menores variações de reatividade durante seu período de operação. Isto proporciona vantagens quanto ao controle, e aumenta a operação contínua do reator, sem que haja necessidade de

recarregamento (aproximadamente um ano ou mais) [2].

A sua tecnologia de fabricação é mais fácil e utiliza processos metalúrgicos clássicos [2], tornando-se mais atrativo pelo fato de que o núcleo é mais compacto, necessitando de uma menor quantidade de material físsil, e aliado a uma maior razão de regeneração e a um menor tempo de dobramento. Como o núcleo é mais compacto, é possível obter-se um maior fluxo de nêutrons, sendo adequado a testes de materiais para emprego como elementos combustíveis.

Este tipo de combustível apresenta uma vantagem significativa em relação ao combustível tipo óxido e alguma leve vantagem sobre o combustível tipo carboneto, do ponto de vista do tempo de dobramento. Seu espectro de nêutrons é mais duro, pois não existe moderação por hidrogênio, oxigênio, carbono ou nitrogênio (altas razões de dobramento). Como sua concentração físsil é elevada, o tempo de dobramento é também favorecido. Sua condutividade térmica elevada proporciona uma alta potência linear, compensando seu ponto de fusão relativamente baixo [3].

3. O URÂNIO METÁLICO E SUAS LIGAS

O urânio é o 92º elemento na Tabela Periódica e tem importância tecnológica em virtude de aliar propriedades nucleares, alta massa específica (19,05 g/cm³) e elevado número atômico a propriedades físicas, químicas e mecânicas interessantes.

No estado sólido, o urânio apresenta três formas cristalinas: a fase alfa (ortorrômbica centrada na base), até 668° C; a fase beta (tetragonal) de 668° C até 770° C; e a fase gama (cúbica de corpo centrado de 770° C, até o ponto de fusão (1132° C). Devido a estas três modificações alotrópicas, o urânio apresenta duas transformações de fases no estado sólido, e um elevado comportamento anisotrópico [4].

Assim sendo, há necessidade de se conhecer suas propriedades, principalmente aquelas que tenham influência no seu desempenho como combustível em reator, esta dimensional frente à irradiação e sua resistência à corrosão. Isto pode

ser conseguido adicionando-se elementos de liga ao urânio, em especial aqueles que formem soluções sólidas extensivas na fase gama. Dentre estes elementos, destacam-se o nióbio, molibdênio, zircônio e titânio, embora ainda possam ser relacionados tungstênio e tântalo, que apresentam semelhanças com o nióbio e molibdênio, mas cuja solubilidade é mais restrita [5].

Mais recentemente, os pesquisadores retornaram aos estudos de ligas metálicas de urânio, para emprego em reatores rápidos. Este trabalho pretende-se inserir dentro deste contexto, dando atenção inicial às ligas U-Zr e U-Ti.

4. OS DIAGRAMAS URÂNIO-ZIRCÔNIO E URÂNIO-TITÂNIO

O titânio e o zircônio formam soluções sólidas contínuas com urânio gama a temperaturas elevadas. Entretanto, para temperaturas menores, forma-se um composto U_2Ti no sistema U-Ti, enquanto que, no sistema U-Zr, a solução sólida (cúbica de corpo centrado) separa-se em duas fases de mesma estrutura cristalina, mas com composições diferentes, efeito semelhante ao que ocorre em ligas Al-Zn.

Os diagramas constitucionais dos sistemas U-Zr e U-Ti estão mostrados nas Figuras 1 e 2 [6].

5. FABRICAÇÃO DE LIGAS METÁLICAS U-Zr e U-Ti

As ligas foram fundidas em forno a vácuo com bombardeamento de elétrons da Divisão de Materiais do IPD/CTA. Para o titânio foram fundidos dois botões, ambos com 2% em titânio, e pesando 53,3 g e 51,6 g. Para o zircônio, foram fundidos também dois botões, com composições de 2,5% (60,2 g) e 5,0% (58,7 g) em zircônio. Em ambos os casos, realizaram-se uma fusão e duas refusões, para homogeneização das ligas.

O vácuo do equipamento foi mantido em cerca de $3,0 \times 10^{-5}$ torr, tensão de 26kV e corrente de 0,25 A.

O material de partida foi urânio refinado em forno a vácuo com aquecimento resistivo.

6. RESULTADOS OBTIDOS

As ligas foram submetidas à análise química, difração de RX, fluorescência de RX, metalografia e teste de dureza. Todos estes ensaios foram realizados na Divisão de Materiais do IPD/CTA.

6.1. Análises químicas

Os resultados das análises químicas estão mostrados na Tabela I. Pelos dados encontrados, verificou-se que os valores de carbono enquadram-se perfeitamente dentro

das especificações para emprego como elemento combustível (normalmente em torno de 1000 a 2000 ppm). Por outro lado, a técnica convencional de fusão de urânio emprega cadinho e/ou lingoteira de grafita. Os valores de alumínio, silício, ferro e níquel ficaram abaixo dos normais, também em virtude do tipo de forno empregado.

6.2. Difração de RX e fluorescência de RX

Para a liga U-2,0%Ti, a fluorescência de RX apresentou titânio (Ti K α - 77,5° e Ti K β - 86,5°) além de cobre e ferro como impurezas. Na difração, além da presença de urânio metálico, apareceu também o composto $(U_2Ti)_3H$, em 2,42 Å e 18,4 Å.

Para as ligas U-Zr, a análise por fluorescência mostrou a presença de urânio metálico e impurezas (cobre, ferro e titânio). O zircônio ficou bem evidenciado pelas raias Zr K α (22,6°) e Zr K α_2 (46,3°), esta menos acentuada.

Na difração, o urânio metálico ficou bem evidenciado, além de aparecerem os compostos $(UZr_2)_3H$, nas raias 2,49 Å e 1,54 Å, e $(U_{0,6}Zr_{2,4})_3H$ nas raias 2,51 Å, 1,78 Å e 1,55 Å.

A fim de se completar os estudos de difração e fluorescência, foi feita a análise de uma amostra de urânio metálico puro, ficando bem evidenciadas as raias de urânio, servindo como padrão para as amostras estudadas.

6.3. Ensaios de dureza

A Tabela II mostra os resultados dos ensaios de dureza realizados. As amostras foram ensaiadas no estado bruto de fusão.

Tabela II: Ensaios de dureza das ligas obtidas.

AMOSTRA	DUREZA (Vickers)	COMPOSIÇÃO REAL (%)
U-2,0%Ti	454,0	1,44
U-2,0%Ti	447,0	1,84
U-2,5%Zr	233,0	3,10
U-5,0%Zr	336,0	5,20

Os elementos de liga agem como endurecedores do urânio. O fenômeno pode ser explicado como uma reação de ordenação ou através de uma dispersão de uma segunda fase. Para o caso do titânio aparece o composto U_2Ti e, para o zircônio, aparece o composto UZr_2 , (este formado por um processo rápido de nucleação e crescimento, provavelmente envolvendo uma quantidade limitada de difusão e rearranjo de rede).

6.4. Metalografia

Os procedimentos de preparação das amostras foram aqueles convencionalmente empregados.

Para as ligas U-Zr empregou-se uma mistura de ácido fluorídrico (40%), ácido nítrico e água destilada (30 segundos). Para as ligas U-Ti, empregou-se uma mistura de ácido fluorídrico (40%), ácido nítrico e glicerol (10 segundos).

As ligas U-Zr apresentaram estrutura alfa, com características martensíticas, causadas pela formação de veios de contorno de grão de fase alfa. Entre as ligas U-2,5%Zr e U-5,0%Zr, houve um aumento na quantidade de martensita, quando se aumentou o teor em zircônio.

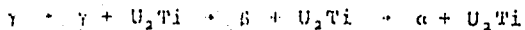
No dois casos, observou-se uma terceira fase, que poderia ser uma fase alfa (transformada a partir da fase beta) mais delta supersaturada (transformada a partir da fase γ_1). Para a liga U-5,0%Zr, a estrutura martensítica resultante é alfa, produto da fase γ_1 . Para a liga U-2,5%Zr, a martensita alfa é acicular apresentando fase alfa supersaturada, mais fina que para a liga U-5,0%Zr.

Pode-se admitir, para as ligas U-Zr, que houve uma transformação direta $\gamma + \alpha'$, muito embora devesse ter aparecido placas de Widmanstätten, o que não ocorreu. Esta inibição poderia ter sido causada por algum processo como cisalhamento ou difusão.

Para as ligas U-2,0%Ti verificou-se que a liga apresentou uma estrutura em forma de agulhas brancas (urânio alfa) com fina dispersão de U_2Ti . A estrutura martensítica é bastante semelhante à martensita que aparece nos aços. Observou-se uma outra estrutura, onde os grãos são bastante identificáveis, segregação nos contornos de grão e evidências de agulhas dentro das estruturas. Possivelmente nos contornos de grão tenha-se uma fase dispersa U_2Ti em uma matriz de equilíbrio (alfa) não distorcida.

A presença de U_2Ti , além de endurecer o material (processo típico de endurecimento por precipitação, formando zonas de Guinier-Preston, ou seja, um ordenamento dos átomos de titânio dentro da fase alfa), causa uma fragilização na liga, com diminuição na sua ductilidade.

Para as ligas U-2%Ti, pode-se sugerir a seguinte sequência de transformação:



7. CONCLUSÕES

Dos dois sistemas estudados, e pelos resultados apresentados, parece, em uma primeira aproximação, que as ligas U-Zr oferecem melhores características do ponto de vista de emprego em reator. Logicamente, que outros testes deverão ser realizados, em especial testes de desempenho e

comportamento sob irradiação.

8. AGRADECIMENTOS

Este trabalho foi patrocinado pelo Instituto de Estudos Avançados e teve o apoio da Divisão de Materiais do IPD/CTA.

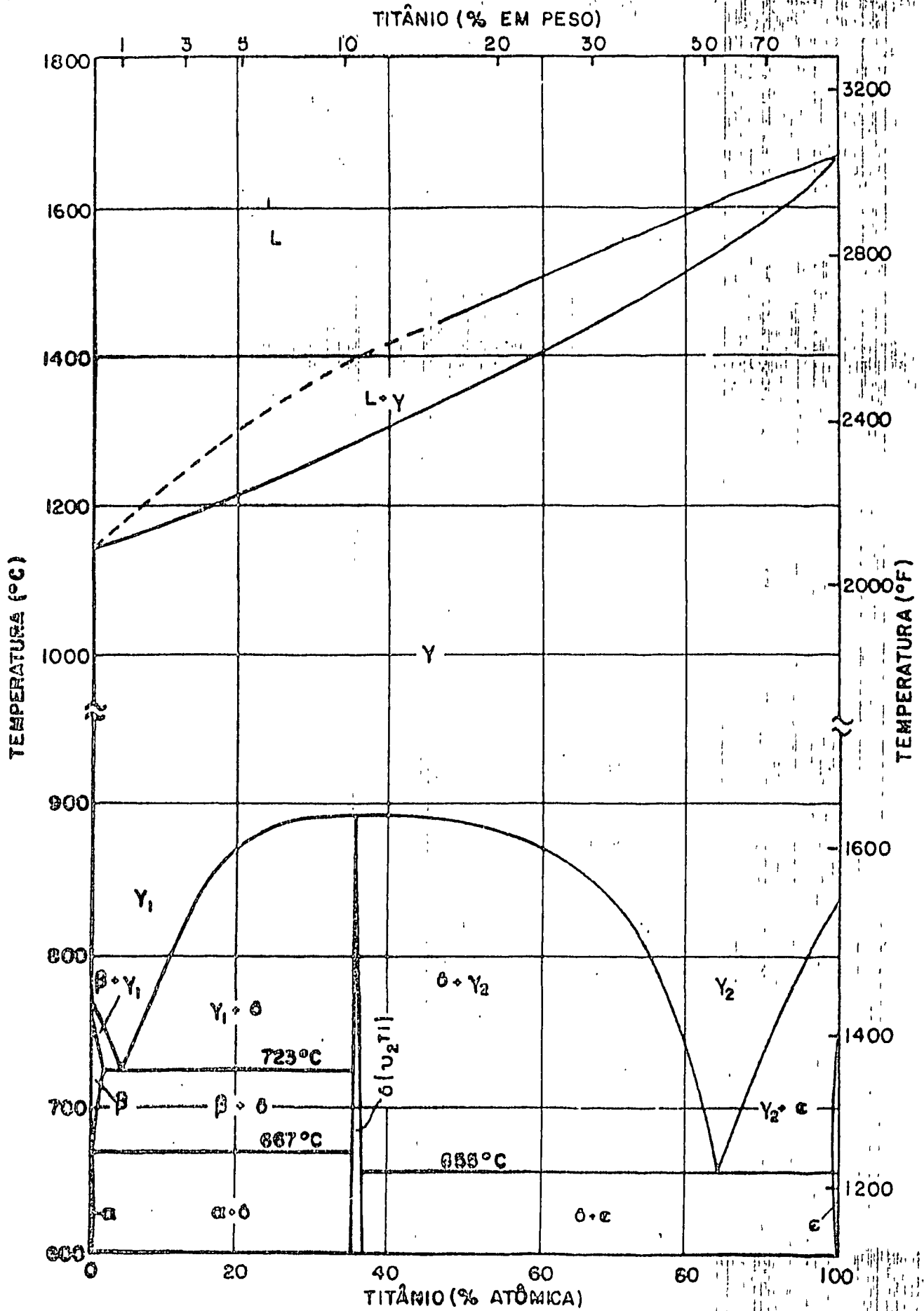
9. BIBLIOGRAFIA

- 1 - Ishiguro, Y. - Relatórios do Projeto Amazonas, Publicações IEAV, 1984, 1985, 1986, 1987.
- 2 - Banker, J.G. - Melting and Casting of High Quality Uranium and Uranium Alloy Ingots. Y-DA-6663, Oak Ridge Y-12 Plant, 1976.
- 3 - Report on Fast Reactor Technology Meeting (Summary), Detroit, 1965.
- 4 - Wilkinson, W.D. - Uranium Metallurgy, Vol I e II, Interscience Publishers, New York, 1962.
- 5 - Harding, A.G., Waldron, M.B. & Knight, C. - Transformation in Uranium Alloys with High Solute Solubility in the BCC Gamma Phase, Parts 1 & 2, AERE M/R 2673 A, Harwell Berkshire, 1958.
- 6 - Burke, J.J., Colling, D.A., Gorum, A. E. & Greenspan, J. (Editors), Proceedings of the Third Army Materials Technology Conference, Vail, Colorado, 1974.

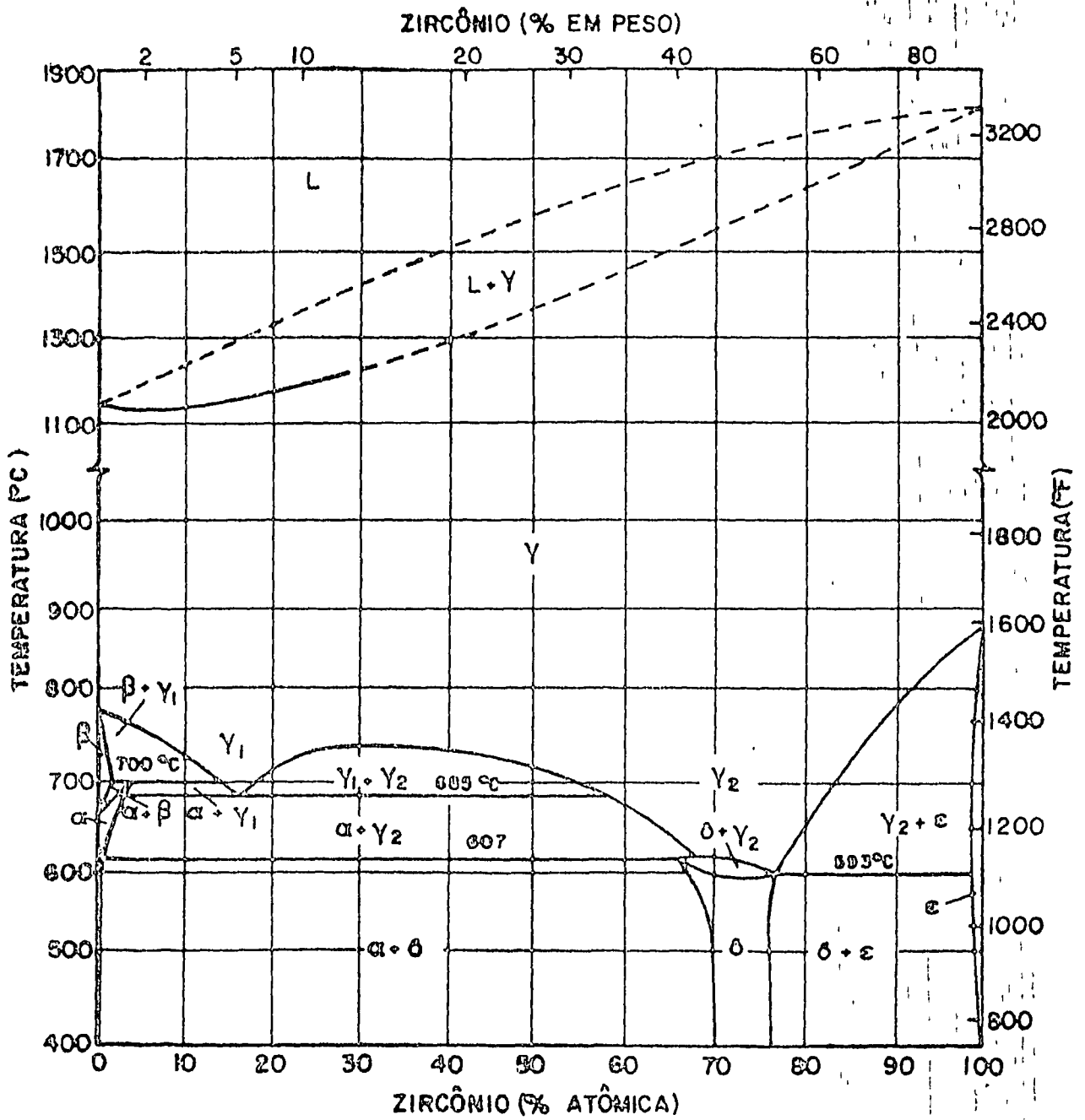
Tabela 1: Resultados das análises químicas dos botões das ligas estudadas (realizados na Divisão de Materiais/IPD/CTA) (valores em ppm)

	U-2,0%Ti (A)	U-2,0%Ti (B)	U-2,5%Zr	U-5,0%Zr
Mo	200	220	150	250
Fe	350	350	40	70
Mg	10	20	10	10
Mn	80	30	50	50
Si	500	400	> 260	50
H	60	60	20	20
Cr	30	30	> 10	> 10
Nb	900	900	600	600
Mn	< 10	< 10	< 10	< 10
Ni	200	200	100	150
Ti	1,44%	1,84%	n/e	n/e
Zr	n/e	n/e	3,1%	5,2%
C	200	600	200	300
S	40	30	20	30

n/e: não medido



(Fig. 1) - Diagrama do equilíbrio U-Ti



(Fig 2) - Diagrama de equilíbrio U-Zr