



CS06RA676

**PRILOG BR. 5**

**DOBIJANJE LEGURE W - A1.**

S A D R Ž A J

=====

	Strana
UVOD .....	1
1. ANALIZA SISTEMA U-Al .....	2
2. TOPLJENJE I LIVENJE .....	3
2.1. Uredjaji za topljenje i livenje .....	3
2.2. Topljenje i livenje legure U-Al .....	5
3. REZULTATI .....	6
4. ZAKLJUČAK .....	9

INSTITUT ZA NUKLEARNE NAUKE  
"BORIS KIDRIČ"

## DOBIJANJE LEGURE U-Al

Đ. Drobnjak, Đ. Lazarević i A. Mihajlović

Sistem U-Al sa niskim sadržajem aluminijuma jedan je od često korišćenih za izradu gorivnih elemenata, jer je dovoljno stabilan pri umerenim gustinama fluksa. Pored toga, u uslovima karakterističnim za rad nuklearnog reaktora (temperatura, gradijent temperature, mehanička naprežanja, koroziono dejstvo vode) legure ovog sistema pokazuju daleko bolja svojstva od nelegiranog urana.

Referat sadrži analizu dijagrama stanja U-Al legure sa niskim sadržajem aluminijuma, primenjeni postupak legiranja i livenja sa opisom pojedinih uređjaja i operacija. Takođe su opisana svojstva dobijene legure i dat je zaključak o eksperimentu i tehnici rada.

U V O D

Osnovni efekat koji se želi postići dodavanjem uranu malog procenta aluminijuma je usitnjavanje zrna. Analiza dijagrama stanja sistema U-Al pokazuje da ova legura ima dvofaznu strukturu. U osnovnoj masi urana (jedna faza) izlučeno je intermetalno jedinjenje  $UAl_2$  (druga faza). Karakteristična raspodela  $UAl_2$  faze po granicama zrna sprečava njihov rast.

Izborom pogodne brzine hlađenja pri livenju može se postići sitnozrna struktura. Međutim, kombinacija toplotne obrade i oblikovanja deformacijom livene strukture je najbolji način da se iskoriste pomenuti efekti.

Uzorci ove legure znatno se bolje ponašaju pri termičkom cikliranju od nelegiranog, ma na koji način oblikovanog i termički obrađenog urana. Sitnozrna struktura omogućuje u dovoljnoj meri kompenzaciju skupljanja i izduženja zrna po određenim kristalografskim pravcima, čime se eliminišu dimenzione promene prouzrokovane anizotropijom rešetke urana. Kod proizvoda sa ovom strukturom neće se takođe javiti hrapavost i boranje po površini. Pored toga, legure urana sa malim procentom aluminijuma imaju bolje mehaničke osobine i veću otpornost na koroziju.

#### 1. Analiza sistema U-Al

Dijagram stanja prikazan na slici 1 potiče od Gordon-a i Kaufman-a (1).

Sistem U-Al je tipičan predstavnik binarnih legura urana u kojima se javljaju intermetalne komponente. Veliki hemijski afinitet urana i aluminijuma, nepovoljna kristalna struktura urana i znatna razlika u veličini atoma dozvoljavaju samo ograničenu čvrstu rastvorljivost aluminijuma u uranu. Pri tome, aluminijum je apsolutno nerastvoran u alfa uranu koji ima složenu ortorombičnu strukturu i nemetalne veze. Aluminijum se u beta uranu veoma ograničeno čvrsto rastvara (maksimum 0,2 tež.%). Uzrok je takođe, nepovoljna vrlo složena tetragonalna struktura beta i visok stepen nemetalne veze. Najveću rastvorljivost aluminijum ima u gama uranu (max 0,59 tež.%). Veliki hemijski

afinitet, znatne razlike atomskih prečnika i valentnosti (gama uran ima valentnost oko 6) sprečavaju obrazovanje čvrstih rastvora u većoj meri, i ako su kristalne rešetke povoljne.

Uran i aluminijum obrazuju tri intermetalna jedinjenja:  $UAl_2$ ,  $UAl_3$ ,  $UAl_4$ .  $UAl_2$  se obrazuje iz rastopa na  $1590^{\circ}C$  pri približno 18 tež. % Al.

Na delu dijagrama sa malim procentom aluminijuma javlja se eutektička reakcija:

$R = \text{gama } \check{c}.r. + UAl_2 \text{ na } 1105^{\circ}C \text{ pri } 0,59 \text{ tež. \% Al}$   
i eutektiodno respadanje:

$\text{Gama } \check{c}.r. = \text{beta } \check{c}.r. + UAl_2 \text{ na } 750^{\circ}C \text{ pri } 0,2 \text{ tež. \% Al.}$

Krive rastvorljivosti aluminijuma u gama uranu je najvažniji deo dijagrama za izbor termičke obrade ovih legura.

## 2. Topljenje i livenje

### 2.1. Uredjaji za topljenje i livenje

Osnovni problemi koje pri topljenju uranovih legura treba rešiti mogu se podeliti u tri grupe: uredjaj za topljenje i livenje, vatrostalni materijali za lonce i kalupe i zaštita urana pri topljenju.

Topljenje legure U-Al izvedeno je u otpornoj vakuum peći (slika 2).

Lonac za topljenje nalazi se u posebnom pokretnom sudu - zagrevni sistem (slika 3).

U sastavu uređjaja za vakuum topljenje nalaze se dve evakuacione pumpe: mehanička i difuziona. Mehaničkom se postiže pritisak oko  $5 \cdot 10^{-3}$  mm Hg, i na taj način stvaraju uslovi za rad difuzione pumpe. Najniži pritisak koji se može postići je  $10^{-6}$  mm Hg.

Uređjaj raspolaže termoelementom (Pt 10% Rh-PT 13% Rh) za merenje temperature do  $1600^{\circ}\text{C}$ . Termoelement je pokretan i nalazi se u vatrostalnoj košuljici tako da se može uneti u lonac sa rastopom. Nedostatak je ograničen opseg i sporra registracija temperature. Pošto je pri merenju temperature poklopac na sudu sa loncem otvoren, dolazi do znatnog zagrevanja zvona i gubitka toplote.

Pri izvodjenju naših eksperimenata stalnu kontrolu temperature vršili smo optičkim pirometrom. Medjutim, tačnost merenja bila je mala. Metalni uran pokazuje za  $50-60^{\circ}\text{C}$  nižu temperaturu od stvarne pri merenju optičkim pirometrom. Veliku smetnju čine samo zvono, mreža na zvonu i eventualne pojave prašine i čadji. Zato nam je optički pirometar služio za brzo praćenje temperature, dok je termoelement omogućio utvrđivanje tačnih temperatura.

Eksperimenti topljenja legure U-Al izvedeni su u loncu od  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Nedostatak je bio nepovoljan oblik lonca obzirom na koristan prostor u zagreivnom sistemu. Problem je rešen omotačem od  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , koji je izradjen pečenjem  $\text{Al}_2\text{O}_3$  sa 3% visokovatostalne gline. Medjutim, verovatno nečistoće u glinici, koje su sigurno uz vatrostalnu glinu snižavale tačku omekšavanja ovog pečenog proizvoda, ograničile su radnu temperaturu na  $1500^{\circ}\text{C}$ .

Pokušaj sa grafitnim loncem nije uspeo. Obzirom da se radilo sa malim količinama urana (60-100 gr), bilo je neop-

hodno smanjiti naugljenisanje. Ovo se postiže nanošenjem sloja  $\text{Al}_2\text{O}_3$  na unutrašnje zidove lonca od grafita. Međutim, dugo vreme potrebno za postizanje željenih temperatura i nesigurnost kontrole temperature doveli su do reagovanja  $\text{Al}_2\text{O}_3$  i grafita, delimične sublimacije  $\text{Al}_2\text{O}_3$  i razaranja prevlake.

Livenje je vršeno u čeličnom kalupu. Pošto se uran legira sa željezom, kalup je prevlačen zaštitnim premazom  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Zaštita urana od dejstva kiseonika iz atmosfere ovde je obezbedjena topljenjem u vakuumu. Radjeno je pri pritiscima od oko  $10^{-3}$  mmHg.

## 2.2. Topljenje i livenje legure U-Al

Izvodjenje svakog eksperimenta topljenja i livenja zahtevalo je dug pripremni period. U jednom ciklusu rada imali smo sledeće operacije: evakuacija, zagrevanje-degazacija, topljenje-legiranje i livenje. Naročito je operacija zagrevanja i degazacije bila dugotrajna i osetljiva.

Osnovni zahtevi koje treba zadovoljiti pri legiranju su dobijanje zdravih homogenih odlivaka željenog sastava.

Postupak legiranja urana malim procentom aluminijuma izabran je na osnovu dijagrama stanja i radova francuskih i švedskih istraživača (G. Kabane, M. Englander, J. Lehmann)(2).

Karakteristike naše otporne vakuum peći nisu dozvolile primenu grafitnog lonca a time ni izvodjenje svih zamišljenih eksperimenata. Primena improvizovanog lonca od  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ograničila je radnu temperaturu i onemogućila rad preko predlegure nadeutektnog sastava. Nisu postojali ni uslovi za elimi-

naciju isparavanja aluminijuma uklapanjem istog u uzorak urana. Tako su jedino izvedeni eksperimenti legiranja urana malim procentom aluminijuma, direktnim dodavanjem aluminijuma u stopljeni uran na pogodnoj temperaturi.

Izvedeno je legiranje urana dodavanjem različitih procenata aluminijuma (1 0,5 0,24 0,15% Al). U momentu dodavanja temperatura stopljenog urana kretala se od 1180-1200°C. Odmah je obrazovano intermetalno jedinjenje  $UAl_2$ , koje je isplivalo na površinu rastopa. Zatim je vršeno pregrevanje rastopa od 1450-1500°C u cilju rastvaranja  $UAl_2$  faze.

Temperatura legura pri izlivanju kretala se od 1250 do 1280°C. Livenje je izvodjeno sa vrha. Velika debljina zidova kalupa dovodila je do brzog hladjenja rastopa. Konstrukciono rešenje peći stvaralo je smetnje pri livenju i dovodilo do prekida mlaza metala. Ostatak metala u loncu brzo se hladio, a odlivak skoro trenutno očvršćavao. Dobri odlivci su mogli biti dobijeni samo neprekidnim i brzim izlivanjem rastopa u kalupu.

### 3. Rezultati

Prvo ćemo dati rezultate hemijske analize (tablica 1). Upotrebljen je prirodni uran koji je sadržao neke metalne nečistoće na drugoj decimali ( $2,3 \cdot 10^{-2}\%$  Al,  $7,4 \cdot 10^{-3}\%$  Zn;  $4,5 \cdot 10^{-3}\%$  Fe;  $1,3 \cdot 10^{-3}\%$  Cu;  $7,6 \cdot 10^{-4}\%$  Mn;  $6,5 \cdot 10^{-4}\%$  Ni;  $9,5 \cdot 10^{-4}\%$  Ca). Upotrebljeni aluminijum bio je 99,99%.



TABLICA I

Očekivana legura	Mesto preseka na odlivku	Dobijena legura
1% Al	gornji presek	-
1% Al	donji presek	0,98% Al
0,5% Al	gornji presek	0,55% Al
0,5% Al	donji presek	0,44% Al
0,24% Al	gornji presek	0,24% Al
0,24% Al	donji presek	0,28% Al
0,15% Al	gornji presek	-
0,15% Al	donji presek	-

Legure željenog sastava nisu u potpunosti dobijene zbog isparavanja aluminijuma pri topljenju i prisustva oksida urana u polaznoj šarži. Naime, odvaga urana, koji je topljen, nije bilo tačno. Makako pažljivo da je izvodjeno odstranjenje oksida šmirglanjem, ipak je ovaj zaostajao u manjoj ili većoj meri (neravnine i lunckeri na površini urana) i činio "lažnu" težinu. Ovo je uzrok što su dobijene i legure koje sadrže veći procenat aluminijuma od unetog. Ista smetnja onemogućila je tačnu procenu gubitaka aluminijuma pri legiranju na ovaj način, mada se može sa sigurnošću reći da oni nisu bili znatni.

Hemijske analize raznih preseka odlivaka približno su iste, pa to vodi zaključku da je postignuta ravnomernost u hemijskom sastavu i indicira da je legura dovoljno homogena.

Rezultati mikroskopskog ispitivanja dati su na slikama od 4-7, poredjanim prema opadajućem procentu aluminijuma (0,98 0,50 0,26 0,15); sa a su označeni donji preseki odlivaka a sa b gornji preseki (uvećanje 450 puta).

Bez dvoumljenja se mogu raspoznati legure bogatije odnosno siromašnije na aluminijumu.

Mikrosnimci pokazuju da je očekivana struktura dobijena (dijagram stanja U-Al). Intermetalno jedinjenje  $UAl_2$  izlučeno je u karakterističnom obliku. Kod legura sa 0,98 i 0,50% Al (bogatijih) to su razni nepravilni štapići koji se javljaju osetno po granicama zrna. Kod legura sa 0,26 i 0,15% Al (siromašnijih) pojava  $UAl_2$  po granicama zrna je sve manja. Ovde se  $UAl_2$  jedinjenje nalazi u obliku manje homogeno rasporedjenih sferoidnih zrna. Granice zrna po kojima se  $UAl_2$  izdvaja, stvarajući heksagonalnu mrežu, verovatno su ostaci granica gama faze.

O stepenu homogenosti legure možemo govoriti na osnovu raspodele  $UAl_2$  faze. Uočljivo je da je ona u svim slučajevima veoma ravnomerno rasporedjena, što dokazuje odsustvo segregacije. Ovo možemo posmatrati i sa aspekta raznih preseka odlivaka. Raspored intermetalne faze na raznim presecima je identičan.

Izdvajanje intermetalne faze u obliku finih sitnih štapića ili sferoidnih zrna zavisi od brzine hladjenja odlivka. Livenjem u čelični kalup debelih zidova ostvarena je dovoljna brzina hladjenja.

Makro pregled dobijenog odlivka pokazao je odsustvo pukotina, šupljina i uključaka. Površina odlivaka bila je dovoljno dobra i glatka. Kvalitet površine zavisi od finocće premaza  $Al_2O_3$ , nanetog na čelični kalup.

## Z A K L J U Č A K

Legiranje urana malim procentom aluminijuma može se izvesti uspešno u otpornoj vakuum peći.

Dobijen je homogen proizvod što dokazuje odsustvo segregacije pri livenju u čelični kalup.

Zdrav odlivak bez šupljina, pukotina i uključaka nečistoća vodi zaključku, da su uslovi livenja i kvalitet premaza glinice na kalupu bili dovoljno dobri.

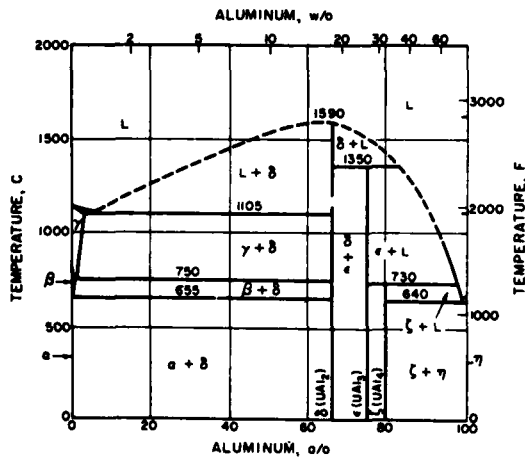
Dobijene su legure približno željenog hemijskog sastava. Zaključak je da metoda direktnog dodavanja aluminijuma u istopljeni uran može dati dobre rezultate.

Topljenje legure može se uspešno izvesti u loncu od  $Al_2O_3$ . Topljenje u grafitnom loncu je neprihvatljivo.

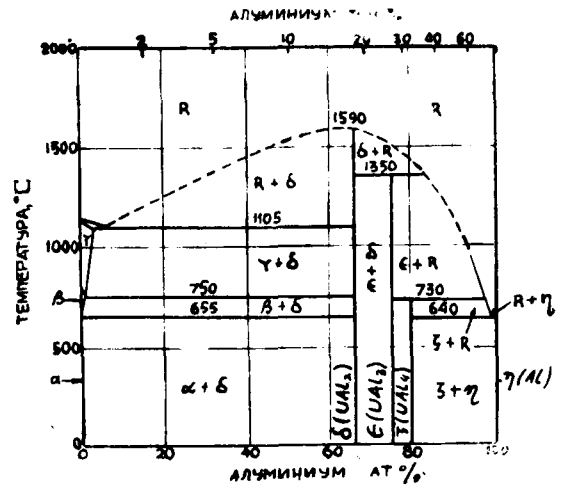
Čelični kalup za livenje pokazao se kao dobar za izvođenje više proba livenja.

L I T E R A T U R A

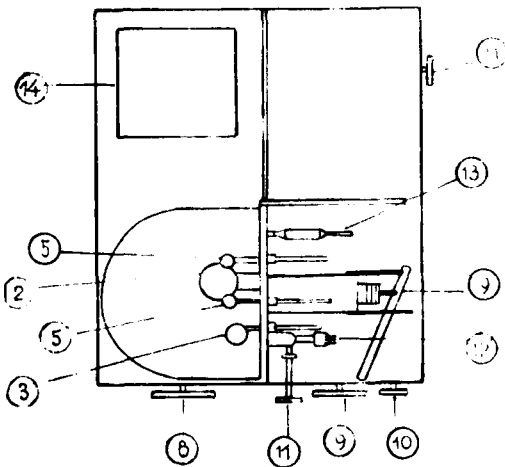
1. AN. Holden: Physical Metallurgy of Uranium, Addison - Wesley Publ. Co. Inc, 1958
2. Proceedings of the international conference on the peaceful uses of atomic energy, Geneva 1955, Vol.9:  
H.A. Saller and F.A. Rough. P/558. G. Cabane, M. Englander, and J. Lehmann. P/352.
3. H.M. Finnishon and J.P. Howe, Metallurgy and Fuels, Pergamon press Ltd. 1956:
  - a) L.M. Wyatt, The Fabrication of Uranium and its Alloys
  - b) F.G. Foote, The Physical Metallurgy of Uranium.
4. F.R. Lorenz, W.B. Hynes, and E.S. Foster.  
USAEC Rep. WAFD - T - 260
5. Proceedings of the second nuclear engineering and science conference, S.T. Ziegler and H.K. Ghiswik.



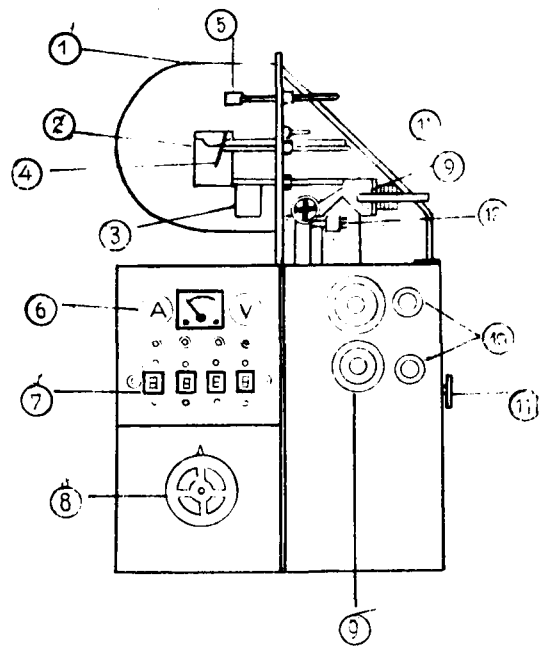
1



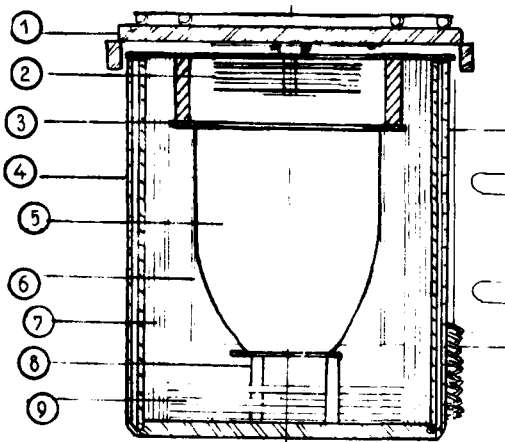
1a



2



2a



3



Sl. 4.

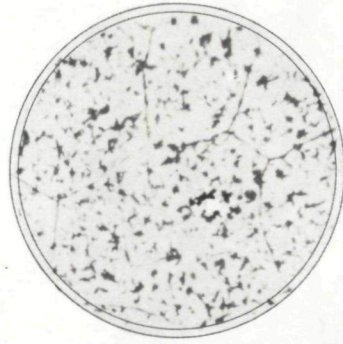


*a*

*b*



Sl. 5

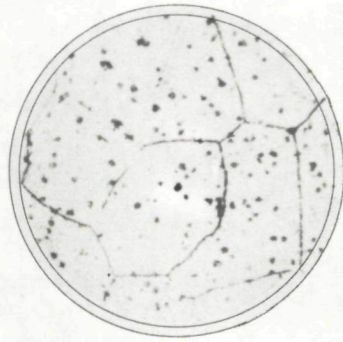


*a*

*b*

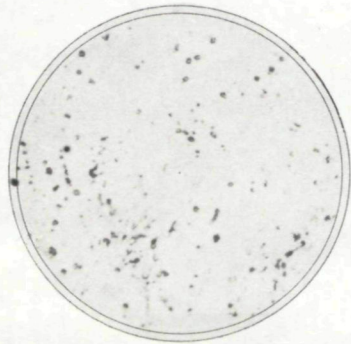


Sl. 6.

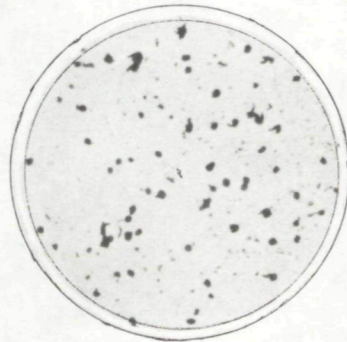


*a*

*b*



Sl. 7.



*a*

*b*