

# **DIFUSÃO DO URÂNIO NO $UO_2$ MONOCRISTALINO**

## **URANIUM DIFFUSION IN $UO_2$ SINGLE CRYSTAL**

**Sabioni, A. C. S.\*; Ferraz, W. B.\*\*; Millot, F.\*\*\***

**\*Departamento de Física/ICEB. Universidade Federal de Ouro  
Preto.  
35400-000, Ouro Preto, MG, Brasil**

**\*\*Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear -  
CDTN/CNEN  
Rua Prof. Mário Werneck s/ nº 30161-970 - Belo Horizonte, MG,  
Brasil  
e-mail: ferrazw@urano.cdtm.br**

**\*\*\*CNRS/CRPHT  
1D Avenue de la Recherche Scientifique, 45071 Orléans, France**

# **DIFUSÃO DO URÂNIO NO $\text{UO}_2$ MONOCRISTALINO**

## **RESUMO**

É descrita uma nova metodologia para a medida direta da difusão do urânio no óxido  $\text{UO}_2$ . Os resultados obtidos mostram que a difusão em volume do urânio no  $\text{UO}_2$  monocristalino é muito menor do que tem sido publicado por outros autores, na mesma faixa de temperatura.

## **URANIUM DIFFUSION IN $\text{UO}_2$ SINGLE CRYSTAL**

## **ABSTRACT**

In this paper a new methodology is presented for the direct measure of uranium in  $\text{UO}_2$ . Our results show that the uranium volume diffusion in  $\text{UO}_2$  single crystals is much smaller than those previously published by other authors, in the same range of temperature.

## INTRODUÇÃO

Uma das propriedades mais estudadas no  $\text{UO}_2$  é a autodifusão do urânio. Esse tipo de estudo é de fundamental importância, pois a difusão do urânio a alta temperatura controla diversos processos de interesse tecnológico: sinterização, variação dimensional do combustível "in-pile", entre outros.

No presente trabalho, mostramos uma metodologia original e moderna para a medida direta da difusão do urânio no  $\text{UO}_2$ . Utilizamos como traçador do urânio o isótopo  $^{235}\text{U}$  e analisamos os perfis de difusão por espectrometria de massa de íons secundários. Os resultados disponíveis são mostrados e comparados com dados prévios considerados confiáveis.

## PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Os testes de difusão foram realizados em monocristais de  $\text{UO}_2$ .

As experiências de difusão foram realizadas entre 1498 e 1697 °C, em atmosfera de hidrogênio. Em cada experiência a amostra monocristalina (e policristalina) de  $\text{UO}_2$  foi imersa em pó de  $\text{UO}_2$  dentro de um cadinho de alumina. O urânio do pó de  $\text{UO}_2$  estava enriquecido no isótopo  $^{235}\text{U}$  (18,8%), que foi usado como traçador.

Após o tratamento térmico de difusão, os perfis de difusão do  $^{235}\text{U}$  foram determinados por espectrometria de massa de íons secundários. Os perfis de concentração em profundidade do  $^{235}\text{U}$  no  $\text{UO}_2$  foram obtidos em função dos sinais dos íons  $^{234}\text{U}^-$ ,  $^{235}\text{U}^-$  e  $^{238}\text{U}^-$  através da expressão:

$$C(^{235}\text{U}) = \frac{I(^{235}\text{U})}{I(^{235}\text{U}) + I(^{238}\text{U})} \quad (1)$$

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

Após os testes de difusão, a concentração superficial do traçador  $^{235}\text{U}$  foi praticamente a mesma para todas as amostras. As Figuras 1 e 2 mostram perfis de difusão do urânio-235 no  $\text{UO}_2$  monocristalino a 1498 e 1600 °C respectivamente.

Para o ensaio a 1498 °C, o coeficiente de difusão foi determinado através de uma solução da segunda lei de Fick para a difusão em meio semi-infinito com concentração superficial constante [3]:

$$\frac{C_s - C}{C_s - C_\infty} = \left( \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \right) \quad (2)$$

onde  $C_s$  é a concentração superficial do traçador,  $C$  é a abundância natural de  $^{235}\text{U}$  na amostra (0,7%),  $C$  é a concentração a uma profundidade  $x$  após um tempo  $t$  de tratamento térmico de difusão e  $D$  é o coeficiente de difusão.

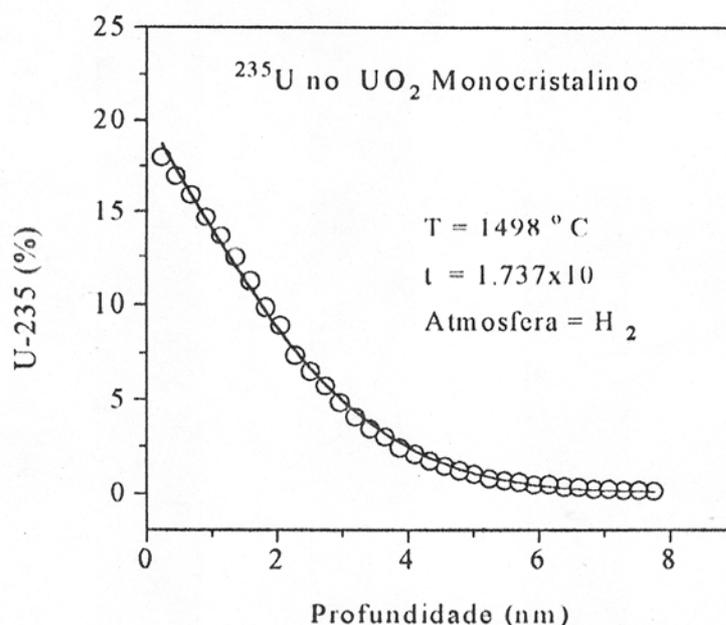


Figura 1 - Perfil de difusão do urânio no UO<sub>2</sub> monocristalino

Para testes a temperatura maiores (1600 e 1697 °C), houve incorporação de material na superfície da amostra, por um mecanismo ainda não identificado. O fenômeno observado é o oposto da evaporação. Na evaporação há perda de material, enquanto em nosso caso, houve ganho de material (Figura 2). O deslocamento da superfície foi de apenas alguns nm, porém esse valor é significativo face à pequena penetração do U no UO<sub>2</sub> monocristalino. Esse fenômeno exigiu a utilização de uma solução da equação da difusão que prevê o deslocamento da superfície original da amostra [3]:

$$C(x, t) = \frac{1}{2} C_s \left[ \operatorname{erfc}\left(\frac{x + vt}{2\sqrt{Dt}}\right) + \exp\left(-\frac{vx}{D}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x - vt}{2\sqrt{Dt}}\right) \right] \quad (3)$$

Na equação (3),  $v$  é positivo para o caso da evaporação. Entretanto, para o nosso caso,  $v$  é um parâmetro negativo pois houve incorporação de material na superfície da amostra.

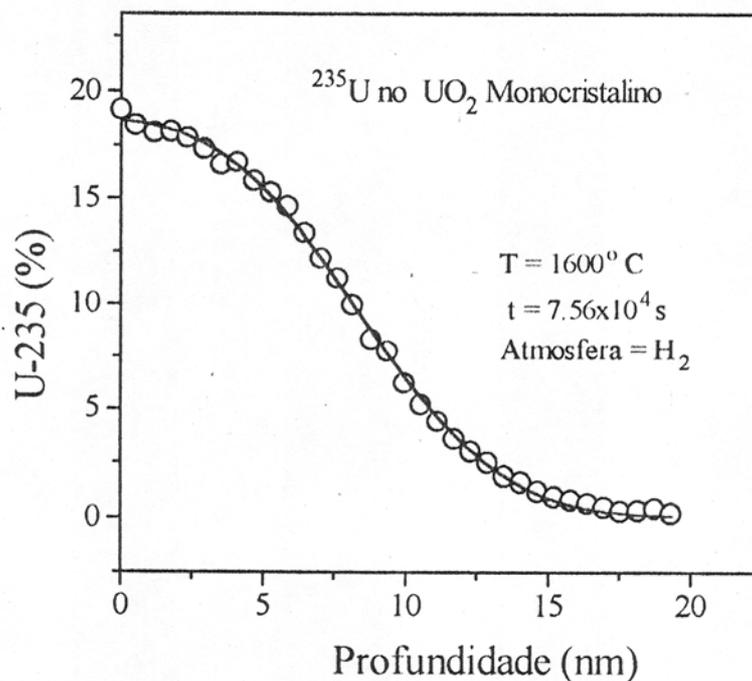


Figura 2 - Perfil de difusão do urânio no UO<sub>2</sub> monocristalino, com a incorporação de material na superfície da amostra

Na Figura 3, comparamos os nossos resultados com aqueles considerados, atualmente, como sendo os mais confiáveis para a difusão em volume do urânio no dióxido de urânio [4]. Pode-se observar, na Figura 3, que nossos coeficientes de difusão são muito menores do que os dados propostos por Matzke [4] como confiáveis.

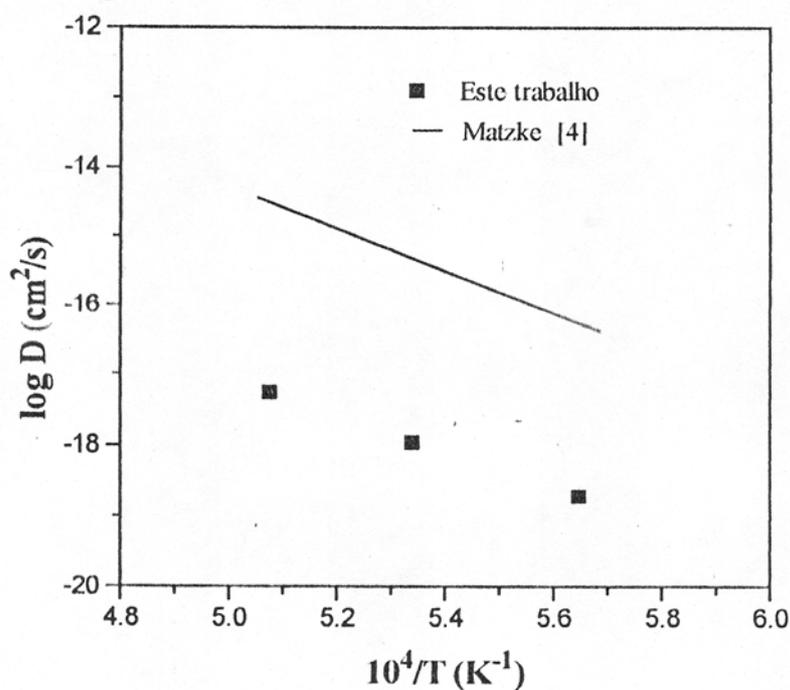


Figura 3 - Diagrama de Arrhenius para a difusão do urânio no  $UO_2$  monocristalino.

## **CONSIDERAÇÕES FINAIS**

Foi apresentada uma nova metodologia para medida direta da difusão do urânio no  $\text{UO}_2$ .

Nossos resultados mostram que a difusão em volume do urânio no  $\text{UO}_2$  é menor do que se considera atualmente.

TRABALHO REALIZADO NO ÂMBITO  
DO CONVÊNIO CD/TN/CNEN E UFOP  
(Termo Aditivo nº 1/1993)

## **AGRADECIMENTOS**

Os autores agradecem ao CNPQ (Processo 300271/93-0) e à FAPEMIG (TEC. 683/92) pelas bolsas e auxílios concedidos.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] Murch, G. E.; Richard, C. and Catlow, A. J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2, 1987, 83, 1157-1169.
- [2] Sabioni, A. C. S.; Ferraz, W. B.; Millot, F.; Dolin, C. Uranium Self-Diffusion in  $\text{UO}_2$  (to be published).
- [3] Philibert, J. Diffusion et transport de matière dans les solides. Les Editions de Physique. 1985.
- [4] Matzke, Hj. J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2, 1987, 83, 1121-1142.