

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 UO_2 MONOCRISTALINO

RESUMO

É descrita uma nova metodologia para a medida direta da difusão do urânio no óxido UO_2 . Os resultados obtidos mostram que a difusão em volume do urânio no UO_2 monocristalino é muito menor do que tem sido publicado por outros autores, na mesma faixa de temperatura.

URANIUM DIFFUSION IN UO_2 SINGLE CRYSTAL

ABSTRACT

In this paper a new methodology is presented for the direct measure of uranium in UO_2 . Our results show that the uranium volume diffusion in 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 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 UO_2 . Utilizamos como traçador do urânio o isótopo ^{235}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 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 UO_2 foi imersa em pó de UO_2 dentro de um cadinho de alumina. O urânio do pó de UO_2 estava enriquecido no isótopo ^{235}U (18,8%), que foi usado como traçador.

Após o tratamento térmico de difusão, os perfis de difusão do ^{235}U foram determinados por espectrometria de massa de íons secundários. Os perfis de concentração em profundidade do ^{235}U no 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}U foi praticamente a mesma para todas as amostras. As Figuras 1 e 2 mostram perfis de difusão do urânio-235 no 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}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.

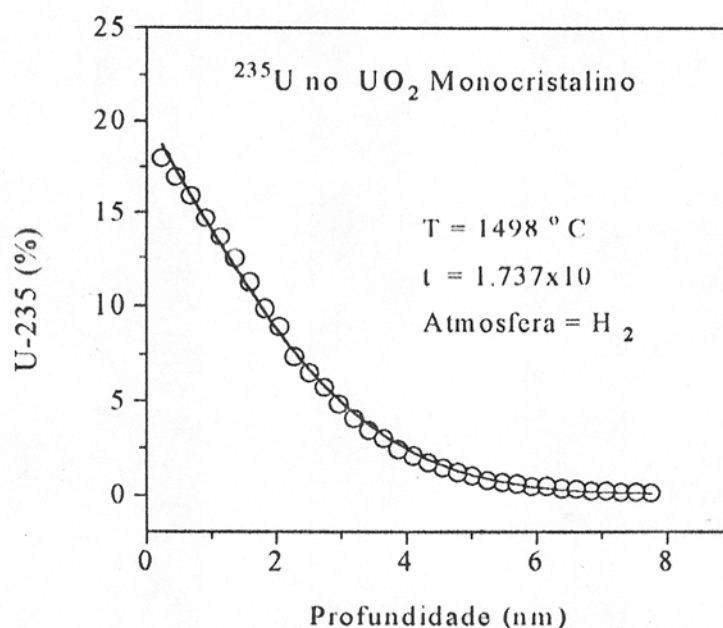


Figura 1 - Perfil de difusão do urânio no UO₂ monocristalino

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 UO₂ 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.

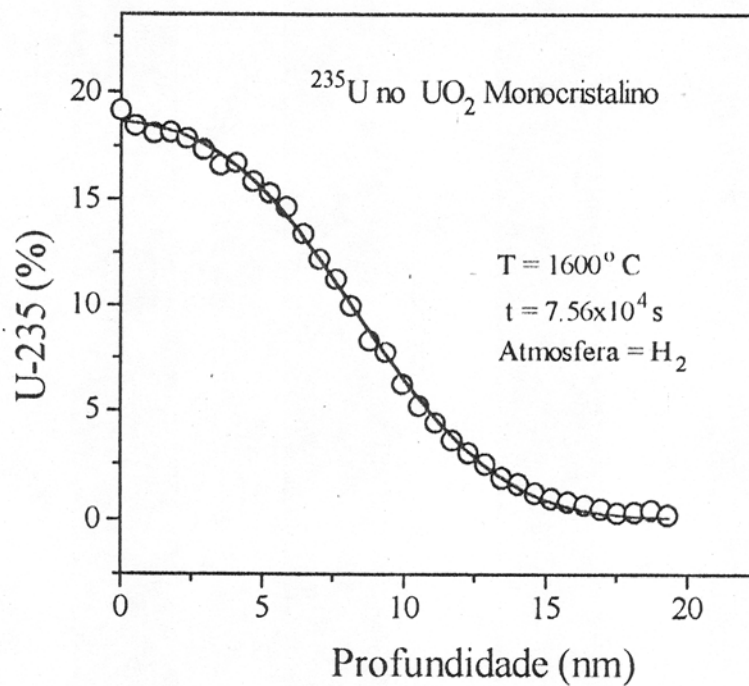


Figura 2 - Perfil de difusão do urânio no UO₂ monocristalino, com a incorporação de material na superfície da amostra

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.

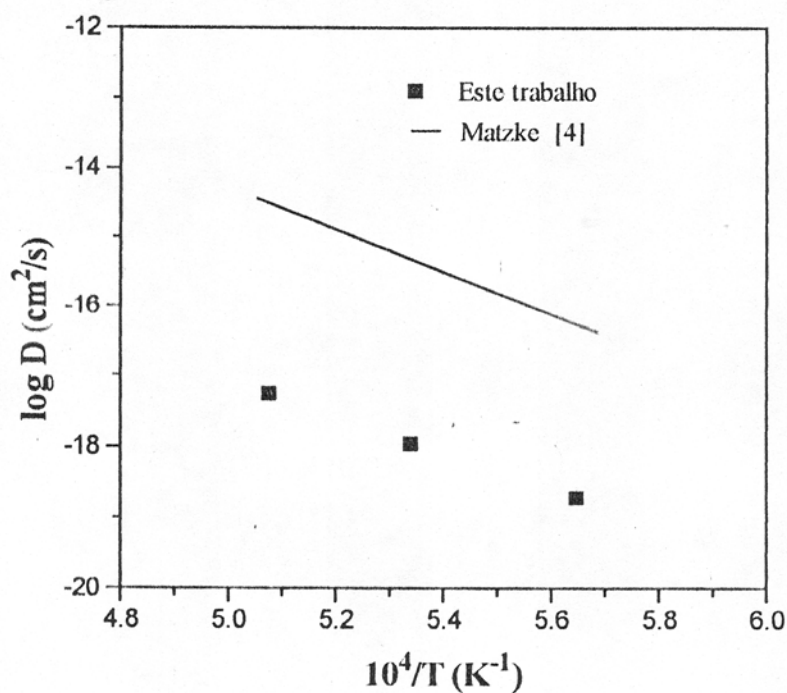


Figura 3 - Diagrama de Arrhenius para a difusão do urânio no UO₂ monocristalino.

CONSIDERAÇÕES FINAIS

Foi apresentada uma nova metodologia para medida direta da difusão do urânio no UO_2 .

Nossos resultados mostram que a difusão em volume do urânio no 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 UO_2 (to be published).
- [3] Philibert, J. Diffusion et transport de matière dans les solides. Les Editions de Physique. 1985.
- [4] Matzke, H. J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2, 1987, 83, 1121-1142.