AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**TECNOLOGIA DE FABRICAÇÃO DE ALVOS DE ALUMINETOS DE URÂNIO PARA
PRODUÇÃO DE Mo-99**

Giovanni de Lima Cabral Romeiro Conturbia

**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Materiais**

**Orientador:
Prof. Dr. Michelangelo Durazzo**

**São Paulo
2017**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**TECNOLOGIA DE FABRICAÇÃO DE ALVOS DE ALUMINETOS DE URÂNIO PARA
PRODUÇÃO DE Mo-99**

Giovanni de Lima Cabral Romeiro Conturbia

**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Materiais**

Orientador:
Prof. Dr. Michelangelo Durazzo

Versão Corrigida
Versão Original disponível no IPEN

São Paulo
2017

Fonte de Financiamento: Fapesp 2011/13849-9, CNPQ 471008/2011-7, CNPQ 304034/2015-0

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho,
para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte

Como citar:

CONTURBIA, G. L. C. R. **TECNOLOGIA DE FABRICAÇÃO DE ALVOS D
ALUMINETOS DE URÂNIO PARA PRODUÇÃO DE Mo-99**. 2017. 103 p. Tese (Doutorado
em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN
CNEN/SP, São Paulo. Disponível em: <www.teses.usp.br> (data de consulta no
formato: dd/mm/aaaa)

Ficha catalográfica elaborada pelo Sistema de geração automática da Biblioteca IPEN/USP,
com os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

Conturbia, Giovanni L. C. R.

TECNOLOGIA DE FABRICAÇÃO DE ALVOS DE ALUMINETOS DE URÂNIO
PARA PRODUÇÃO DE Mo-99 / Giovanni L. C. R. Conturbia;
orientador Michelangelo Durazzo. -- São Paulo, 2017.
103 p.

Tese (Doutorado) - Programa de Pós-Graduação em Tecnologia
Nuclear (Materiais) -- Instituto de Pesquisas Energéticas e
Nucleares, São Paulo, 2017.

1. Alvos de UAlx-Al. 2. Múltiplos Alvos. 3. Fabricação. 4.
Mo-99. I. Durazzo, Michelangelo, orient. II. Título.

FOLHA DE APROVAÇÃO

Autor: Giovanni de Lima Cabral Romeiro Conturbia

Título: TECNOLOGIA DE FABRICAÇÃO DE ALVOS DE ALUMINETOS DE URÂNIO PARA PRODUÇÃO DE Mo-99.

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologia Nuclear da Universidade de São Paulo para a obtenção do título de Doutor em Ciências

Data: 22/12/2017

Banca Examinadora

Prof. Dr.: Paulo Ernesto de Oliveira Lainetti

Instituição: IPEN **Julgamento:** Aprovado

Prof. Dr.: Thomaz Augusto Guisard Restivo

Instituição: Universidade de Sorocaba **Julgamento:** Aprovado

Prof. Dr.: Fernando Soares Lameiras

Instituição: CDTN/CNEN-UFMG **Julgamento:** Aprovado

Ao meu Pai, Mário Conturbia (in memoriam).

Agradecimentos

Agradeço a Deus, pela saúde concedida, me permitindo assim a realização deste trabalho.

À minha esposa, Viviane Roberto da Silva Romeiro Conturbia principalmente pelo amor, carinho, pela compreensão e apoio a mim dedicados.

À minha mãe, Maria de Fátima de Lima Cabral Conturbia, pelos ensinamentos e educação que sempre me concedeu. Ao meu pai (in memoriam).

As minhas irmãs, Giselle e Soraya pelo carinho e ajuda.

Ao meu orientador Dr. Michelangelo Durazzo, pela orientação, boa vontade, confiança e pelos valiosos ensinamentos que me foram passados durante a minha formação neste doutoramento.

Aos amigos e colegas de trabalho do Centro do Combustível Nuclear, pelas discussões técnicas, apoio e dedicação na execução experimental deste trabalho.

À Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES) pelo suporte financeiro para participação em congressos.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) e à Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São (FAPESP) pelo apoio financeiro concedido.

À equipe técnica do Laboratório Nacional de Nanotecnologia (LNnano), especialmente ao Laboratório de Microscopia Eletrônica (LME) por me treinar e possibilitar o uso do microscópio eletrônico de varredura.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), pelas instalações cedidas e a toda infraestrutura que pude utilizar.

E por último, mas não menos importante, a todos que direta ou indiretamente contribuíram para a elaboração deste trabalho.

“O caminho que percorremos em uma jornada, é mais importante que o destino final.”

“Aceite tudo. Qualquer coisa que o presente lhe oferecer, aceite como se tivesse escolhido. Trabalhe com o que tem, não contra o que tem.”
(Eckhart Tolle)

Resumo

CONTURBIA, Giovanni L. C. R. **Tecnologia de fabricação de alvos de aluminetos de urânio para produção de Mo-99**. 2017. 106 p. tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN CNEN/SP. São Paulo

Neste trabalho os parâmetros de fabricação de alvos de dispersão UAl_x-Al foram definidos aplicando-se a tecnologia de montagem e laminação de um conjunto núcleo-moldura-revestimentos tradicionalmente adotada na fabricação de placas combustíveis usadas em reatores de pesquisa. O uso das técnicas de dilatométrica e difração de raios-x com refinamento de Rietveld contribuíram para desenvolver um processamento termomecânico para controle das fases presentes no núcleo do alvo. Um método inovador que permitiu o aumento da produtividade desse tipo de alvo também foi desenvolvido com base na laminação de múltiplos núcleos. O processo de fabricação mostrou-se adequado para produção de alvos com a especificação para produção de Mo-99 no Reator Multipropósito Brasileiro (RMB).

Palavras Chaves: Alvos de UAl_x-Al , Múltiplos Alvos, Fabricação, Mo-99

Abstract

CONTURBIA, Giovanni L. C. R. **Fabrication technology of uranium aluminide targets for Mo-99 production.** 2017. 106 p. tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN CNEN/SP. São Paulo

At this work, the manufacturing parameters of uranium aluminide dispersion targets ($\text{UAl}_x\text{-Al}$) were defined applying the picture-frame technique, traditionally adopted to manufacture fuel plates used in research reactors. The use of dilatometric and X-ray analysis supported the development of a thermomechanical processing to control the phases present in the target meat. It was also developed a method to quantify uranium aluminides phases. An innovative method that allowed to increase the productivity of this type of target was also developed based on multi-core rolling. The manufacturing process proved to be suitable for the production of targets fulfilling the specification to produce Mo-99 in the Brazilian Multipurpose Reactor.

Keywords: $\text{UAl}_x\text{-Al}$ targets, Multiples targets, Fabrication, Mo-99

Lista de Figuras

- Figura 1 - Cadeia de decaimento do ^{99}Mo obtido por fissão de ^{235}U destacando-se em vermelho a formação e decaimento do Tc-99m para o Tc-99g. **19**
- Figura 2 - À esquerda; alvo produzido pelo CCN-IPEN com dimensões de 170 x 47 x 1,52 mm. À direita; alvo produzido pela Argentina com dimensões de 130x 35 x 1,40 mm. **20**
- Figura 3 - Simulação de um alvo anular onde a folha fina de urânio foi substituída por uma folha de cobre. **20**
- Figura 4 - Diagrama de fases para o sistema U-Al adaptado da referência (19)... **24**
- Figura 5 - Esquema de fabricação de alvos $\text{UAl}_x\text{-Al}$ por laminação. De cima para baixo: Componentes do conjunto núcleo-moldura-revestimento; Montagem do conjunto através da soldagem das bordas e o conjunto laminado. **28**
- Figura 6 - Fotografia de um alvo de dispersão $\text{UAl}_2\text{-Al}$ (LEU) fabricado pela AREVA-CERCA. **31**
- Figura 7 - À esquerda tem-se o alvo anular final. À direita tem-se sua radiografia onde é possível visualizar a folha de urânio metálico enrolada no tubo..... **32**
- Figura 8 - Acima: O suporte de irradiação de alvos. Abaixo: O alvo de irradiação usado pela África do sul. **33**
- Figura 9 - À esquerda; Alvo de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$ para ser comercializado pela Coréia do Sul. À direita; Micrografia eletrônica mostrando o núcleo e os revestimentos. O formato esférico das partículas é proveniente do processo de atomização centrífuga desenvolvido pelo KAERI..... **34**
- Figura 10 - À esquerda; micrografia ótica do lingote de UAl_2 , as áreas em verde representam a fração de UAl_2 enquanto que as áreas em contorno (amarelas)

representam a fração em UAl_3 . À direita tem-se uma micrografia ótica ilustrando o núcleo com as partículas de UAl_x embebidas na matriz de alumínio. **35**

Figura 11 - Fotografia do alvo de folha fina usado por BATAN. **35**

Figura 12 - À esquerda tem-se o difratograma do UAl_2 (duas sínteses). É possível notar presença de carbeto de urânio (identificados nos picos) como impureza. À direita tem-se a fotografia das pastilhas de UAl_2 obtidas por meio de reação de estado sólido **36**

Figura 13 - Especificação dimensional do alvo de irradiação UAl_x -Al para produção de Mo^{99} no reator RMB. Todas as dimensões estão em mm..... **37**

Figura 14 - Especificação de parâmetros dimensionais da miniplacas alvo destinadas a unidade crítica do IPEN (Reator IPEN-MB/01). **39**

Figura 15 - À esquerda; Núcleo alocado na cavidade da moldura para laminação da placa combustível. À direita; Múltiplos núcleos alocados nas cavidades da moldura para a laminação da placa alvo. **43**

Figura 16 - À esquerda têm-se os materiais de partida, urânio metálico e alumínio metálico. À direita tem-se o lingote de UAl_2 obtido a partir da fusão dos precursores. **44**

Figura 17: Microscopia eletrônica de varredura em modo retroespalhado dos lingotes de UAl_2 natural (Fusão 2) e enriquecido (Fusão3). **53**

Figura 18 - À esquerda imagem de elétrons secundários da amostra Fusão 2 com as respectivas regiões onde foram coletados os espectros de EDS (à direita)..... **54**

Figura 19: Micrografias eletrônicas provenientes da análise de Difração de elétrons retroespalhados (EBSD). A- Imagem de elétrons secundários. B- imagem de contraste de banda, revelando a fase UAl_3 solidificada nos contornos de grãos. C e D- Mapa de orientação cristalográfica em relação às coordenadas da amostra (superior à direita). **55**

Figura 20: Mapa de composição de fases (EBSD) da região mostrada na Figura 19.	57
Figura 21: Difrátograma do pó de UAl_2 com identificação e quantificação das fases identificadas.	58
Figura 22: À esquerda; micrografia eletrônica de varredura do lingote de UAl_2 (Fusão 2). À direita tem-se o processamento dessa imagem. A área colorida em verde, azul, vermelho e amarelo representam as frações de UAl_2 , UAl_3 , UO e UO_2 respectivamente.	60
Figura 23 - Difrátograma da dispersão $UAlx-Al$ com refinamento de Rietveld. Na parte superior à direita é mostrada quantificação levando em conta a correção de Brindley.	62
Figura 24 - À esquerda, imagem processada pelo analisador de imagens, onde o vermelho representa a matriz de alumínio, o azul claro a fase UAl_2 , o amarelo a fase UAl_3 e o azul escuro a fase UO . À direita, imagem não processada. Os círculos vermelhos ilustram regiões de fragmentação das partículas de UAl_2 sendo processadas como sendo UAl_3	63
Figura 25 - Exemplo de superestimava da fração em UAl_3 devido ao sombreamento das partículas de UAl_2 . Em verde a fase UAl_2 , em azul a fase UAl_3 , em lilás a matriz de alumínio.	64
Figura 26 - Curva de dilatometria da dispersão UAl_2-Al , com sua respectiva derivada.	66
Figura 27 - Curva dilatométrica da dispersão UAl_2-Al em modo isotérmico.	68
Figura 28: Evolução do teor de aluminetos durante a laminação a $540\text{ }^{\circ}C$	72

Figura 29 - Evolução dos picos de difração dos aluminetos ao longo da laminação.	73
Figura 30 - Micrografias eletrônicas da dispersão laminada e tratada termicamente por 7h a 540°C. O tom de cinza mais claro indica a presença de UAl_3 e o tom de cinza mais escuro a presença de UAl_4 . À esquerda imagem de menor magnificação e à direita imagem de maior magnificação.	74
Figura 31 - Escaneamento de raios-x dos núcleos individuais. Pode-se observar localização do núcleo em relação à placa de alumínio.	76
Figura 32 - Processamento das imagens da Figura 28 permitindo avaliar a homogeneidade da dispersão.	77
Figura 33 - Amostras de núcleo laminado que são avaliadas com relação ao dimensional interno. As amostras 1 e 7 são denominadas de defeitos terminais e constituem a avaliação mais crítica.	78
Figura 34 - Micrografia ótica da região denominada Terminal 7 da Placa 1. Algumas medidas de revestimento (1 e 2) podem ser visualizadas na imagem. ...	79
Figura 35 - Superior: Projetos das múltiplas cavidades nas placas mães contendo 12 e 15 núcleos. Inferior: Montagem do conjunto contendo 15 núcleos.	81
Figura 36 - Escaneamento das placas contendo 15 núcleos (superior) e 12 núcleos (inferior).	82
Figura 37 - Processamento das imagens da Figura 36, permitindo a observação da homogeneidade das partículas de alumineto na matriz de alumínio.	83
Figura 38 - À esquerda, imagem do ensaio de dobramento e à direita as amostras dobradas mostrando que ocorreu o caldeamento.	84
Figura 39: Desenho esquemático ilustrado em vermelho os núcleos em que foram avaliados os defeitos terminais.	84

Figura 40 - Micrografia ótica das zonas terminais do núcleo na posição 9.	87
Figura 41 - Superior: Escaneamento de alguns núcleos individuais após a separação da placa mãe. Inferior: Os alvos finalizados após a separação da placa mãe.	90
Figura 42 - Micrografia eletrônica das regiões terminais do núcleo do alvo enriquecido.....	92
Figura 43 - À esquerda: fotografia do alvo individual; À direita: Os alvos embalados prontos para serem entregues ao Centro de Engenharia Nuclear.	93

Lista de Tabelas

Tabela 1 - Reatores produtores de Mo-99.	22
Tabela 2 - Propriedades físicas dos aluminetos de urânio.	25
Tabela 3 - Propriedade mecânica e características das ligações químicas.	26
Tabela 4 - Valores nominais de massas de urânio.....	38
Tabela 5 - Massas de urânio especificadas para as miniplacas alvo destinadas à unidade crítica do IPEN (Reator IPEN-MB/01).....	39
Tabela 6: Projeto de passes adotados para laminação das miniplacas.	48
Tabela 7 - Valores de densidade obtidos para os experimentos de fusão.	50
Tabela 8 - Teores de impureza para o lingote feito com urânio enriquecido (Fusão 3).	52
Tabela 9 - Teores de impureza para o lingote feito com urânio natural (Fusões 1, 2 e 4).	52
Tabela 10 - Comparativo de metodologias para quantificar as fases existentes no lingote de UAl_2	61
Tabela 11 - Resultados de quantificação de fases da dispersão $UAlx-Al$ com e sem correção de micro absorção.	62
Tabela 12 – Comparativo de metodologias para quantificar as fases existentes na dispersão UAl_2-Al	63
Tabela 13 - Fração de aluminetos presentes na dispersão após 9h de tratamento térmico a 540 °C.....	70

Tabela 14 - Teores de aluminetos remanescentes nas placas laminadas após 7 h de tratamento térmico a 540 °C.....	71
Tabela 15 - Resultados dimensionais obtidos comparados com os valores especificados.....	77
Tabela 16 - Dimensional interno das regiões terminais. Na primeira linha, tem-se os valores especificados	79
Tabela 17 - Medidas de espessura de revestimento dos núcleos selecionados em vermelho na Figura (continua)	39 85
Tabela 18 - Medidas de espessura de revestimento do núcleo na posição 9.	88
Tabela 19 - Especificação dimensional e de massas de urânio comparado com os valores obtidos em cada placa.	89
Tabela 20 - Massas de urânio contidas nos alvos fabricados com urânio enriquecido.....	91
Tabela 21 - Valores medidos para espessura de revestimento e de núcleo, para o alvo enriquecido.	92

SUMÁRIO

1.	INTRODUÇÃO	18
1.1.	Métodos de produção de Mo-99.....	19
1.2.	Crise na oferta de Mo-99.....	22
1.3.	Sistema Urânio – Alumínio	23
1.4.	Fabricação de alvos de dispersão UAl_x-Al	27
1.6.	Especificação	37
1.6.1.	Especificação do alvo para o RMB.....	37
1.6.2.	Especificação para o alvo para o reator IPEN-MB/01	39
2.	OBJETIVO	40
2.1.	Objetivos Específicos:	40
2.2.	Originalidade	40
3.	MATERIAIS E MÉTODOS	41
3.1.	Estratégia	41
3.2.	Múltiplos Núcleos.....	42
3.3.	Alvos Com Urânio Enriquecido.....	43
3.4.	Síntese do Dialumineto de Urânio - UAl_2	43
3.5.	Fabricação do Núcleo UAl_x-Al	44
3.6.	Caracterização Físico-Química	45
3.6.1.	Análise Química	45
3.6.2.	Análise Física	45
3.7.	Compactação do Briquete	45
3.8.	Difração de Raios x	45
3.9.	Processamento Termomecânico	47
3.10.	Microscopia Eletrônica	48
3.11.	Análise de imagem	49
3.12.	Análise Térmica - Dilatometria	49
4.	RESULTADOS E DISCUSSÕES	50
4.1.	Caracterização do UAl_2	50
4.1.1.	Quantificação da Dispersão UAl_x-Al	61
4.2.	Desenvolvimento do Tratamento Térmico	66

4.2.1.	Dilatometria	66
4.2.2.	Processamento Termomecânico – Evolução de Fases.....	70
4.3.	Processamento Termomecânico	75
4.3.1.	Núcleos individuais.....	75
4.3.2.	Múltiplos Núcleos	80
4.3.3.	Alvos de Urânio Enriquecido	91
5.	CONCLUSÃO	94
6.	TRABALHOS FUTUROS.....	95
7.	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	96

1. INTRODUÇÃO

O uso de radioisótopos médicos contribui de forma expressiva para a prática da medicina moderna. Anualmente é contabilizada uma demanda mundial de mais de 30 milhões de procedimentos médicos de imagens que usam o radioisótopo tecnécio-99m (^{99m}Tc). Isso corresponde a aproximadamente 80% de todos os diagnósticos feitos globalmente na medicina nuclear.^{1,2}

No Brasil, em 2014, foram utilizados em torno de 450 Ci por semana, sendo os mesmos provenientes de geradores de $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ fornecidos pelo Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.³ Em 2016, a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) reportou que produziu e forneceu radiofármacos para mais de 430 serviços de medicina nuclear no país, totalizando 1,6 milhão de procedimentos de medicina nuclear realizados por clínicas e hospitais para diagnóstico e terapia de vários tipos de neoplasias.⁴

Esse radioisótopo é de suma importância na área de diagnóstico por imagem, pois permite identificar de forma detalhada as funções de um determinado órgão, como por exemplo, conhecer de forma precisa a função cardíaca ou renal de um paciente. Além disso, o Tc^{99m} tem um papel determinante na identificação de um câncer em estado inicial, no acompanhamento evolutivo de doenças e na avaliação da eficácia de um determinado tratamento.

O molibdênio-99, produto de fissão do urânio-235, é um radioisótopo emissor beta com meia vida de aproximadamente 66 horas. Seu decaimento origina o estado metaestável, ^{99m}Tc , e esse decai para seu estado fundamental (^{99g}Tc), com meia vida de 6 horas, através da emissão única de fótons gama com energia de 142 keV. O tecnécio-99 decai para o isótopo estável Ru-99. Na Figura 1 estão ilustradas as transições nucleares envolvidas nesses decaimentos.

Figura 1 - Cadeia de decaimento do ^{99}Mo obtido por fissão de ^{235}U destacando-se em vermelho a formação e decaimento do Tc-99m para o Tc-99g.

Fonte: National Research Council. 2009

O tecnécio-99m é usado como radiofármaco em procedimentos de medicina nuclear, uma vez que possui uma característica nuclear muito peculiar no que concerne à energia do seu decaimento. Essa condição é adequada para gerar imagens dos órgãos sem que a radiação os danifique. A energia desse decaimento (142 keV) é detectada nas câmaras de cintilação com uma maior eficiência. Adicionalmente, esse isótopo possui uma faixa de números de oxidação que pode variar de +1 a +7 e isso o torna muito versátil quimicamente para se complexar com moléculas pequenas e biomoléculas, que por sua vez podem ser acumuladas em órgãos específicos quando administradas no paciente⁵.

1.1. Métodos de produção de Mo-99

O método utilizado mundialmente para produzir Mo-99 em larga escala é a fissão do U-235 incorporado nos chamados alvos de irradiação. Esses alvos constituem-se de uma dispersão de $\text{UAl}_x\text{-Al}$ podendo utilizar urânio de alto enriquecimento ($\text{HEU} > 20\%$ em U-235) ou baixo enriquecimento ($\text{LEU} < 20\%$ em U-235). Na Figura 2 estão ilustrados alvos dispersivos de irradiação produzidos pela Argentina (INVAP)⁶ e pelo Centro do Combustível Nuclear (CCN) do IPEN.

Figura 2 - À esquerda; alvo produzido pelo CCN-IPEN com dimensões de 170 x 47 x 1,52 mm. À direita; alvo produzido pela Argentina com dimensões de 130x 35 x 1,40 mm.

Fontes: À esquerda: Autor da tese. À direita: IAEA Technical Reports Series N°.478.⁶

Existe outra tecnologia de alvos de irradiação, ainda incipiente do ponto de vista tecnológico, que utiliza folhas finas de urânio metálico, conhecida também por alvos anulares.⁷ Nessa tecnologia uma folha fina de urânio metálico com espessura em torno de 125 μm é envolta por uma camada de níquel de 15 μm e selada em um tubo de alumínio. Na Figura 3 está ilustrado um alvo de irradiação do tipo folha fina.

Figura 3 - Simulação de um alvo anular onde a folha fina de urânio foi substituída por uma folha de cobre.

Fonte: IAEA Technical Reports Series No.478.⁶

A produção de Mo-99 também pode ser feita por meio de outros métodos de, porém, eles ou estão em estágio de desenvolvimento ou suprem apenas uma demanda local de ^{99}Mo . Esses métodos estão sumarizados a seguir:⁸

A) Fissão de ^{235}U em solução usando nêutrons produzidos em aceleradores de prótons e deutério por meio do processo de espalação. Essa tecnologia encontra-se em escala laboratorial e vem sendo desenvolvida por G. E. Dale et al.⁹ na instalação nuclear *Los Alamos National Laboratory*, nos Estados Unidos. Em um estudo publicado por esse grupo, foi demonstrada a viabilidade de separar o ^{99}Mo de soluções de sulfato e nitrato de urânio.

B) Ativação neutrônica do ^{98}Mo através da reação nuclear $^{98}\text{Mo} (n,\gamma) ^{99}\text{Mo}$. Nesse processo de fabricação é produzido ^{99}Mo com baixa atividade quando comparado com o ^{99}Mo produzido por fissão de ^{235}U . Mesmo assim, vários países como Japão, Índia, Peru, Cazaquistão têm aderido ao uso dessa tecnologia. Destaca-se, inclusive, que o IPEN tem irradiado no reator IEA-R1 alvos de $^{98}\text{MoO}_3$ para complementar a produção de ^{99}Mo como uma alternativa em médio prazo para enfrentar a crise de fornecimento desse radioisótopo.¹⁰

C) Reação fóton-nêutron $^{100}\text{Mo} (\gamma,n) ^{99}\text{Mo}$. Nesse processo, fótons são produzidos através da irradiação de alvos de alto número atômico, como tungstênio, por elétrons provenientes de aceleradores lineares. Esses fótons gama possuem energia suficiente para ejetar um nêutron do núcleo de ^{100}Mo formando ^{99}Mo . S. D. Chemerisov et al.¹¹ demonstraram experimentalmente a irradiação de alvos de ^{100}Mo para produção de ^{99}Mo e separação do tecnécio-99.

Mais informações sobre esses métodos de produção de Mo-99 podem ser encontradas no relatório emitido pela Agência Internacional de Energia Nuclear (IAEA).⁶

1.2. Crise na oferta de Mo-99

O fornecimento confiável de ^{99}Mo tem decrescido ao longo da última década, principalmente devido aos desligamentos que ocorreram nos reatores da Bélgica (BR-2) e do Canadá (AECL/Nordion) entre 2009 e 2010, desencadeando uma crise mundial no fornecimento desse radioisótopo.¹² Em dezembro de 2015, o governo francês encerrou as atividades do reator ORISIS. Na sequência, em novembro do ano seguinte também foi encerrada a produção de Mo-99 no reator NRU no Canadá, que desde então permanece operando em um estado de vigília sem produção de Mo-99, exceto para suprir eventuais faltas no mercado.¹³ Importante mencionar que essas duas instalações respondiam juntas anualmente com 30% da produção global de Mo-99.¹⁴

Atualmente existem nove reatores produtores desse radioisótopo, sendo que seis deles concentram a produção de aproximadamente 90 a 95% do suprimento global de ^{99}Mo conforme mostrado na Tabela 1. Entretanto, esses reatores têm mais de 45 anos de operação e estão prestes a serem desligados definitivamente, como é o caso do reator HFR na Holanda, cujo desligamento está previsto para 2024¹⁵.

Tabela 1 - Reatores produtores de Mo-99.

Reator	Alvos (Tipo de Enriquecimento)	Capacidade (6 dias Ci Mo-99) por semana	Fim de operação
BR2 (Bélgica)	HEU	7800	Pelo menos até 2026
HFR (Holanda)	HEU	6200	2024
SAFARI-1 (África do Sul)	HEU/LEU	3000	2030
LVR-15 (Rep. Checa)	HEU/LEU	3000	2028
MARIA (Polônia)	HEU	2700	2030
OPAL (Austrália)	LEU	2150	2057
RA-3 (Argentina)	LEU	400	2027
RIAR-3 (Rússia)	HEU	1000	Pelo menos até 2025
KARPOV (Rússia)	HEU	350	Pelo menos até 2025

Fonte: OECD (2017) ¹⁵

* Em negrito destacam-se os seis reatores que juntos produzem 90-95 % de todo Mo-99 consumido mundialmente.

O Brasil tinha como seu principal fornecedor o Canadá, e, não podendo mais contar com esse suprimento teve que buscar novas alternativas, importando atualmente Mo-99 da França, África do Sul e Rússia.¹⁶ Um trabalho apresentado por J. Osso et al.¹⁰ destaca que o Brasil tem uma necessidade de ^{99}Mo que corresponde a 4% da demanda mundial, e foi estimado que essa demanda aumentará entre 10 e 15% nos próximos anos. Para lidar com esse cenário o Brasil, decidiu pela construção do Reator Multipropósito Brasileiro – RMB, que, entre outras funções, irá irradiar alvos de ^{235}U para produzir ^{99}Mo com a finalidade de atender a demanda nacional.

Atualmente no mundo, a maior parte dos alvos de dispersão de $\text{UAl}_x\text{-Al}$ é comercialmente fabricada pela AREVA-CERCA (França) e pela INVAP (Argentina). Juntas, essas empresas fornecem os alvos que são irradiados na África do Sul, Austrália, Holanda e Bélgica.

1.3. Sistema Urânio – Alumínio

O urânio e o alumínio formam um sistema cujo diagrama de fases mostra a existência de três compostos intermetálicos estáveis, denominados de dialumineto de urânio UAl_2 , trialumineto de urânio UAl_3 e tetra-alumineto de urânio UAl_4 . A mistura desses intermetálicos é denominada como UAl_x onde x pode variar de 2 a 4^{17,18}. Na Figura 4 está ilustrado o diagrama de fases para o sistema urânio-alumínio¹⁹, e na Tabela 2 estão compiladas as propriedades físicas desses aluminetos.

Para a fabricação dos alvos de irradiação, o UAl_2 é utilizado como material de partida, pois possui um ponto de fusão congruente, o que implica que esse alumineto é sintetizado em uma única etapa, não necessitando de tratamento térmico posterior à síntese

Figura 4 - Diagrama de fases para o sistema U-Al adaptado da referência (19).

Fonte: H. OKAMOTO, 2012.¹⁹

O UAl_3 e o UAl_4 apresentam pontos de fusão incongruentes e, portanto, formam-se através de reações peritéticas, necessitando de tratamentos térmicos longos para completar a síntese (ver Figura 4). Outra vantagem no uso do UAl_2 reside na sua maior densidade em relação aos demais aluminetos (ver Tabela 2). Sendo assim, consegue-se uma maior quantidade de urânio para uma mesma fração volumétrica de fase físsil e esse parâmetro é determinante na produção do Mo-99 por ser tratar de um produto de fissão do U-235.

Tabela 2 - Propriedades físicas dos aluminetos de urânio.

	Parâmetro de Rede (nm)	Teor de Urânio (%)	Densidade g/cm^3	Ponto de Fusão ($^{\circ}\text{C}$)
UAl_2	$a = 0,7766$ ²⁰	81,52 ²¹	8,14 ²¹	1615 ¹⁹
UAl_3	$a = 0,4278$ ²²	74,63 ²¹	6,80 ²¹	1355 ¹⁹
	$a = 0,4401$ ²³		6,10 ²³	
UAl_4	$b = 0,6246$	68,80 ²¹	5,6 ²³	740 ¹⁹
	$c = 1,3716$			

Fontes: H. OKAMOTO, 2012. ¹⁹. G. KATZ, A. J. JACOBS. 1962 ²⁰. S. NAZARÉ. et al. 1975 ²¹. R. E. RUNDLE, A. S. WILSON. 1949 ²². V. Y. ZENOU. et al. 2001 ²³.

Esses aluminetos também diferem entre si no que concerne ao tipo de ligação química que existe entre seus átomos, e a compreensão da natureza dessas ligações é importante para prever e entender as propriedades químicas e físicas desses materiais. T. Gao et. al ²⁴ estudaram a estrutura eletrônica e elasticidade dos intermetálicos UAl_2 e UAl_3 . Nesse trabalho os autores realizaram um estudo teórico através do método de pseudo-potencial de ondas planas baseado na Teoria de Densidade Funcional (DFT), ²⁵ e encontraram que o módulo volumétrico desses compostos é comparável, mas que o UAl_2 possui maior módulo seguido pelo UAl_3 .

O módulo volumétrico (K) é uma das constantes elásticas de um material, assim como o módulo de cisalhamento (G), módulo de Young (E) e a razão de

Poisson (μ). Essas constantes se relacionam matematicamente entre si²⁶, e o módulo volumétrico é conhecido por estar correlacionado com a dureza de um material²⁷.

Além do módulo volumétrico, os autores calcularam também o módulo de cisalhamento, sendo maior no UAl_2 que no UAl_3 . Seu trabalho revelou que o UAl_2 possui uma dureza maior que o UAl_3 , e isso tem influência direta no processamento termomecânico de laminação, etapa importante do processo de fabricação, a qual será detalhada adiante.

No que se refere às ligações químicas, também foi observado que em ambos os aluminetos há a formação de ligação metálica entre os átomos de urânio e alumínio. No caso do UAl_2 , foi observado que, além de metálica, a ligação entre seus átomos também apresenta um leve caráter covalente, levando a uma interação mais forte entre os átomos quando comparado ao UAl_3 .

A estrutura eletrônica do UAl_4 foi investigada por L. Kniznik et. al²⁸, que também utilizaram o DFT como método em seus cálculos e encontraram que o módulo volumétrico no UAl_4 é semelhante ao UAl_3 (ver Tabela 3), e que a ligação entre os átomos de urânio e alumínio no UAl_4 é de caráter covalente devido a uma forte hibridização entre os orbitais $3p$ do Al com os orbitais $5f$ do urânio. A ligação no UAl_4 é, porém, um pouco mais fraca que a ligação no UAl_3 devido às distâncias entre os átomos de urânio e alumínio serem maiores no UAl_4 . A partir desses trabalhos^{24,28} pode se deduzir que a força das ligações nos aluminetos de urânio decresce do UAl_2 para o UAl_3 seguido pelo UAl_4 . Na Tabela 3 estão sumarizados as propriedades mecânicas e os tipos de ligações químicas existentes nos aluminetos.

Tabela 3 - Propriedade mecânica e características das ligações químicas.

Aluminetos / Propriedades	Módulo volumétrico (GPa)	Tipo de ligação química
UAl_2	102 ²⁴	Metálica e Covalente ²⁴
UAl_3	86 ²⁴	Metálica ²⁴
UAl_4	88 ²⁸	Covalente ²⁸

Fontes: S. SHU-YING KANG. et al. 2012²⁴, L. KNIZNIK, et al.²⁸

1.4. Fabricação de alvos de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$

O processo de produção dos alvos de dispersão de $\text{UAl}_x\text{-Al}$ é baseado na tecnologia de fabricação do combustível nuclear tipo placa, usado em reatores de pesquisa. Essa tecnologia adota uma técnica de montagem conhecida na literatura por *picture-frame technique*²⁹, que em português pode ser traduzido livremente por núcleo-moldura-revestimento. A estrutura “núcleo-moldura-revestimento” é usualmente denominada de conjunto. Na Figura 5 está ilustrada a técnica de montagem do conjunto, termo usado neste trabalho. Esse conjunto é submetido a um processo de conformação mecânica a quente e a frio onde o mesmo é passado várias vezes através de dois cilindros paralelos girando em sentidos opostos com a mesma velocidade inicial até que o conjunto se deforme suficientemente para atingir uma espessura determinada. Esse tipo de processamento mecânico é conhecido por laminação.

Técnicas de metalurgia do pó (homogeneização e compactação) também são utilizadas na fabricação dos núcleos dos alvos, que neste caso é composto de pó de UAl_2 (enriquecido a 19,75 % no isótopo ^{235}U), misturado com pó de alumínio (material estrutural da matriz do núcleo). Como mencionado anteriormente o material de partida utilizado no núcleo tem composição próxima do UAl_2 (> 90% p/p em UAl_2), e converte-se gradualmente em UAl_3 e UAl_4 durante o processamento termomecânico de laminação a quente através de reações de estado sólido com a matriz de alumínio. Essa transformação dá origem a um núcleo final do alvo que é uma mistura dessas fases dispersa numa matriz contínua de alumínio, por isso designado por dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$.¹⁷

A composição do núcleo do alvo é definida com base na quantidade especificada de U^{235} que deve estar contida no alvo. Os pós são pesados, homogeneizados e compactados, obtendo-se uma peça sólida com porosidade em torno de 5 - 8 %, formando assim o núcleo $\text{UAl}_2\text{-Al}$ do alvo. O alvo é fabricado por laminação do conjunto núcleo-moldura-revestimentos, como está ilustrado na Figura 5.

Figura 5 - Esquema de fabricação de alvos UAl_x -Al por laminação. De cima para baixo: Componentes do conjunto núcleo-moldura-revestimento; Montagem do conjunto através da soldagem das bordas e o conjunto laminado.

Fonte: F. B. J. Ferrufino. 2011³⁰.

Vários trabalhos têm sido publicados na literatura sobre a fabricação de alvos de dispersão UAl_x -Al para a produção de ^{99}Mo por fissão. Destacam-se dois trabalhos de Ahmad Mushtaq et al. (2011, 2013) que reportaram o desenvolvimento de alvos para produção de Mo-99 no Paquistão. No primeiro trabalho³¹ o autor publicou as especificações dos materiais de partida, tal como a pureza das matérias primas. Também comenta a respeito das margens de segurança que devem ser seguidas durante a fabricação dos alvos de UAl_x , tais como: espessura mínima de revestimento, detecção de falha na união metalúrgica (caldeamento) por meio de

ultrassom e teste de bolhas, também chamado de *bister test*. No segundo trabalho³² os autores apresentam resultados da fabricação de alvos de dispersão de $\text{UAl}_x\text{-Al}$ voltados para uma produção local de Mo-99. No entanto, omitem um ponto específico e importante do processo, como detalhes do tratamento térmico para converter UAl_2 em UAl_3 e UAl_4 .

K. Carlos, et al.³³ apresentaram alguns resultados do desenvolvimento tecnológico de alvos na Argentina no início de seu desenvolvimento. Nesse trabalho os autores reportam os primeiros parâmetros obtidos na fabricação de alvos, tais como, a granulometria usada, aspectos dimensionais e carga de urânio dos alvos.

Alguns trabalhos descritos na literatura tem como objetivo aumentar a quantidade de urânio existente no alvo, pois dessa maneira aumenta-se também a quantidade Mo-99 que pode ser extraída. Nesse sentido, vale mencionar o artigo de Ryu et al.³⁴ que publicaram resultados utilizando pó de urânio metálico atomizado disperso em uma matriz de alumínio, produzindo assim alvos com densidade de 3, 6 e 9 gU/cm³. Nesse trabalho os autores propuseram tratamento térmico a 700 °C por 1h (após a irradiação) a fim de se consumir todo urânio metálico presente na dispersão, pois esse não é dissolvido pela rota alcalina convencional de produção de Mo-99. A rota alcalina é uma metodologia utilizada comercialmente para a extração de Mo-99 do restante dos produtos de fissão, através da dissolução do alvo em uma solução a quente de NaOH.

Em outro trabalho publicado posteriormente pelo mesmo grupo de pesquisa³⁵ foram avaliadas diferentes composições de ligas de urânio e alumínio (U-10%Al e U-20%Al) em relação a sua síntese e fabricação de alvos. Diferentemente do trabalho anterior, onde o material de partida foi urânio metálico atomizado, nesse trabalho os autores atomizaram ligas de urânio-alumínio e demonstraram a possibilidade de síntese ressaltando a vantagem da liga U-10%Al possuir melhor fluidez no processo de atomização e maior densidade de urânio. Além disso, alvos contendo essas ligas dispersas em alumínio foram fabricados e foi verificado que a morfologia esférica das partículas permanece íntegra após o processamento termomecânico de laminação a 500 °C. Os trabalhos desenvolvidos por Ryu et. al. possuem uma peculiaridade, que é a fase físsil ser formada por partículas esféricas

obtidas por meio de atomização centrífuga desenvolvida no KAERI (*Korean Atomic Energy Institute*).³⁶ Com essa tecnologia, obtém-se pó de materiais mais dúcteis como, por exemplo, da liga U-10%Al, que pode ser de difícil moagem utilizando as técnicas de cominuição convencionais.

Ao longo da execução deste trabalho foram também realizadas buscas de anterioridades de patentes em bases especializadas a fim de se obter informações de pedidos de patentes relacionados à fabricação de alvos de UAl_x -Al. Para isso foram selecionadas algumas bases de dados de patentes, entre elas, a base de dados nacional do Instituto Nacional da Propriedade Industrial (INPI), a base de dados de patentes europeias – *European Patent Office* - e a base de dados de patentes dos Estados Unidos – USPTO. As palavras chaves em português que foram usadas na pesquisa foram as seguintes: Alvos, Mo-99, fabricação múltiplos alvos, alvos de urânio, e em inglês as palavras foram; *uranium targets*, *Mo-99*, *uranium and targets*. Importante mencionar que não foram encontrados registros de patentes relacionados a múltiplos alvos considerando as bases de dados mencionadas e as palavras chaves usadas. Na base de dados do INPI também não foi encontrado nenhum pedido de patente similar.

Desde 2011 um evento chamado “*Molybdenum Topical Meeting*” é realizado nos Estados Unidos com o objetivo de discutir aspectos técnicos e econômicos sobre produção e fornecimento de Mo^{99}/Tc^{99m} usando urânio de baixo enriquecimento (LEU U-235 < 20 %).³⁷ Destaca-se o “*Molybdenum Topical Meeting*”, realizado em 2013 e em 2015, em que mais de 100 participantes de 11 países entre setor público e privado discutiram medidas de como superar a crise de fornecimento de Mo-99/Tc-99m.

Em 2013 a AREVA-CERCA³⁸, indústria nuclear francesa, apresentou um histórico de desenvolvimento de combustíveis nucleares tipo placa e de alvos de irradiação, mostrando que produz anualmente milhares de alvos para suprir o mercado mundial. Essa empresa também mencionou que tem feito progressos na industrialização de alvos de UAl_2 de baixo enriquecimento (LEU) para produzir Mo-99 e apresentou a aplicação de metodologias de controle de qualidade para satisfazer os requisitos especificados por cada cliente final (reatores produtores de

radioisótopo). Na Figura 6 é mostrado uma fotografia de alvo de $\text{UAl}_2\text{-Al}$ fabricado pela AREVA-CERCA.

Figura 6 - Fotografia de um alvo de dispersão $\text{UAl}_2\text{-Al}$ (LEU) fabricado pela AREVA-CERCA.

Fonte: B. STEPNIK et al. 2013³⁸

Também participou desse evento a INVAP³⁹, empresa argentina fabricante de alvos, que apresentou alguns resultados de como aumentar a produção de Mo-99 , realizando pequenas alterações no alvo, como por exemplo, aumentar a quantidade de urânio-235 por alvo e diminuir a espessura do revestimento. Essas mudanças partem do pressuposto que, devido ao alvo de irradiação ser submetido a uma baixa “queima” de U-235 (2 - 3 %) e a um curto período de permanência nos reatores (5 - 6 dias), o aumento do teor de U-235 ou a diminuição do revestimento não acarretaria riscos na irradiação desses alvos. Os autores compararam os parâmetros de queima e tempo de permanência dos alvos com os do combustível nuclear utilizado em reatores de pesquisa que por sua vez, apresenta uma queima de 50-60 % em média e um tempo de residência maior que 60 dias. Dessa forma, os autores concluíram que existe uma margem de segurança para que parâmetros, como carga de urânio-235 e espessura de revestimento sejam alterados sem, no entanto, comprometer a segurança da irradiação e do processamento do alvo. Em 2015, nesse mesmo evento, (*Molybdenum Topical Meeting*,) foi apresentado um trabalho por Y. J. Jeong et al.⁴⁰ que mencionou a investigação de um tratamento térmico para converter o UAl_2 em UAl_3 e UAl_4 . No entanto, no site do evento está

disponível apenas o resumo, não sendo possível ter acesso aos resultados obtidos pelo grupo.

Em abril de 2017 foi realizado um encontro técnico na Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) intitulado de “*Technical Meeting on Global Capabilities for the Production and Manufacture of non-HEU Molybdenum-99 Targets*”. Esse evento reuniu empresas e institutos de pesquisas para discutir técnicas atuais e inovadoras, bem como, discutir a capacidade para fabricação de alvos de irradiação para produção de Mo-99 por fissão nuclear. Estiveram presentes representantes dos seguintes países: Brasil, Argentina, Chile, Indonésia, Estados Unidos, Holanda, África do Sul, Coreia, Paquistão, Índia, Suíça e Uzbequistão, que expuseram as principais atividades que tem sido desenvolvidas relacionadas à fabricação de alvos de dispersão (UAl_x-Al) e folha fina de urânio metálico.⁴¹

No Chile⁴² tem-se obtido Mo-99 através da ativação do $^{98}MoO_3$, além disso, também têm sido desenvolvidas atividades para obter Mo-99 através da fissão de U-235 em alvos anulares (folha fina). Foi reportada a retomada das atividades de irradiação, extração e purificação Mo-99 que estão pendentes no momento. Nesse trabalho foram fornecidos detalhes de fabricação de alvos anulares. Na Figura 7 está ilustrado o alvo de folha fina (anular) final fabricado pelo Chile.

Figura 7 - À esquerda tem-se o alvo anular final. À direita tem-se sua radiografia onde é possível visualizar a folha de urânio metálico enrolada no tubo.

Fonte: L. Olivares et al. 2017 ⁴².

R. Howard ⁴³, dos Estados Unidos, mostrou as atividades realizadas no Reator de Alto Fluxo (HFIR) e ressaltou que, devido as suas características de operação, torna-se inviável o uso desse tipo de reator para a produção de

radioisótopos, porém é muito útil no processo de qualificação e desenvolvimento de alvos de irradiação. G. Vandegrift, ⁴⁴ também dos Estados Unidos, forneceu um endereço eletrônico em que pode ser acessado um compêndio que relata detalhadamente as atividades realizadas no desenvolvimento de alvos anulares.

A África do Sul⁴⁵ mostrou o progresso na conversão de alvos de alto enriquecimento (HEU) para alvos de baixo enriquecimento (LEU) UAl_x-Al . A conversão completa ainda não ocorreu, o que significa que o Mo-99 é produzido através da irradiação de alvos tanto de alto quanto de baixo enriquecimento, a fim de não afetar a segurança no fornecimento de Mo-99 durante essa conversão. O autor informou também que a África do Sul consegue produzir alvos de UAl_x-Al (LEU), embora atualmente importe-os de um fornecedor externo, pois está sendo feito um trabalho de aprimoramento desses alvos a fim de melhorar o rendimento de extração de Mo-99. Na Figura 8 estão ilustrados o alvo e o suporte de irradiação utilizados pela África do Sul.

Figura 8 - Acima: O suporte de irradiação de alvos. Abaixo: O alvo de irradiação usado pela África do sul.

Fonte: R. Jamie, 2017 ⁴⁵.

Y. J. Jeong et al.⁴⁶ mostraram resultados de fabricação de alvos de dispersão UAl_x-Al ($2,6 \text{ gU/cm}^3$) para serem comercializados, e também apresentou resultados de fabricação de alvos de alta concentração de urânio ($3,2 \text{ gU/cm}^3$ e $4,0 \text{ gU/cm}^3$). Na Figura 9 está ilustrado o alvo de dispersão e a microestrutura da dispersão nos alvos produzidos pela Coreia do Sul.

Figura 9 - À esquerda; Alvo de dispersão UAl_x -Al para ser comercializado pela Coréia do Sul. À direita; Micrografia eletrônica mostrando o núcleo e os revestimentos. O formato esférico das partículas é proveniente do processo de atomização centrífuga desenvolvido pelo KAERI.

Fonte: Y. J. Jeong et al. 2017 ⁴⁶

L. Ali.⁴⁷ mostrou os aspectos experimentais envolvidos na fabricação de alvos de UAl_x -Al no Paquistão, focando na caracterização do lingote de UAl_2 e do alvo final. Os resultados discutidos foram muito similares aos resultados de sua publicação em 2013³² (comentado anteriormente neste texto). Além disso, o autor ressaltou trabalhos futuros relacionados a licenciamento para a irradiação desses alvos e extração do Mo-99. Na Figura 10 é mostrada a microestrutura do lingote de UAl_2 e micrografia de secção transversal do alvo laminado

Figura 10 - À esquerda; micrografia ótica do lingote de UAl_2 , as áreas em verde representam a fração de UAl_2 enquanto que as áreas em contorno (amarelas) representam a fração em UAl_3 . À direita tem-se uma micrografia ótica ilustrando o núcleo com as partículas de UAl_x embebidas na matriz de alumínio.

Fonte: L. Ali. 2017⁴⁷.

M. B. Febrian⁴⁸ discutiu aspectos relacionados à purificação de Mo-99 obtido por fissão em alvos de folha fina em BATAN, Indonésia. O pesquisador mencionou também a capacidade de se obter até 400 Ci por ciclo de operação, o que é uma quantidade pequena quando comprado, por exemplo, aos 1000 Ci por ciclo de operação que será obtido quando o RMB entrar em funcionamento. Na Figura 11 está ilustrado o alvo de irradiação utilizado por BATAN.

Figura 11 - Fotografia do alvo de folha fina usado por BATAN.

Fonte: M. B. Febrian, 2017.⁴⁸

V. P. Sinha⁴⁹ reportou que o Mo-99 na Índia é atualmente produzido por ativação do Mo-98 e que está sendo desenvolvida a fabricação dos alvos de dispersão $\text{UAl}_2\text{-Al}$. O autor mostrou alguns aspectos experimentais de caracterizações do UAl_2 , entre eles destaca-se a síntese do UAl_2 que é feita por meio de reação de estado sólido (ver Figura 12). O autor também informou que está em desenvolvimento o processo de qualificação desses alvos.

Figura 12 - À esquerda tem-se o difratograma do UAl_2 (duas sínteses). É possível notar presença de carbeto de urânio (identificados nos picos) como impureza. À direita tem-se a fotografia das pastilhas de UAl_2 obtidas por meio de reação de estado sólido

Fonte: V. P. Sinha, 2017⁴⁹.

As empresas (INVAP e AREVA-CERCA), bem como, os institutos de pesquisa mencionados adotam basicamente a mesma tecnologia de fabricação (dispersão ou folha fina), já descritas previamente. Contudo, nessas publicações os detalhes nos procedimentos de fabricação e qualificação não são mostrados, os quais dependem das especificações particulares de cada fabricante.

1.6. Especificação

1.6.1. Especificação do alvo para o RMB

Como já mencionado, para cada alvo UAl_x-Al são adotados procedimentos específicos que devem ser desenvolvidos por cada fabricante, os quais não são publicados na literatura aberta. A especificação dos alvos que serão utilizados para irradiação no RMB para suprir a demanda interna, num total de 1000 Ci semanais de ^{99}Mo , também possui características específicas. Na Figura 13 é apresentada a especificação dimensional do alvo UAl_x-Al previsto para ser irradiado no reator RMB ⁵⁰.

Figura 13 - Especificação dimensional do alvo de irradiação UAl_x-Al para produção de Mo^{99} no reator RMB. Todas as dimensões estão em mm.

Fonte: Especificação, 2014 ⁵⁰

Essas dimensões são típicas para irradiação no reator RMB e, portanto, devem ser definidos os requisitos dimensionais próprios dos componentes estruturais do conjunto núcleo, moldura e revestimentos que serão usados para a fabricação do alvo com a geometria especificada para o RMB.

Um aspecto importante da especificação é a quantidade de urânio-235 que deve estar contida no alvo acabado, pois esse parâmetro determinará, em última instância, o teor de $Mo-99$ disponível para ser extraído no processamento

radioquímico. Está especificado que cada alvo de urânio deve conter $1,42 \pm 0,05$ g de U-235 e, uma vez definida a massa de U-235, as demais quantidades (massa de urânio e massa de UAl_2) são determinadas com base no enriquecimento, densidade e no teor de urânio no UAl_2 sintetizado. Por ora, para fins explicativos, serão considerados os valores nominais de enriquecimento e teor de urânio. Para o enriquecimento do isótopo U-235, densidade do UAl_2 e o teor de urânio no UAl_2 tem-se $19,75 \pm 0,20\%$, $8,20 \text{ g/cm}^3$ e $81,5\%$ respectivamente. Dessa forma, é possível calcular as massas apresentadas na Tabela 4.

Tabela 4 - Valores nominais de massas de urânio.

Massa do isótopo U-235 (g)	Massa de Urânio Total (g)	Massa de UAl_2 (g)
$1,42 \pm 0,05$	$7,2 \pm 0,3$	8,9 g

Fonte: Especificação, 2014⁵⁰.

Uma importante exigência da especificação é a limitação do teor de UAl_2 presente no núcleo acabado, a qual deve ser preferencialmente zero. Essa limitação decorre do fato dos aluminetos de urânio possuírem propriedades químicas diferentes no que se refere à dissolução em meio básico para a extração do Mo^{99} após a irradiação. Por exemplo, Cols *et. al.*⁵¹ reportaram que o UAl_3 e o UAl_4 dissolvem-se mais facilmente em meio alcalino do que o UAl_2 , e isso define o rendimento do processamento radioquímico para a extração de molibdênio.

A diferença no comportamento de dissolução desses aluminetos pode ser compreendida melhor se considerarmos a natureza das ligações químicas existentes entre seus átomos, como apresentado na seção 1.3 deste trabalho. A ligação química no UAl_2 (mais difícil de dissolver em NaOH) é do tipo metálica com um leve caráter covalente e uma interação mais forte entre seus átomos que no UAl_3 ²⁴. No UAl_4 , por sua vez, existe apenas ligação covalente mais fraca que o UAl_3 ²⁸. A força dessas ligações, portanto, explica a diferença de solubilidade em meio alcalino reportada por Cols *et. al.*⁵¹

As medidas de espessuras de revestimentos, principalmente nas zonas terminais do núcleo, constituem também um parâmetro importante que precisa ser

atendido na especificação. Tem-se que, para as zonas terminais, o limite mínimo de revestimento especificado é de 0,25 mm e o limite máximo de espessura do núcleo é de 1,07 mm.

1.6.2. Especificação para o alvo para o reator IPEN-MB/01

Outro tipo de especificação definiu os alvos para testes visando à validação de cálculos neutrônicos⁵². Na Figura 14 são mostrados os parâmetros dimensionais especificados para essas miniplacas alvo e na Tabela 5 são compilados os valores de massa de urânio que devem estar contidas nessas miniplacas.

Figura 14 - Especificação de parâmetros dimensionais da miniplacas alvo destinadas a unidade crítica do IPEN (Reator IPEN-MB/01).

Fonte: D. B Domingues 2014 ⁵².

Tabela 5 - Massas de urânio especificadas para as miniplacas alvo destinadas à unidade crítica do IPEN (Reator IPEN-MB/01).⁵²

Massa do isótopo U-235 (g)	Massa de Urânio Total (g)	Massa de UAl ₂
1,90	9,62	11,80 g

Fonte: D. B Domingues 2014 ⁵².

2. OBJETIVO

O objetivo deste trabalho é desenvolver e disponibilizar ao Brasil a tecnologia de fabricação de alvos de dispersão de $\text{UAl}_x\text{-Al}$ para produzir ^{99}Mo em reatores produtores de radioisótopos.

2.1. Objetivos Específicos:

- a) Sintetizar e caracterizar o UAl_2
- b) Desenvolver um processamento termomecânico e um tratamento térmico para consumir o UAl_2 .
- c) Definir os parâmetros necessários para fabricação e produção de miniplacas alvos.
- d) Dispor de uma metodologia de quantificação de fases
- e) Avaliar a cinética das reações de estado sólido envolvidas no processamento termomecânico.
- f) Aumentar o ganho produtivo na fabricação de placas produzidas por lote de laminação (patente requerida).
- g) Produzir alvos conforme especificação do reator IPEN-MB/01 (Unidade Crítica do IPEN) utilizando urânio enriquecido a 19,75 % no isótopo U-235.

2.2. Originalidade

Este trabalho resultou em uma inovação tecnológica onde foi desenvolvido um método para aumentar a produtividade da fabricação dos alvos em pelo menos 12 vezes. Dessa forma, um pedido patente de invenção foi requerido junto ao INPI (**BR 10 2014 032272 8**).

O mapeamento da composição do alvo durante o processamento termomecânico e o conhecimento da cinética das reações de estado sólido também constituem uma originalidade deste trabalho, pois essas informações não foram encontradas na literatura científica.

3. MATERIAIS E MÉTODOS

A tecnologia desenvolvida neste trabalho baseia-se na experiência adquirida no desenvolvimento e fabricação de placas combustíveis tipo MTR^{53,54} e em resultados obtidos na fabricação de placas contendo 45% em volume da fase físsil.⁵⁵ Este trabalho foi desenvolvido ajustando-se as etapas básicas do processo de fabricação atualmente adotado na produção de placas combustíveis. Para atender à especificação dimensional dos alvos foram desenvolvidas as metodologias adicionais necessárias, relacionadas ao controle da composição de fases pelo processamento termomecânico e aumento da produtividade.

3.1. Estratégia

Uma estratégia foi desenvolvida a fim de se alcançar os objetivos específicos propostos neste trabalho. Essas estratégias serão descritas a seguir:

- a) Caracterização do lingote através de análise de imagem e difração de raios x/Rietveld e EBSD-MEV.
- b) Caracterização da dispersão usando difração de raios x/ Rietveld e análise de imagem.
- c) Determinação da temperatura de laminação usando a técnica dilatométrica em modo contínuo.
- d) Estimativa do tempo de tratamento térmico através da dilatométrica em modo isotérmico, usando a temperatura determinada no ensaio contínuo.
- e) Laminação de alvos para validar os parâmetros térmicos determinados por dilatométrica.
- f) Laminação de núcleos individuais para garantir que os requisitos dimensionais especificados para o núcleo do alvo fossem atendidos.
- g) Laminação de múltiplos núcleos para verificar o atendimento à especificação.
- h) Fabricação de alvos com urânio enriquecido

Os parâmetros térmicos que foram usados no processamento termomecânico foram obtidos de análises de dilatométrica. Nessas análises as amostras foram constituídas da mesma composição da dispersão.

A exigência no controle de composição de fases no UAl_x presente no alvo exigiu a aplicação da técnica de difração de raios x com refinamento dos dados utilizando o método de Rietveld.⁵⁶ Esse método utiliza mínimos quadrados para ajustar o perfil calculado do difratograma com o perfil medido experimentalmente. A aplicação desse método possibilitou quantificar os teores de aluminetos no alvo final e também acompanhar as reações de estado sólido entre os aluminetos e a matriz de alumínio durante a fabricação. Dessa forma, foi possível definir o tempo de tratamento térmico necessário para consumir todo UAl_2 .

3.2. Múltiplos Núcleos

Quando se trata de fabricação de algum produto é importante considerar a produtividade do processo, que no presente trabalho consiste na fabricação de alvos. Para a produção de 1000 Ci semanais de Mo-99 prevista no RMB será necessário irradiar em torno de 1200 alvos anualmente. Torna-se, portanto, imperativo aumentar a produtividade, uma vez que o CCN não fabricará apenas os alvos para irradiação, mas também os elementos combustíveis (1000 placas combustíveis por ano) para o RMB. Nesse sentido, um método de fabricação inovador foi desenvolvido, objetivando aumentar a eficiência do processo produtivo tradicionalmente adotado para a fabricação desse tipo de alvo.

O aspecto inovador desenvolvido neste trabalho foi aumentar o número de núcleos que podem ser laminados em uma única placa. Para melhor exemplificar a inovação, toma-se como exemplo a montagem do conjunto para a laminação de placa combustível como mostrado na Figura 15 à esquerda. Para cada placa combustível existe um núcleo físsil, dessa forma cada núcleo é laminado por vez. Para os alvos de irradiação tem-se uma menor dimensão de seu núcleo físsil, então foi possível produzir múltiplos núcleos de irradiação em uma única placa, a partir de um único conjunto núcleo-moldura-revestimentos, como ilustrado na Figura 15 à

direita. Essa inovação tecnológica foi submetida ao INPI como um pedido de patente de invenção e aceita para análise possuindo o seguinte protocolo: **BR 10 2014 032272 8**.

Figura 15 - À esquerda; Núcleo alocado na cavidade da moldura para laminação da placa combustível. À direita; Múltiplos núcleos alocados nas cavidades da moldura para a laminação da placa alvo.

Fonte: Autor da tese

3.3. Alvos Com Urânio Enriquecido

Um total de 10 miniplacas com urânio enriquecido a 19,58 % no isótopo U-235 foram fabricadas e enviadas ao reator IPEN-MB/01 para validação de cálculos neutrônicos, fazendo parte da tese defendida por Douglas Borges Domingos em 2014 sob orientação do Dr. Antônio Teixeira (CEN).⁵²

3.4. Síntese do Dialumineto de Urânio - UAl_2

Os lingotes de UAl_2 foram preparados através da fusão de urânio metálico (natural e enriquecido) com alumínio metálico, utilizando um forno de indução eletromagnética de potência 15 kW. O urânio metálico natural usado na síntese dos lingotes (Fusão 1, 2 e 4) foi originado do mesmo lote, e possui um teor de urânio de

99%. O alumínio metálico utilizado foi da marca Alfaesar com pureza de 99% (referência 11067) na forma de pó compactado.

A proporção de urânio utilizada foi de 81,5 % p/p e a carga total (U^0 e Al^0) foi carregada em cadinho de zircônia estabilizado com magnésia. Antes da fusão, três purgas com vácuo de $5 \cdot 10^{-1}$ mbar e ventilação com argônio foram realizadas na câmara do forno. A fusão ocorreu em atmosfera de argônio e o material fundido foi vertido em uma lingoteira de cobre. Na Figura 16 estão ilustrados o carregamento da carga em cadinho de zircônia e os pedaços do lingote de UAl_2 obtidos após a fusão.

Figura 16 - À esquerda têm-se os materiais de partida, urânio metálico e alumínio metálico. À direita tem-se o lingote de UAl_2 obtido a partir da fusão dos precursores.

Fonte: Autor da tese.

3.5. Fabricação do Núcleo UAl_x -Al

Após a fusão, o lingote foi moído manualmente e teve sua granulometria separada por peneiramento, onde o pó com tamanhos de partículas menores que 44 μm foi denominado de “finos” e o pó contendo partículas com tamanhos entre 44 - 90 μm foi denominado de “faixa”. Esse procedimento foi feito em *glove-box* sob atmosfera de argônio devido ao caráter pirofórico do UAl_2 em forma de pó e também para evitar a oxidação do material.

3.6. Caracterização Físico-Química

3.6.1. Análise Química

O teor urânio no pó de UAl_2 foi determinado utilizando a técnica de titulação potenciométrica, e os teores de impurezas metálicas foram determinados por espectrometria de emissão ótica com plasma de argônio (ICP-OES). Os resultados apresentados para os teores de urânio e impurezas metálicas representam a média de três determinações independentes com seu desvio padrão.

3.6.2. Análise Física

A densidade do pó de UAl_2 foi medida utilizando a técnica de picnometria de hélio por meio do Micromeritics Accu Pyc 1330. Os resultados dos valores de densidade representam a média de três determinações independentes com seu desvio padrão.

3.7. Compactação do Briquete

A mistura de pós de UAl_2 e Al (metálico), correspondendo a 36 e 56 % em volume respectivamente, foi homogeneizada por uma hora utilizando um misturador modelo Turbula T2F. A dispersão foi compactada sob pressão de 5 t/cm^2 , para se obter um briquete com uma porosidade entre 5 e 8 %. A distribuição granulométrica do pó de UAl_2 no briquete foi de 80% em peso de partículas com granulometria denominada “faixa” e 20 % com granulometria denominada de “finos”. Após a compactação, os briquetes foram desgaseificados a uma temperatura de 250°C por 2 h em alto vácuo (5.10^{-5} mbar).

3.8. Difração de Raios x

Para coletar os dados de difração de raios x em amostras de pós e miniplacas, foi utilizado um difratômetro da marca Bruker, operando com radiação $\text{Cu-K}\alpha$ a 40 kV e 20 mA, com varredura de $0,02^\circ$ por 8 s. As informações de referência foram obtidas do Software Difrac-Eva V. 3.1 e as fases cristalinas foram

analisadas e quantificadas utilizando o método de Rietveld através do programa TOPAS V. 4-2. As fichas cristalográficas usadas foram extraídas do banco de dados ICSD (*Inorganic Crystal Structure Database*) registradas sob os números 42432 (Al), 58195 (UAl₂), 58196 (UAl₃), 240127 (UAl₄), 24223 (UO) e 647597 (UO₂).

As amostras provenientes das miniplacas foram preparadas cortando-se um pedaço do núcleo da miniplaca com dimensões de 20 x 20 mm e embutindo-os em resina metalográfica a frio. O revestimento foi então removido através de lixamento utilizando lixa com grana 240.

A difração de raios x foi usada para identificar e quantificar as fases presentes no pó de UAl₂ e na dispersão. Utilizando a Equação 1 que foi desenvolvida por Howard et al.⁵⁷, foi possível realizar a quantificação das fases utilizando o método de Rietveld. Através do refinamento de Rietveld extrai-se o fator de escala Rietveld e os parâmetros estruturais da célula unitária os quais são incorporados na equação proposta por Howard, Equação 1.

$$\% fase_i = \frac{S_i M_i V_i}{\sum_j S_j M_j V_j} \quad \text{Equação 1}$$

Onde S_i é o fator de escala Rietveld da fase i , M_i é a massa da célula unitária da fase i e V_i é o volume da célula unitária da fase i . O denominador da equação é o somatório de todas as fases j presentes na amostra.

O refinamento de Rietveld também foi aplicado ao sistema UAl₂-Al a fim de se quantificar as fases presentes na dispersão antes e depois do processamento termomecânico. Esse sistema (UAl_x-Al) apresenta um elemento de baixo número atômico (Al) misturado a um composto com elemento de elevado número atômico (⁹²U) e isso faz com que interação dos raios x com esse material sofra alterações significativas. Essas alterações decorrem do fato que o UAl₂ possui um coeficiente de absorção linear (μ) muito alto, em torno de 2100 cm⁻¹ quando comparado com o Al que possui esse mesmo coeficiente no valor de 130 cm⁻¹. Essa diferença implica que uma parte da partícula de UAl_x pode fazer “sombra” ao resto de seu próprio grão. Caso o tamanho dessa partícula seja comparável ao comprimento de absorção (*absorption length*) do composto ($1/\mu$) essa parte da partícula que está sendo irradiada inibirá todo potencial de difração do volume do grão. Como exemplo, temos

o $1/\mu$ para o UAl_2 é $4,7 \mu\text{m}$ de penetração dos raios x no material contrastado com $77 \mu\text{m}$ no Al. Esse fenômeno é conhecido como microabsorção, causado por heterogeneidade de absorções em nível granular (na partícula). Uma das consequências que podem ocorrer nesse fenômeno é a subestimativa da intensidade do composto de alta absorção e/ou superestimativa da intensidade do composto de baixa absorção, muito embora seja difícil de prever todos os efeitos ocasionados.⁶⁸

Em meados dos anos 40 Brindley⁵⁸ desenvolveu uma correção (ver Equações 2 e 3) que pode ser incorporada ao refinamento Rietveld a fim de corrigir ou minimizar o efeito de microabsorção. Essa correção leva em conta a diferença entre os coeficientes de absorção linear do analito e da amostra em si, além de considerar o tamanho médio das partículas que compõem a amostra em questão.

$$\% fase_i = \frac{\frac{S_i M_i V_i}{\tau_i}}{\frac{\sum_j S_j M_j V_j}{\tau_j}} \quad \text{Equação 2}$$

Onde τ_i é o fator de correção para absorção da partícula e é dada pela Equação 3:

$$\tau_i = \frac{1}{V_i} \int_0^{V_i} e^{-(\mu_i - \bar{\mu})x} dv_i \quad \text{Equação 3}$$

Onde V_i é o volume da partícula da fase i , μ_i é o coeficiente de absorção linear da fase i e $\bar{\mu}$ é coeficiente absorção linear médio da amostra e x é o caminho percorrido da radiação dentro partícula. Através de uma análise simplificada das equações 2 e 3 conclui-se que o fator de correção não altera o refinamento estrutural em si, apenas considera o fenômeno físico envolvido e que depende da diferença de coeficiente de absorção da amostra e do analito em questão.

3.9. Processamento Termomecânico

Após uma avaliação de diferentes projetos de passes, foi determinado que os núcleos fossem laminados utilizando seis passes a quente e dois passes a frio para chegar à espessura e comprimento de núcleo determinados pela especificação. Na Tabela 6 é mostrado o projeto de passes utilizado nesse trabalho.

Tabela 6: Projeto de passes adotados para laminação das miniplacas.

Passes a quente 1-6	Percentual de redução médio (%)	Espessura da placa (mm) $E_0 = 9,92 \text{ mm}$
1	29	7,04
2	26	5,20
3	25	3,90
4	28	2,81
5	21	2,21
6	24	1,69
7 (a frio)	6	1,58
8 (a frio)	2	1,55

Fonte: Autor da tese.

Importante ressaltar que no projeto de passes mostrado na Tabela 6 o percentual de redução sofre pequenas alterações de placa para placa devido às espessuras iniciais dos conjuntos diferirem entre si.

3.10. Microscopia Eletrônica

A microestrutura do briquete, do lingote e das miniplacas e a composição de fases foram investigadas por meio de microscopia eletrônica de varredura (imagem de elétrons retroespalhados e secundários), espectroscopia de energia dispersiva (EDS) e Difração de Elétrons Retroespalhados (EBSD) utilizando um microscópio da marca Philips modelo XL30 e também um microscópio da marca FEI Quanta 650 FEG. O software utilizado no processamento de dados de EBSD foi o AZtec da *Oxford Instruments*.

As amostras foram preparadas da mesma forma que descrita na seção 3.8, exceto ao fato de terem sido lixadas diminuindo-se a grana das lixas até 800 e posteriormente polidas em pasta de diamante com tamanho de partícula de 6 μm .

Para análises de EBSD as amostras foram lixadas e polidas com pasta de diamante com tamanho de partícula de 3 μm com um tempo de 15 min rotação de 10 rpm e carga de 3 lbs. Após esse procedimento as amostras foram submetidas a

um polimento final com sílica com tamanhos de partícula de 20 nm, por 15 min submetidas a uma carga de 3 lbs.

3.11. Análise de imagem

As análises de imagem foram feitas utilizando imagens da microscopia eletrônica de varredura, em modo de retroespalhamento. As imagens foram processadas utilizando os softwares Image J e Omnimet Enterprise Buehler. Um total de 8 imagens foram processadas para cada análise específica (lingote e dispersão).

3.12. Análise Térmica - Dilatometria

As análises dilatométricas foram realizadas utilizando um dilatômetro da marca SETARAM Setsys 1700 operando em modo contínuo (10 °C/min) e em modo isotérmico com uma rampa de 50 °C/min até alcançar a temperatura de 540°C. Os experimentos foram conduzidos em atmosfera de argônio. As pastilhas foram produzidas de forma a apresentarem a mesma composição e porosidade inicial da dispersão.

4. RESULTADOS E DISCUSSÕES

4.1. Caracterização do UAl_2

O pó de UAl_2 foi caracterizado por meio de medidas de densidade e teor de urânio. Na Tabela 7 são mostrados os valores de densidades e teores de urânio para amostras de quatro lingotes de UAl_2 obtidos por meios de quatro fusões.

Tabela 7 - Valores de densidade obtidos para os experimentos de fusão.

Amostras	Fusão 1	Fusão 2	Fusão 3*	Fusão 4
Densidade g/cm^3	$7,97 \pm 0,01$	$8,13 \pm 0,01$	$8,08 \pm 0,01$	$8,71 \pm 0,01$
Teor de urânio	$80,05 \pm 0,06$	$80,74 \pm 0,02$	$80,47 \pm 0,03$	$82,05 \pm 0,02$

Fonte: Autor da tese.

O valor de densidade do UAl_2 puro é reportado na literatura como sendo $8,14 \text{ g/cm}^3$ (ver Tabela 2). Segue então que as fusões e que as diferenças observadas entre os valores obtidos e o valor teórico de densidade são originadas devido à presença de UAl_3 que origina valores de densidade menores que $8,14 \text{ g/cm}^3$ (Fusões 1, 2 e 3) e para valores maiores tem-se a presença de urânio metálico (Fusão 4), como será mostrado adiante.

Levando em conta que o UAl_2 é formado por uma solidificação congruente entende-se pelo diagrama de fases, mostrado na Figura 4, que à direita da linha de composição do UAl_2 tem-se uma mistura de UAl_2 com U° e à esquerda da linha de composição tem-se uma mistura de UAl_2 com UAl_3 . Dessa forma, pode se esperar algum possível deslocamento de composição durante a fusão dependendo da composição da carga. Por exemplo, durante o aquecimento pode ocorrer uma perda maior de Al por evaporação, pois esse tem um ponto de fusão menor que o urânio, diminuindo assim o teor de Al e conseqüentemente uma fração de urânio metálico pode se formar. Por outro lado, se houver uma oxidação do urânio durante a fusão (devido às condições de atmosfera do forno, por exemplo) tem-se um deslocamento para a esquerda do diagrama formando uma fração de UAl_3 .

* A amostra denominada de Fusão 3 foi feita com urânio enriquecido a 19,58 % no isótopo U-235 para a fabricação dos alvos para validação de cálculos neutrônicos.

A obtenção de um intermetálico puro depende das condições experimentais de atmosfera durante a fusão, da pureza dos percussores e do método utilizado para síntese. No trabalho desenvolvido por H. J. Eding *et. al.*⁵⁹ foi demonstrada a possibilidade de serem sintetizados intermetálicos de urânio de alta pureza, entre eles os aluminetos de urânio. Entretanto, os autores utilizaram nesse trabalho reações de estado sólido entre alumínio em pó e urânio metálico hidretado, ambos submetidos a um longo período de tratamento térmico em um sistema experimental complexo de fornos de alto vácuo e *glove boxes*. Do ponto de vista produtivo e também de pesquisa já é conhecida a dificuldade de se obter um composto intermetálico puro e que sempre haverá uma quantidade residual dos compostos a esquerda e a direita do diagrama de fases do composto em questão, como reportado por T. C. Wiencek⁶⁰. De fato, como foi observado neste trabalho, em todas as sínteses de UAl_2 observou-se tanto UAl_3 (esquerda do diagrama) quanto compostos ricos em urânio (direita do diagrama). Todavia, do ponto de vista prático e produtivo essas impurezas não acarretaram dificuldades técnicas na execução desse trabalho.

Os teores de impurezas metálicas estão sumarizados nas Tabelas 8 e 9. Na Tabela 8 observa-se um teor mais elevado de estanho em relação às outras impurezas, e isso se deve ao fato de que urânio metálico (enriquecido) utilizado na síntese do UAl_2 foi proveniente do UF_4 , esse é sintetizado por meio da redução do UO_2F_2 com cloreto estanoso em meio aquoso. Dessa forma o UF_4 sintetizado pela rota aquosa carrega um teor residual de estanho e esse se transfere para o urânio metálico e para UAl_2 sintetizado. Os lingotes provenientes das fusões 1, 2 e 4 (urânio natural) foram sintetizados utilizando o urânio metálico de um mesmo lote. Para o lingote sintetizado utilizando urânio enriquecido foi necessária a determinação dos teores de lantanídeos, pois esses apresentam uma maior secção de choque de absorção de nêutrons e esses teores influenciam nos cálculos neutrônicos dos alvos fabricados com urânio enriquecido. Como os alvos feitos com urânio natural não foram usados para validação de cálculos neutrônicos e nem foram irradiados, os teores de lantanídeos não foram determinados.

Tabela 8 - Teores de impureza para o lingote feito com urânio enriquecido (Fusão 3).

Elemento	Teor (ppm)	Elemento	Teor (ppm)	Elemento	Teor (ppm)
Li	< 0,1	Co	<0,4	Sm	< 0,4
B	< 0,4	Ni	16,6 ± 0,2	Eu	< 0,1
Mg	1,7 ± 0,1	Cu	9,4 ± 0,2	Gd	< 0,1
Si	< 3,0	Zn	2,3 ± 0,1	Dy	< 0,2
Ca	4,4 ± 0,5	Mo	< 3,0	Ti	0,96 ± 0,05
V	3,8 ± 0,1	Cd	< 0,1	Ta	< 0,1
Cr	3,1 ± 0,2	Ba	< 0,2	W	< 0,4
Mn	16,3 ± 0,1	Pb	< 6,0		
Fe	64 ± 1	Sn	911 ± 45		

Fonte: Autor da tese.

Tabela 9 - Teores de impureza para o lingote feito com urânio natural (Fusões 1, 2 e 4).

Elemento	Teor (ppm)	Elemento	Teor (ppm)
Li	< 0,1	Co	<0,4
B	< 0,4	Ni	34,5 ± 0,6
Mg	2,3 ± 0,1	Cu	37,5 ± 0,5
Si	80,9 ± 0,5	Zn	2,4 ± 0,1
Ca	< 2,0	Mo	< 3,0
V	4,6 ± 0,1	Cd	< 0,1
Cr	13,7 ± 0,2	Ba	< 0,2
Mn	119 ± 0,1	Pb	< 6,0
Fe	185 ± 4	Sn	127 ± 2

Fonte: Autor de tese.

Foram obtidas imagens do lingote de UAl_2 natural (Fusão 2) e enriquecido (Fusão 3) utilizando microscopia eletrônica de varredura em modo retroespalhado conforme mostrado na Figura 17. A obtenção de imagens utilizando elétrons que são retroespalhados da amostra é muito útil na caracterização do lingote de UAl_2 , pois através do contraste em número atômico (Z) pode, se identificar as fases presentes em diferentes tons de cinza.

É possível observar em ambas as imagens a formação do UAl_2 como fase predominante sendo mostrada em tom de cinza mais claro e a fase minoritária, UAl_3 , que é formada durante a solidificação da fase líquida residual nos contornos de grão

do UAl_2 . Essa fase é mostrada em tom de cinza mais escuro, conforme indicado na Figura 17.

Figura 17: Microscopia eletrônica de varredura em modo retroespalhado dos lingotes de UAl_2 natural (Fusão 2) e enriquecido (Fusão3).

Fonte : Autor da tese.

Inclusões em tons de cinza ainda mais claros quando comparado ao UAl_2 podem ser percebidas em ambas as imagens. Devido ao modo de microscopia empregado (retroespalhamento) pode-se inferir que essas inclusões são provenientes de fases mais densas que o UAl_2 . Para confirmar essas atribuições os espectros de energia dispersiva de raios-x (EDS) foram coletados de cada região separadamente, conforme mostrado na Figura 18. As análises semiquantitativas provenientes das regiões atribuídas ao UAl_2 , UAl_3 e óxidos (Figura. 18 à esquerda) confirmam as atribuições feitas nas imagens obtidas com elétrons retroespalhados e que a região em tom de cinza ainda mais claro surge devido a presença de óxidos UO/UO_2 como pode ser visto no espectro mostrado na Figura.18.

Figura 18 - À esquerda imagem de elétrons secundários da amostra Fusão 2 com as respectivas regiões onde foram coletados os espectros de EDS (à direita).

Fonte: Autor da tese.

Na Figura 19 são mostradas as imagens resultantes da análise de difração de elétrons retroespalhados (EBSD) da amostra proveniente da Fusão 2. Mais informações sobre análises de EBSD podem ser encontradas nas referências^{61,62}. Durante a análise de EBSD foram obtidas imagens de elétrons secundários (Figura 19 A) para selecionar a região de interesse. A partir dessa escolha, foram coletados os padrões das linhas de Kikuchi, que após processamento matemático (transformada de Hough), possibilitaram a obtenção da imagem de contraste de banda e a formação do mapa de orientação cristalina, também conhecido como figura de polo inversa. Na Figura 19 B é mostrada a imagem de contraste de banda que revela a microestrutura do UAl₂. É possível observar os contornos de grãos onde a indexação dos planos cristalinos ocorre com uma qualidade inferior em relação ao grão, isto é, o padrão das linhas de Kikuchi não é bem definido nessas regiões, devido às descontinuidades da rede cristalina presentes nos contornos de grãos⁶³. Com isso os contornos de grãos ficam mais escuros em relação à estrutura cristalina do grão, dessa maneira a microestrutura é revelada, mostrando inclusive a fase UAl₃.

presente nos contornos de grãos. Importante mencionar que a imagem de contraste de banda é um índice de qualidade dos padrões das linhas de Kikuchi que são derivados da transformada de Hough e descrevem a intensidade média das bandas de Kikuchi com relação à intensidade total.⁶⁴

Figura 19: Micrografias eletrônicas provenientes da análise de Difração de elétrons retroespalhados (EBSD). A- Imagem de elétrons secundários. B- imagem de contraste de banda, revelando a fase UAl_3 solidificada nos contornos de grãos. C e D- Mapa de orientação cristalográfica em relação às coordenadas da amostra (superior à direita).

Fonte: Autor da tese.

Na Figura 19 (C e D) são mostradas as imagens de orientação cristalográficas (figuras de polo inversas) da imagem B. A interpretação das figuras de polo inversas mostram os planos cristalinos perpendiculares ao eixo de designação das imagens conforme mostrado na parte superior à direita da Figura 19. Um aspecto interessante que vale ser comentado é com relação à orientação cristalográfica preferencial (plano [011]) que é observada na amostra em relação ao eixo z (Figura 19 C), conforme mostrado na parte superior à direita da Figura 19. Como a amostra se trata de um bruto de fusão a orientação preferencial pode ter se originado no momento do resfriamento na lingoteira. Esse fenômeno é reportado por D. Walton et al.⁶⁵ que descreve que no momento do resfriamento ocorre orientação cristalográfica na parte do lingote chamada de zona colunar, que é a região situada entre a camada de lingote que está em contato direto com parede da lingoteira e a região central do lingote. A orientação ocorre, pois os grãos começam a crescer de fora para dentro na direção da troca de calor durante o resfriamento.

A identificação das fases UAl_3 e óxidos, mostradas na imagem de contraste de banda foi realizada utilizando informações provenientes das imagens de elétrons retroespalhados/secundários. Apenas a fase UAl_2 foi identificada com sucesso por EBSD, e as demais fases UAl_3 ($a = 4,27 \text{ \AA}$), UO ($a = 4,95 \text{ \AA}$) e UO_2 ($a = 5,47 \text{ \AA}$) não foram diferenciadas por EBSD, provavelmente por possuírem estruturas cristalinas similares, ambas as fases são cúbicas, tendo seus parâmetros de rede diferindo em apenas entre 9-16 % entre elas. Diferentemente do UAl_2 que apesar de possuir estrutura cúbica seu parâmetro de rede ($a = 7,76 \text{ \AA}$) é bem maior que as demais fases.

Dessa forma, a diferença dessas fases (UAl_3 , UO e UO_2) em termos das linhas de Kikuchi ocorre apenas na largura dessas linhas o que dificulta para o software distinguir os padrões de difração de elétrons dessas fases. Alguns trabalhos na literatura^{62,66} reportam dificuldade de diferenciação de fases por EBSD que possuem estruturas cristalinas similares. Um desses trabalhos foi feito por M. M. Nowell e S. I. Wright⁶⁶ que mostraram que o uso da técnica de EBSD falha para diferenciação de fases cristalinas cúbicas similares, mas que a combinação com análises de EDS pode ajudar na resolução desse tipo de problema. Uma análise

mais detalhada utilizando outros recurso do software AZtec⁶⁷ pode ajudar na elucidação dessas fases.

Na Figura 20 é mostrada a diferenciação de fases da imagem da Figura 19. Nessa Imagem é possível perceber que o software trata as fases UAl_3 e óxidos como uma única fase, colorindo-as de amarelo e em vermelho a fase UAl_2 .

Figura 20: Mapa de composição de fases (EBSD) da região mostrada na Figura 19.

Fonte: Autor da tese.

Apesar da técnica de EBSD falhar, em um primeiro momento, em identificar as fases presentes no UAl_2 , a técnica forneceu uma análise quantitativa da fração volumétrica de UAl_2 como sendo 87 %, valor igual ao que foi obtido por análise de imagem de elétrons retroespalhado. Esses resultados serão apresentados adiante.

Na Figura 21 é mostrado o difratograma de raios-x das amostras em pó (Fusão 2 e 4) assim como o refinamento das fases e quantificação de suas frações. A partir do difratograma mostrado na Figura. 21 (Fusão 2) foram identificadas as fases UAl_2 , UAl_3 e UO_2/UO em concordância com os dados obtidos por MEV-EDS (Figura 17). Após a identificação das fases, foi feito o refinamento a fim de quantificá-las. Tem-se para esse lingote (Fusão 2) mais de 85 % de UAl_2 seguidos de

aproximadamente 10 % de UAl_3 e pequenas quantidades de óxidos. Com relação ao lingote denominado Fusão 4 foi identificada a fase principal com sendo UAl_2 e as fases minoritárias como sendo urânio metálico e óxido de urânio.

Figura 21: Difratograma do pó de UAl_2 com identificação e quantificação das fases identificadas.

Fonte: Autor da tese.

Estão presentes na Figura 21 as estimativas do desvio padrão ($\sigma(p_j)$). Essa incerteza decorre naturalmente das simulações que usam o método dos mínimos quadrados e é calculada a partir do inverso da matriz de mínimos quadrados $[A_{ij}^{-1}]$.⁶⁸ A Equação 4 mostra que a incerteza de um parâmetro p_j também

depende da convergência do refinamento (R_{wp}) e da qualidade dos dados experimentais, estatística de aquisição (R_{exp}).

$$\sigma(p_j) = [A_{jj}^{-1}]^{1/2} \frac{R_{wp}}{R_{exp}} \quad \text{Equação 4}$$

O desvio padrão de estimativa só apresenta significado quando o refinamento está correto do ponto de vista estrutural e quando o refinamento foi completamente minimizado. A avaliação da qualidade de um refinamento de Rietveld depende de análises que são feitas em vários parâmetros que são calculados na simulação, como por exemplo, a avaliação da diferença entre o difratograma experimental e o simulado, dos parâmetros de rede calculados, da densidade calculada para as estruturas e do também do χ^2 ⁶⁸. Considera-se também que com a finalidade de quantificação a minimização de χ^2 não é tão relevante quando comparado a um refinamento de estrutura onde deve-se minimizar tanto o R_{wp} quanto o R_{exp} .⁶⁸

Além da difração de raios-x, foram feitas análises de imagem do lingote de UAl_2 a fim de se quantificar os percentuais das fases presentes no lingote. É mostrada na Figura 22 uma imagem de microscopia eletrônica de varredura e seu processamento para o cálculo das frações em área.

Figura 22: À esquerda; micrografia eletrônica de varredura do lingote de UAl_2 (Fusão 2). À direita tem-se o processamento dessa imagem. A área colorida em verde, azul, vermelho e amarelo representam as frações de UAl_2 , UAl_3 , UO e UO_2 respectivamente.

Fonte: Autor da tese.

Na Tabela 10 estão sumarizados os valores de quantificação de fases por análise de imagem e DRX-Rietveld. Observa-se uma boa concordância nos teores de fases determinados por ambas as técnicas, mostrando que tanto a análise de imagem, quanto DRX-Rietveld podem ser utilizadas para quantificar as fases presentes no lingote de UAl_2 . Vale mencionar que a fração volumétrica do UAl_2 obtida por análise de imagem corresponde a 88 % e esse valor está em concordância com a quantificação da fração volumétrica do UAl_2 obtida por EBSD que também determinou 87% v/v para o UAl_2 .

Tabela 10: Comparativo de metodologias para quantificar as fases existentes no lingote de UAl_2 .

Fases/Método	Análise de imagem (% p/p)	Rietveld (% p/p)
UAl_2	$88,3 \pm 1,6$	$87,1 \pm 0,3$
UAl_3	$10,0 \pm 1,2$	$10,2 \pm 0,3$
$\text{UO}_2/$	$0,8 \pm 0,3$	$1,2 \pm 0,9$
UO	$1,5 \pm 0,4$	$1,6 \pm 0,1$

Fonte: Autor da tese.

4.1.1. Quantificação da Dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$.

Na Figura 23 é mostrado o difratograma da dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$ com a identificação e quantificação das fases presentes levando-se em conta a correção de microabsorção.

O refinamento deste difratograma convergiu para valores de $\chi^2 = 1,82$ mostrando uma boa concordância entre os dados experimentais e o calculado pelo método. Além desse indicativo numérico a qualidade do refinamento pode também ser avaliada graficamente pela diferença entre o difratograma experimental e o simulado conforme mostrado na Figura 23.

Figura 23 - Difratoograma da dispersão UAl_x-Al com refinamento de Rietveld. Na parte superior à direita é mostrada quantificação levando em conta a correção de Brindley.

Fonte: Autor da tese.

Na Tabela 10 são mostrados os dados de quantificação das fases com e sem a correção de Brindley juntamente com os valores nominais. A fim de tornar a avaliação mais cognoscível os teores de UAl_2 , UAl_3 e óxidos foram apresentados como uma soma sendo denominados de aluminetos.

Existe uma diferença acentuada entre as quantidades das fases calculadas sem correção e com correção quando comparadas aos valores nominais conforme é mostrado na Tabela 11. Dessa forma, utilizando a correção de Brindley consegue-se obter uma boa aproximação dos valores nominais das fases com desvio menor que 1%.

Tabela 11 - Resultados de quantificação de fases da dispersão UAl_x-Al com e sem correção de micro absorção.

Método /Teores	Aluminetos (%)	Al (%)
Nominal (pesado)	72,54	27,46
Com Correção	73,24	26,76
Desvio	0,7	-0,8
Sem correção	41,47	58,53
Desvio	31,07	31,07

Fonte: Autor da tese.

Foram também quantificadas as fases dos aluminetos na matriz de alumínio por meio de análise de imagem. Na Figura 24 é apresentada uma imagem típica de microscopia eletrônica processada. A cor azul clara foi usada para identificar a fase de UAl_2 , a amarela para identificar a fase UAl_3 , o azul escuro para a fase mais densa (UO/UO_2) e a cor vermelha para identificar a matriz de alumínio. Os teores dessas fases estão sumarizados na Tabela 12 comparados com os valores obtidos por meio da quantificação por DRX-Rietveld.

Tabela 12 – Comparativo de metodologias para quantificar as fases existentes na dispersão $UAl_2^{\dagger}$ -Al

Fases/Método	Análise de imagem (% p/p)	Rietveld (% p/p)
UAl_2	$42,5 \pm 4,5$	75,73
UAl_3	$56,3 \pm 4,5$	21,59
UO/UO_2	$1,26 \pm 0,5$	2,68

Fonte: Autor da tese

Figura 24 - À esquerda, imagem processada pelo analisador de imagens, onde o vermelho representa a matriz de alumínio, o azul claro a fase UAl_2 , o amarelo a fase UAl_3 e o azul escuro a fase UO . À direita, imagem não processada. Os círculos vermelhos ilustram regiões de fragmentação das partículas de UAl_2 sendo processadas como sendo UAl_3 .

Fonte: Autor da tese.

[†] A amostra de UAl_2 que foi utilizada neste ensaio foi proveniente do lingote da Fusão 1.

Os desvios observados entre os teores de aluminetos na Tabela 12 podem ser explicados considerando a fragmentação das partículas de UAl_2 . Ocorre que durante a moagem do lingote e compactação há fragmentação das partículas de UAl_2 , ocasionando diferenças de alturas nas regiões da fragmentação que resultam numa quantidade menor de elétrons retroespalhados que chegam ao detector, diminuindo assim o brilho nessas regiões, resultando num tom de cinza mais escuro nas bordas das partículas de UAl_2 e nos seus fragmentos. Esse tom de cinza mais escuro na imagem obtida por microscopia eletrônica é confundido pelo analisador de imagens como sendo UAl_3 , como ilustram as regiões assinaladas por círculos vermelhos na Figura 24 e melhor observado na Figura 25.

Figura 25 - Exemplo de superestimativa da fração em UAl_3 devido ao sombreamento das partículas de UAl_2 . Em verde a fase UAl_2 , em azul a fase UAl_3 , em lilás a matriz de alumínio.

Fonte: Autor da tese.

Desse modo, quando a imagem é processada pelo analisador, este distingue as bordas das partículas de UAl_2 como sendo UAl_3 , o que leva à uma concentração subestimada da fração de UAl_2 e superestimada da fração de UAl_3 como ilustrado na Figura 25. É importante mencionar que também ocorre fragmentação das partículas de UAl_3 ocasionando o mesmo fenômeno descrito para o UAl_2 , entretanto a diminuição do brilho proveniente das partículas de UAl_3 não ocasiona o mesmo erro que no caso do UAl_2 principalmente porque não há uma fase

menos densa que o UAl_3 para ser distinguida pelo analisador, exceto a matriz de alumínio, mas essa possui um contraste muito diferente do UAl_3 . Inclusive, vale destacar que a determinação da fração volumétrica de alumínio por análise de imagem forneceu um valor médio de 55 % v/v que é referente a 50% de matriz de alumínio (nominal) e aproximadamente 5 % de poros, os quais não são distinguíveis na imagem de elétrons retroespalhados. Apesar de quantificar a matriz de alumínio corretamente a técnica de análise de imagem não se mostrou apropriada para quantificar os aluminetos presentes, portanto, para o desenvolvimento das etapas de tratamento térmico, a difração de raios-x/Rietveld foi usada como técnica padrão de quantificação de fases.

4.2. Desenvolvimento do Tratamento Térmico

4.2.1. Dilatometria

Os ensaios de dilatometria foram feitos a fim de se determinar o tempo e temperatura necessários para consumir todo o UAl_2 presente na dispersão e dessa forma usar esses parâmetros no processamento termomecânico final do alvo, otimizando assim os parâmetros de fabricação.

No gráfico da Figura 26 é possível observar o início de um evento que ocorre em torno de 540 °C, onde o perfil da curva modifica-se com uma dilatação acentuada acompanhada de um aumento abrupto da taxa de dilatação (curva em vermelho) atingindo um máximo em torno de 570 °C.

Figura 26 - Curva de dilatometria da dispersão $\text{UAl}_2^\dagger$ -Al, com sua respectiva derivada.

Fonte: Autor da tese.

[†] O UAl_2 utilizado nos ensaios de dilatometria foi proveniente do lingote denominado de Fusão 4

Esse aumento abrupto da taxa de dilatação é atribuído às reações de estado sólido entre UAl_2 ($\rho = 8,14 \text{ g/cm}^3$) e a matriz de alumínio que levam a um aumento de volume, devido a formação de aluminetos de menores densidades (UAl_3 $\rho = 6,8 \text{ g/cm}^3$ e UAl_4 $\rho = 6,01 \text{ g/cm}^3$). Esse comportamento está de acordo com o que foi observado em trabalhos descritos pela literatura^{21,69}. Um desses trabalhos foi realizado por Nazaré *et al.*²¹ que mostrou que a reação entre o UAl_2 e alumínio é muito lenta abaixo de 500°C .

Desta análise foi estabelecida a temperatura de 540°C para ser empregada no processamento termomecânico das miniplacas alvo com o objetivo de maximizar a velocidade de consumo do UAl_2 . Não seria possível estabelecer para a laminação uma temperatura maior, ainda que o máximo da taxa de dilatação aconteça em 570°C , pois existe o compromisso de consumir o UAl_2 , evitar a oxidação da dispersão presente na miniplaca e por último minimizar os defeitos de final de núcleo (*dogbone*) os quais podem se acentuar em temperaturas maiores. Além disso, como o material da moldura e dos revestimentos usados na laminação dos alvos é a liga de alumínio 6061 e essa possui a linha *solidus* em 585°C ⁷⁰, definitivamente não seria possível laminar os alvos em uma temperatura tão próxima da linha *solidus*, pois o conjunto não possuiria resistência mecânica suficiente para ser manipulado e nem laminado.

Para estimar o tempo de processamento termomecânico incluindo o tempo de tratamento térmico foi realizado um ensaio isotérmico na temperatura de 540°C . Na Figura 27 é mostrada uma curva dilatométrica da dispersão $\text{UAl}_2\text{-Al}$ em modo isotérmico.

Figura 27 - Curva dilatométrica da dispersão UAl_2 -Al em modo isotérmico.

Fonte: Autor da tese.

É possível observar no gráfico da Figura 27 que a curva de dilatação apresenta dois perfis de crescimento, um perfil de crescimento em potência antes de 10h e um perfil de crescimento linear de 10 horas em diante onde a derivada permanece constante. A curva com perfil de crescimento em potência foi ajustada usando a função $y = 2,41x^{0,69}$ fornecendo um coeficiente de correlação de 0,98. A função em potência é usada para descrever a difusão entre urânio e alumínio.^{71, 72} A curva com crescimento linear foi ajustada com a função $y = 0,28x + 9,24$ fornecendo um coeficiente de correlação de 0,99.

Para determinar as reações de estado sólido envolvidas em cada perfil, um segundo ensaio foi realizado nas mesmas condições experimentais, mas com interrupção da análise em 10h. A pastilha utilizada nesse segundo ensaio foi então moída e analisada por DRX-Rietveld fornecendo a composição de fases após 10 horas de aquecimento isotérmico (ver Figura 27). Dispondo da composição de fases

inicial e final (depois de 10h que aquecimento) foi possível discriminar as reações de estado sólido ocorridas em cada parte da curva. Observa-se que no início do ensaio (1,5 h) ocorre um aumento abrupto da dilatação e analisando a curva derivada nota-se que é um evento rápido. Esse evento pode ser atribuído tanto à reação entre o urânio metálico e o Al formando UAl_2 , quanto a reação de partículas finas de UAl_2 (granulometria $< 44 \mu m$) com alumínio da matriz formando UAl_3 . A partir de 2h de aquecimento observa-se uma dilatação que obedece a lei de crescimento em potência já descrito anteriormente. Essa dilatação pode ser atribuída principalmente à reação das partículas de UAl_2 com a matriz de alumínio originando UAl_3 , o qual por sua vez começa a reagir com o Al da matriz originando UAl_4 , que foi identificado e quantificado após 10 h de aquecimento. Portanto, nas primeiras 10h de aquecimento tem-se o consumo do UAl_2 como a principal reação responsável pelo perfil de crescimento em potência. É importante mencionar que o teor de UAl_4 após 10 h de análise é um percentual próximo do percentual de “finos” presentes na dispersão, sugerindo que de fato a fração de finos reage primeiro que a fração de partículas na “faixa”.

O perfil de crescimento linear é dominado majoritariamente pelo consumo do UAl_3 produzindo UAl_4 , uma vez que após 10h de ensaio resta apenas um teor remanescente de apenas 5 % de UAl_2 . Esse resultado também concorda com os obtidos por A. K, Chakraborty *et al.*⁷³ que mostraram por dilatometria que a reação UAl_3 -Al apresenta-se como uma dilatação com perfil linear tal como mostrado no gráfico da Figura 27. Os resultados obtidos combinando dilatometria e DRX-Rietveld mostram que o consumo de UAl_2 é mais rápido que o UAl_3 , estando em concordância com os resultados publicados na literatura.^{21,69,74} De fato, o consumo do UAl_3 ocorre com uma velocidade muito menor que o consumo do UAl_2 , sendo observado que mesmo após 40 h de análise a reação ainda não tinha terminado e esse comportamento está em consonância com estudos publicados por N. V. Chandra Shekar *et al.*⁷⁵, que mostraram que a reação entre o UAl_3 e Al pode demorar até seis semanas. Do ensaio isotérmico pode-se concluir que o tratamento térmico durante a laminação pode ter duração de até 10h.

4.2.2. Processamento Termomecânico – Evolução de Fases

Com objetivo de verificar o tempo necessário para consumir o UAl_2 no caso real de fabricação por meio do processamento termomecânico, foi avaliada a evolução das fases durante uma laminação com duração total de tratamento térmico de 9h com uma placa laminada. Os teores de aluminetos encontrados na placa estão descritos na Tabela 13.

Tabela 13 - Fração de aluminetos presentes na dispersão após 9h de tratamento térmico a 540 °C

Aluminetos	UAl_2	UAl_3	UAl_4
Teor de aluminetos (%)	1	8	91

Fonte: Autor da tese

Nesse tratamento térmico feito após a laminação não foram observados picos de difração referentes ao UAl_2 , embora o refinamento feito mostrou um teor residual de aproximadamente 1% de UAl_2 . É importante mencionar que esse valor não tem significado físico, pois não foram identificados picos de difração da fase UAl_2 . Dessa maneira foi determinado que a ausência de pico da fase UAl_2 no difratograma atesta para o consumo dessa fase durante o tratamento térmico.

Nota-se uma grande diferença nos teores de aluminetos presentes na placa laminada com 9h de tratamento térmico e na pastilha com 10h de tratamento térmico (dilatometria). Outro aspecto interessante de ser discutido é que com 9 h de tratamento térmico a fase UAl_3 foi quase totalmente consumida, restando apenas uma fração de 8 %. Essa diferença pode ser explicada considerando os fenômenos associados a cada experimento (dilatometria e laminação). No ensaio dilatométrico isotérmico a pastilha de $\text{UAl}_2\text{-Al}$ é submetida unicamente a aquecimento, diferentemente do processamento termomecânico onde além do aquecimento ocorre uma adição de energia mecânica ao sistema quando a placa é deformada nos cilindros de laminação, forçando as partículas uma contra as outras e aumentando, assim, a velocidade de difusão do Al nas partículas de UAl_2 . Além disso, juntamente com a conformação mecânica ocorre também a fragmentação de partículas de UAl_2 ,

pois esse é frágil, o que leva a um aumento de área superficial disponível para a difusão do Al. Todos esses fatores, fazem com que as reações de estado sólido na laminação ocorram com uma velocidade muito maior quando comparada à um sistema submetido ao ensaio de dilatométrica.

Como uma das metas a serem atingidas é o consumo do UAl_2 e não necessariamente o consumo do UAl_3 foi então planejado um novo tratamento térmico com duração de 7 horas. Na Tabela 14 encontram-se os teores de aluminetos presentes nas placas laminadas. Com o objetivo de mostrar a reprodutibilidade do tratamento térmico foram então laminadas três placas, sendo uma delas (Placa 2) analisadas por DRX em três regiões diferentes ao longo do núcleo e nas outras duas placas (Placa 1 e 2) foi analisada uma amostra de cada placa. Na Tabela 14 são mostrados os teores de aluminetos remanescentes nas placas laminadas após 7h de tratamento térmico.

Tabela 14 - Teores de aluminetos remanescentes nas placas laminadas após 7 h de tratamento térmico a 540 °C

Placas	UAl_2 (%)	UAl_3 (%)	UAl_4 (%)
Placa 2 região 1	0	30,95	69,05
Placa 2 região 2	0	31,35	68,67
Placa 2 região 3	0	34,42	65,59
Placa 1	0	33,88	66,11
Placa 3	0	28,71	71,28

Fonte: Autor da tese

Analisando os teores de aluminetos expressos na Tabela 14, pode-se calcular a dispersão desses valores utilizando o parâmetro t de *Student* para um limite de confiança de 95 % obtendo-se dessa maneira a média da população com desvio padrão na mesma placa (Placa 2) como sendo de 32 ± 5 para o teor de UAl_3 e 68 ± 5 para o teor de UAl_4 . Considerando as três placas (na placa dois foi considerada a região 2), a média da população e os desvios padrão calculados com 95 % de confiança foram 31 ± 6 e 69 ± 6 para o UAl_3 e UAl_4 respectivamente.

Considerando que houve uma reprodutibilidade das frações de aluminetos nas placas, o tratamento térmico de 7 h foi adotado para laminação das placas alvos como procedimento padrão de fabricação dos alvos, pois garantiu que todo UAl_2 fosse consumido durante esse tempo de tratamento térmico a 540 °C.

Em seguida foi estudada a cinética de consumo do UAl_2 e evolução dos demais aluminetos ao longo do processamento termomecânico. Para isso o tempo de tratamento térmico foi distribuído ao longo dos passes de laminação e após cada passe, uma placa foi retirada para quantificação das fases. Os resultados são mostrados no gráfico da Figura 28. Nesse experimento as placas foram recozidas por uma hora antes do primeiro passe e recozidas entre passes por 35 min. Após o sexto passe a placa foi submetida a um tratamento térmico de 3h, onde na Figura 28 está denominado “7° passe” totalizando 7h de tratamento térmico.

Figura 28: Evolução do teor de aluminetos durante a laminação a 540 °C.

Fonte: Autor da tese.

Ao analisar a curva mostrada na Figura 28 pode-se constatar que o consumo quase completo de UAl_2 (teor residual de 0,6 %) ocorre no 6° passe após um tempo de 4 h e que as três horas restantes de tratamento térmico consumiram o teor residual de UAl_2 e também parte do UAl_3 , de forma que as concentrações finais de UAl_3 e UAl_4 foram aproximadamente 30 e 70 % respectivamente. É possível notar que o consumo do urânio metálico inicial (5%) ocorre até o segundo passe e que a formação do UAl_4 é mais lenta em concordância com o comportamento observado no ensaio isotérmico de dilatométrica. Um tempo de tratamento térmico um pouco maior que o necessário para consumir o UAl_2 garante que independentemente da composição inicial, todo UAl_2 seja consumido, não afetando a etapa de dissolução dos alvos que ocorre após a irradiação.

Na Figura 29 são mostrados os difratogramas obtidos das placas retiradas para análise durante o processamento termomecânico com o tratamento térmico distribuído conforme Figura 28. Para fins ilustrativos apenas uma parte do difratograma é apresentado na Figura 29. Ao longo dos passes de laminação o UAl_2 é consumido e tem seus picos de difração (a exemplo $2\theta = 19,80^\circ$) sendo suprimidos, enquanto que o UAl_3 e UAl_4 são formados apresentando seus picos de difração (a exemplo $2\theta = 20,69^\circ$ para o UAl_3 e para UAl_4 $2\theta = 15,59^\circ$).

Figura 29 - Evolução dos picos de difração dos aluminetos ao longo da laminação.

Fonte: Autor da tese

Na Figura 30 estão ilustradas micrografias eletrônicas obtidas com elétrons retroespalhados para amostra da placa laminada e tratada termicamente por 7h a 540 °C. Nessas micrografias não é possível identificar a fase UAl_2 . Os tons de cinza dessa imagem são referentes à presença de UAl_3 (tom mais claro), UAl_4 (tom mais escuro), as inclusões de óxidos aparecem na cor branca e a cor preta de fundo representa a matriz de alumínio, corroborando com os resultados obtidos por difração de raios x. Nessas micrografias é possível observar a fragmentação que ocorre nas partículas dos aluminetos, o que acelera a evolução de fases.

Figura 30 - Micrografias eletrônicas da dispersão laminada e tratada termicamente por 7h a 540°C. O tom de cinza mais claro indica a presença de UAl_3 e o tom de cinza mais escuro a presença de UAl_4 . À esquerda imagem de menor magnificação e à direita imagem de maior magnificação.

Fonte: Autor da tese.

4.3. Processamento Termomecânico

O desenvolvimento do processamento termomecânico para atender a especificação do alvo foi dividido em duas partes: a primeira parte tratou da laminação de núcleos individuais, a fim de se avaliar o alongamento do núcleo e os defeitos terminais, enquanto que a segunda parte tratou da aplicação de uma inovação visando a laminação simultânea de múltiplos núcleos, e também avaliação dos defeitos terminais nesse caso.

4.3.1. Núcleos individuais

Para avaliar a assertividade do projeto da matriz de compactação, pois suas dimensões influenciam nas dimensões finais do núcleo, foram laminados 3 núcleos individuais a quente e a frio e suas dimensões finais (largura, comprimento e espessura) foram determinadas

Nas Figuras 31 e 32 são mostrados escaneamentos de raios-x das placas laminadas, permitindo tanto localizar os núcleos e medir suas dimensões quanto avaliar sua homogeneidade. É possível constatar a homogeneidade (ver Figura 32) das partículas de aluminetos na matriz de alumínio, caso contrário iria ser observado regiões de segregação, manchas brancas (alumínio) ou manchas escuras (aluminetos de urânio).

Figura 31 - Escaneamento de raios-x dos núcleos individuais. Pode-se observar localização do núcleo em relação à placa de alumínio.

Fonte: Autor da tese.

Figura 32 - Processamento das imagens da Figura 28 permitindo avaliar a homogeneidade da dispersão.

Fonte Autor da tese

Na Tabela 15 são mostrados os valores de massa de urânio contidos nos três núcleos juntamente com o dimensional interno do alvo. Pode-se constatar que a especificação foi atendida nos principais parâmetros avaliados

Tabela 15 - Resultados dimensionais obtidos comparados com os valores especificados.

Especificado	Massa de U $7,2 \pm 0,3$ g	Massa U-235* $1,42 \pm 0,05$ g	Largura 24 ± 1 mm	Comprimento 170 ± 6 mm	Espessura $1,52 \pm 0,05$ mm
Núcleo 1	7,21	1,41	24,50	172,00	1,53
Núcleo 2	7,21	1,41	24,33	173,67	1,56
Núcleo 3	7,21	1,41	24,33	170,67	1,55

Fonte: Autor da tese.

O núcleo do alvo foi dividido em 4 regiões para se medir a espessura dos revestimentos conforme mostrado na Figura 33. Para núcleos individuais foram medidos apenas as espessuras dos revestimentos nas zonas terminais (1 e 7) conforme mostrado na Tabela 16.

Figura 33 - Amostras de núcleo laminado que são avaliadas com relação ao dimensional interno. As amostras 1 e 7 são denominadas de defeitos terminais e constituem a avaliação mais crítica.

Fonte: Autor da tese.

Constata-se na Tabela 16 que os valores de espessuras mínimas de revestimento, bem como, a espessura máxima do núcleo atenderam a especificação vigente. Na Figura 34 está ilustrada uma imagem de microscopia ótica da região denominada de Terminal 7 da Placa 1.

Figura 34 - Micrografia ótica da região denominada Terminal 7 da Placa 1. Algumas medidas de revestimento (1 e 2) podem ser visualizadas na imagem.

Fonte: Autor da tese.

Tabela 16 - Dimensional interno das regiões terminais. Na primeira linha, tem-se os valores especificados

(continua)			
Especificação	> 0,25 mm	> 0,25 mm	< 1,07 mm
Placa 01	Rev1 (mm)	Rev2 (mm)	Núcleo (mm)
Terminal 1	0,26	0,28	1,00
	0,28	0,31	0,95
	0,30	0,30	0,94
Terminal 7	0,27	0,31	0,95
	0,30	0,31	0,92
	0,33	0,33	0,87
Placa 02	Rev1 (mm)	Rev2 (mm)	Núcleo (mm)
Terminal 1	0,36	0,34	0,85
	0,36	0,34	0,85
	0,31	0,34	0,90
Terminal 7	0,29	0,32	0,94
	0,30	0,29	0,96
	0,32	0,30	0,93

Tabela 16 - Dimensional interno das regiões terminais. Na primeira linha, tem-se os valores especificados

(Continuação)

Placa 03	Rev1 (mm)	Rev2 (mm)	Núcleo (mm)
Terminal 1	0,31	0,28	0,94
	0,30	0,28	0,95
	0,31	0,32	0,90
Terminal 7	0,35	0,32	0,86
	0,31	0,35	0,87
	0,32	0,33	0,88

Fonte: Autor da tese.

4.3.2. Múltiplos Núcleos

A laminação dos múltiplos núcleos visou o aumento da produtividade por meio da laminação simultânea de múltiplos núcleos em uma única placa, com isso a produtividade dos alvos pôde ser aumentada em pelo menos 12 vezes. O processamento termomecânico de múltiplos núcleos foi objeto de patente deste trabalho, cuja invenção foi aceita para análise junto ao INPI e está protocolada com o código **BR 10 2014 032272 8** ⁷⁶.

Com o objetivo de entender como ocorre a deformação de todo o conjunto (placa mãe com os múltiplos núcleos), foram laminadas 3 placas com múltiplos núcleos ao longo desse trabalho a saber: 2 placas contendo 15 núcleos e uma placa contendo 12 núcleos. É importante mencionar que na laminação de múltiplos núcleos todas as cavidades na moldura devem ter suas dimensões precisamente ajustadas para alocar adequadamente o briquete. Em caso de alguma dimensão da cavidade estar menor que as dimensões do briquete acarretará na dificuldade de montagem do conjunto. Uma forma de garantir a uniformidade dimensional nas cavidades é usina-las com fresas possuindo comando numérico.

Para que a montagem dos briquetes ocorresse corretamente nas cavidades, foi determinada uma folga de aproximadamente 100 micrometros (um décimo de milímetro) em cada dimensão da cavidade em relação à dimensão do briquete.

As distâncias entre os núcleos na moldura foram determinadas baseadas nos alongamentos dos núcleos individuais de maneira que após a laminação a frio fosse possível separar os núcleos considerando a especificação dimensional externa do alvo. Na Figura 35 são mostrados os projetos das placas mães contendo 12 e 15 núcleos (superior) e a montagem do conjunto 15 núcleos (inferior).

Figura 35 - Superior: Projetos das múltiplas cavidades nas placas mães contendo 12 e 15 núcleos. Inferior: Montagem do conjunto contendo 15 núcleos.

Fonte: Autor da tese.

A deformação dos núcleos durante os passes a quente e a frio ocorreu de maneira uniforme. Os passes a frio foram dados de forma que a placa deformasse alcançando o comprimento do núcleo especificado, mas deixando a espessura um pouco acima (30-40 μm) do especificado. Na Figura 36 estão ilustradas as imagens de escaneamento das placas mães contendo 15 e 12 núcleos após os passes a quente.

Figura 36 - Escaneamento das placas contendo 12 núcleos (superior) e 15 núcleos (inferior)

Fonte: Autor da tese.

Na Figura 37 estão ilustradas as imagens processadas da Figura 36 para visualização da homogeneidade da dispersão. É possível notar que a dispersão apresenta-se homogênea sem a presença de manchas provenientes de segregação do alumineto ou do alumínio. Essas imagens atestam que o processo de homogeneização foi alcançado com o tempo de uma hora no misturador Turbula® T2F.

Figura 37 - Processamento das imagens da Figura 36, permitindo a observação da homogeneidade das partículas de alumineto na matriz de alumínio.

Fonte: Autor da tese.

Ao realizar as separações dos núcleos da placa mãe, as tiras de alumínio localizadas entre os núcleos provenientes dos cortes foram submetidas ao ensaio de dobramento para verificar a união metalúrgica do conjunto (caldeamento). Nesse ensaio a tira é dobrada 90 ° para frente e 90° para trás e é verificado se ocorre separação ou bolhas na região de interface dos revestimentos. Na Figura 38 estão ilustradas as fotografias das amostras submetidas a esse ensaio. Ressalta-se que foi constatado o caldeamento nos conjuntos laminados com múltiplos núcleos e isso é um indicativo que o processo de limpeza da moldura e dos revestimentos foi alcançado e, além disso, que na laminação, principalmente os primeiros passes, tiveram reduções suficientes para promover o caldeamento das partes (ver Tabela 6).

Figura 38 - À esquerda, imagem do ensaio de dobramento e à direita as amostras dobradas mostrando que ocorreu o caldeamento.

Fonte: Autor da tese

As medições de espessura de revestimento e espessura do núcleo foram realizadas em alguns núcleos para verificar se existe alguma variação em função da posição dos núcleos na placa mãe. Na Figura 39 estão ilustradas as posições (em vermelho) em que as espessuras de revestimentos e núcleo foram medidas e na Tabela 18 estão sumarizados esses valores.

Figura 39: Desenho esquemático ilustrado em vermelho os núcleos em que foram avaliados os defeitos terminais.

Fonte: Autor da tese

Tabela 17 - Medidas de espessura de revestimento dos núcleos selecionados em vermelho na
 Figura 39 (continua)

Especificação	≥ 0,25 mm	≥ 0,25 mm	≤1,07 mm
Posição 03	Rev1 (mm)	Rev2 (mm)	Núcleo (mm)
Terminal 1	0,27	0,32	0,90
	0,29	0,32	0,91
	0,24	0,33	0,94
Terminal 7	0,30	0,35	0,86
	0,35	0,35	0,90
	0,37	0,36	0,82
Longitudinal	0,37	0,35	0,8
	0,35	0,33	0,85
	0,36	0,33	0,83
Transversal	0,38	0,38	0,77
	0,36	0,36	0,83
	0,37	0,36	0,8
Posição 08	Rev1 (mm)	Rev2 (mm)	Núcleo (mm)
Terminal 1	0,26	0,29	0,96
	0,30	0,30	0,92
	0,31	0,35	0,84
Terminal 7	0,27	0,29	0,99
	0,35	0,34	0,86
	0,37	0,35	0,85
Longitudinal	0,36	0,35	0,84
	0,36	0,35	0,84
	0,37	0,37	0,8
Transversal	0,36	0,37	0,81
	0,34	0,37	0,85
	0,35	0,38	0,83

Tabela 18 - Medidas de espessura de revestimento dos núcleos selecionados em vermelho na Figura 39

(continuação)			
Posição 10	Rev1 (mm)	Rev2 (mm)	Núcleo (mm)
Terminal 1	0,32	0,34	0,87
	0,35	0,33	0,86
	0,33	0,34	0,87
Terminal 7	0,32	0,37	0,85
	0,38	0,33	0,85
	0,35	0,37	0,83
Longitudinal	0,36	0,37	0,83
	0,36	0,36	0,84
	0,37	0,37	0,83
Transversal	0,34	0,35	0,87
	0,36	0,37	0,84
	0,37	0,38	0,81
Posição 15	Rev1 (mm)	Rev2 (mm)	Núcleo (mm)
Terminal 1	0,28	0,32	0,95
	0,35	0,35	0,84
	0,37	0,36	0,81
Terminal 7	0,26	0,33	0,95
	0,32	0,33	0,89
	0,34	0,36	0,84
Longitudinal	0,35	0,35	0,85
	0,36	0,35	0,83
	0,35	0,36	0,83
Transversal	0,36	0,31	0,83
	0,36	0,37	0,83
	0,34	0,33	0,87

Fonte: Autor da tese.

Analisando os dados da Tabela 17 nota-se que apenas uma medida de espessura (revestimento 1) do núcleo na posição 3 ficou 0,01 milímetros abaixo do especificado, porém a medida da espessura do núcleo na região está em conformidade com o especificado ($< 1,07$ mm) e a espessura do revestimento 2 também se encontra em conformidade com a especificação.

Antecipadamente poderia ser afirmado que essa diminuição de espessura (de apenas 10 micrometros) não afetaria a segurança da irradiação dos alvos, entretanto a especificação requer nesse cenário, que outro núcleo seja analisado e estando em conformidade o lote é aceito, caso se repita a não conformidade o lote inteiro é descartado. Embora não se tenha definido como será composto um lote de miniplacas durante um regime de produção, nesse trabalho foi assumido que o lote é composto pelos núcleos da mesma placa mãe. Dessa maneira, uma nova placa (posição 9) foi escolhida na mesma fileira da placa 3 para ter suas espessuras de revestimentos e núcleo medidas. Sendo encontrado que essas medidas estão em conformidade com o especificado, tanto na espessura do revestimento ($> 0,25$ mm) quanto na espessura do núcleo ($< 1,07$ mm) conforme sumarizado na Tabela 18. Na Figura 40 estão ilustradas as micrografias óticas das regiões terminais do núcleo na posição 9.

Figura 40 - Micrografia ótica das zonas terminais do núcleo na posição 9.

(continua)

Figura 40 - Micrografia ótica das zonas terminais do núcleo na posição 9.

(continuação)

Fonte: Autor da tese.

Tabela 18 - Medidas de espessura de revestimento do núcleo na posição 9.

Posição 09	Rev1 (mm)	Rev2 (mm)	Núcleo (mm)
Terminal 1	0,33	0,31	0,88
	0,34	0,33	0,88
	0,34	0,35	0,86
Terminal 7	0,27	0,28	0,88
	0,33	0,33	0,87
	0,36	0,34	0,85
Longitudinal	0,30	0,34	0,85
	0,38	0,36	0,81
	0,35	0,38	0,82
Transversal	0,38	0,38	0,80
	0,39	0,36	0,80
	0,35	0,37	0,83

Fonte: Autor da tese.

Na Tabela 21 estão compilados os valores de dimensional interno do núcleo e os valores de massas de urânio[§] contidas em cada núcleo da placa mãe contendo 12 núcleos. Pode-se constatar avaliando os dados da Tabela 21 que a especificação foi atendida.

Tabela 19 - Especificação dimensional e de massas de urânio comparado com os valores obtidos em cada placa.

Especificado	Massa de U $7,2 \pm 0,3$ g	Massa U-235 ³ (19,58%) $1,42 \pm 0,05$ g	Largura 24 ± 1 mm	Comprimento 170 ± 6 mm	Espessura Média $1,52 \pm 0,05$ mm
Núcleo 1	7,25	1,42	24,50	170,83	1,53
Núcleo 2	7,25	1,42	24,17	171,33	1,55
Núcleo 3	7,25	1,42	24,33	170,17	1,53
Núcleo 4	7,25	1,42	24,33	170,33	1,55
Núcleo 5	7,25	1,42	24,17	169,83	1,54
Núcleo 6	7,25	1,42	24,17	170,33	1,55
Núcleo 7	7,25	1,42	24,33	171,50	1,53
Núcleo 8	7,25	1,42	24,17	170,83	1,53
Núcleo 9	7,25	1,42	24,50	170,83	1,53
Núcleo 10	7,25	1,42	24,33	170,50	1,55
Núcleo 11	7,25	1,42	24,33	170,33	1,54
Núcleo 12	7,25	1,42	24,33	170,17	1,53

Fonte: Autor da tese.

Os núcleos foram separados da placa mãe através do delineamento da placa utilizando uma mesa de corte adaptada para escaneamento e marcação da placa. Após esse delineamento (traçagem) as placas foram cortadas utilizando uma guilhotina. Na sequência as placas foram escaneadas individualmente para que a

[§] Massas de urânio-235 que estariam contidas nos núcleos se eles fossem fabricados com urânio enriquecido.

centralização do núcleo em relação à placa fossem medidas e comparadas à especificação. Na Figura 41 são mostrados os escaneamentos de alguns alvos individuais e uma fotografia dos 12 alvos após a separação da placa mãe. Vale destacar que as medidas de centralização do núcleo foram atendidas conforme especificado.

Figura 41 - Superior: Escaneamento de alguns núcleos individuais após a separação da placa mãe. Inferior: Os alvos finalizados após a separação da placa mãe.

Fonte: Autor da tese

4.3.3. Alvos de Urânio Enriquecido

Um total de 10 miniplacas alvo com urânio enriquecido 19,58 % em U-235 foram produzidas e enviadas ao reator IPEN/MB-01 para validação de cálculos neutrônicos⁵²⁾ Na Tabela 22 estão compilados os valores de massas de urânio contidas nesses alvos.

Tabela 20 - Massas de urânio contidas nos alvos fabricados com urânio enriquecido.

Miniplaca nº	Massa UAl_2 (g)	Massa ^{235}U (g)	Razão Isotópica (%)
Especificada		$\geq 1,90$	
UC-01	12,09	1,90	19,58
UC-02	12,09	1,90	19,58
UC-03	12,07	1,90	19,58
UC-04	12,07	1,90	19,58
UC-05	12,07	1,90	19,58
UC-06	12,09	1,90	19,58
UC-07	12,09	1,90	19,58
UC-08	12,09	1,90	19,58
UC-09	12,07	1,90	19,58
UC-10	12,08	1,90	19,58

Fonte: Autor da tese.

Na Figura 42 são mostradas as micrografias eletrônicas em modo retroespalhado dos terminais do núcleo e na Tabela 23 estão sumarizados os valores de espessuras de revestimento e do núcleo. Os valores que aparecem nessa Tabela são valores médios calculados a partir das menores medidas para os revestimentos e maiores para o núcleo coletadas nessas regiões. Baseados nos valores medidos

conclui-se que a especificação foi atendida também no quesito de dimensional interno do núcleo.

Figura 42 - Micrografia eletrônica das regiões terminais do núcleo do alvo enriquecido.

Fonte: Autor da tese

Tabela 21 - Valores medidos para espessura de revestimento e de núcleo, para o alvo enriquecido.

Especificação	≥ 0,25 mm	≥ 0,25 mm	≤ 1,07 mm
Posição	Rev1 (mm)	Rev2 (mm)	Núcleo (mm)
Terminal 1	0,25	0,28	0,97
Terminal 7	0,26	0,28	1,00
Longitudinal	0,37	0,37	0,83
Transversal	0,38	0,38	0,77

Fonte: Autor da tese.

Na Figura 43 estão ilustradas as fotografias do alvo individual e o conjunto dos 10 alvos embalados.

Figura 43 - À esquerda: fotografia do alvo individual; À direita: Os alvos embalados prontos para serem entregues ao Centro de Engenharia Nuclear.

Fonte: Autor da tese

É importante mencionar que existiram algumas diferenças nos aspectos de fabricação desses alvos com relação aos alvos do RMB. A primeira diferença está na fração volumétrica de UAl_2 contidas nesses alvos que é de 45 % v/v (UCRI-IPEN MB/01) e fração volumétrica dos alvos para o RMB é de 36% v/v. A segunda diferença entre esses alvos foi que não houve a necessidade de consumir o UAl_2 como nos alvos para o RMB. Esses fatores acarretaram um pouco mais de dificuldade para a fluidez do núcleo UAl_2 -Al durante a laminação, o que levou a uma redução de espessura do revestimento, pois os núcleos carregavam uma fração volumétrica maior de fase físsil e o UAl_2 também dificulta um pouco a laminação considerando que ele é mais duro que os demais aluminetos (ver Tabela 3). Os alvos para o RMB além de possuírem uma fração volumétrica menor de fase físsil, o fato de consumir o UAl_2 durante a laminação facilita a fluidez do núcleo levando a uma maior espessura de revestimento no núcleo laminado, ou seja diminuindo os defeitos terminais conhecidos pela denominação de *dogbone*. Apesar dessas dificuldades foi possível fabricá-los com sucesso atendendo a especificação vigente para esses alvos (IPEN MB/01).

5. CONCLUSÃO

O objetivo da tese que foi estabelecer a tecnologia de fabricação de alvos para produção de Mo-99 em reatores produtores de radioisótopos foi alcançado com sucesso. A técnica de análise de imagem e a difração de raios-x com refinamento de Rietveld foram aplicadas com sucesso na quantificação das fases presentes no lingote de UAl_2 . A análise de EBSD contribuiu para a elucidação da microestrutura dos grãos do lingote de UAl_2 , porém não foi possível quantificar as fases minoritárias presentes no UAl_2 . Para a quantificação das fases de UAl_x durante o processamento termomecânico a difração de raios-x se mostrou mais apropriada que a análise de imagem.

Foi, então, desenvolvido e qualificado um método inovador para aumentar a produtividade, sendo possível laminar placas mães contendo 12 e 15 núcleos na mesma placa, concluindo que podem ser laminados quantos núcleos forem desejados por placa, sendo esse número limitado apenas pelo tamanho do forno de aquecimento ou pela largura do cilindro do laminador.

A aplicação conjunta das técnicas de dilatometria com DRX-Rietveld possibilitou desenvolver o tratamento térmico de uma maneira mais precisa e ainda conhecer o perfil cinético das reações de estado sólido dos aluminetos com a matriz de alumínio. A temperatura de laminação e de tratamento térmico foi determinada por dilatometria como sendo 540°C e o tempo de tratamento térmico com duração de 7h se mostrou suficiente para consumir o UAl_2 presente inicialmente na dispersão.

Os alvos para validação de cálculo neutrônico foram fabricados com sucesso segundo a especificação do RMB e da Unidade Crítica IPEN-MB/01.

É importante mencionar que a execução deste trabalho foi ao encontro do objetivo do Centro do Combustível Nuclear do IPEN, que é tornar-se apto tecnologicamente a produzir placas alvos de $\text{UAl}_x\text{-Al}$ para serem irradiadas no RMB. Cabe ressaltar também, que o desenvolvimento desse trabalho mostrou que o CCN-IPEN pode produzir esses alvos e vendê-los no mercado internacional abrindo assim uma grande oportunidade de negócio ao ingressar a instituição no mercado seletivo de produtores de alvos de irradiação.

6. TRABALHOS FUTUROS

Durante a execução desse trabalho algumas frentes de pesquisa técnico-científicas emergiram e foram avaliadas com potencial para serem executadas a *posteriori*, a saber:

- a) Desenvolver alvos de alta concentração de urânio através da síntese de misturas de $\text{UAl}_2/\text{U}^\circ$.
- b) Investigar a técnica de EBSD para quantificação de todas as fases presentes no lingote, explorando mais recursos que software pode disponibilizar, como por exemplo, a análise integrada de EDS e EBSD.
- c) Irradiar os alvos no reator IEA-RI para avaliar os parâmetros de inchamento, camadas de óxidos e composição dos produtos de fissão.
- d) Realizar estudos de dissolução dos alvos após a fabricação, e possivelmente irradiando tiras do núcleo $\text{UAl}_x\text{-Al}$ para estudar a extração Mo-99 dos demais produtos de fissão.

7. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 OECD-NEA, ***Supply and Demand Update of the Molybdenum-99 Market-2012***. OECD, Paris. Disponível em < <http://www.oecd-nea.org/med-radio/#docs> > Acesso em 07/05/13.
- 2 OECD-NEA, ***The Supply of Medical Radioisotopes 2016 Medical Isotope Supply Review: 99Mo/99mTc Market Demand and Production Capacity Projection 2016-2021, 2016***. Disponível em <<http://www.oecd-nea.org/cen/docs/2016/sen-hlgmr2016-2.pdf>.> Acesso em 29 jun. 2016.
- 3 L. POZZO, G. C. FILHO, J. A. OSSO, P. L. SQUAIR; O SUS na medicina nuclear do Brasil: avaliação e comparação dos dados fornecidos pelo Datasus e CNEN ***Radiol. Bras.***;47(3):141.2014
- 4 Ministério da Ciência, Tecnologia e Inovação, Comissão Nacional de Energia Nuclear. ***Relatório de gestão do exercício de 2015. 2016***; Disponível em < http://www.cnen.gov.br/images/cnen/documentos/acesso_a_informacao/rel-gestao-2015.pdf> Acesso em 14 nov. 2017.
- 5 National Research Council. 2009. ***Medical Isotope Production Without Highly Enriched Uranium***. Washington, DC: The National Academies Press. Disponível em< <https://doi.org/10.17226/12569>> Acesso em 25 nov.2017
- 6 IAEA Technical Reports Series No.478; ***Feasibility of producing Molybdenum-99 on a Small Scale Using fission of Low Enriched uranium or neutron Activation of natural Molybdenum***. 2015; Disponível em < <http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/trs478web-32777845.pdf>> Acesso em 25 nov. 2017.
- 7 B. BRIYATMOKO, BOYBUL, GUSWARDANI, SUHARDYO, PURWANTA, S. PERMANA, DADANG, BASIRAN, M. KARTAMAN; ***Indonesia's current status for conversion of Mo-99 production to LEU fission***; INTERNATIONAL MEETING ON REDUCED ENRICHMENT FOR RESEARCH AND TEST REACTORS, Prague, Czech Republic. **2007**; Disponível em < http://www.rertr.anl.gov/RERTR29/PDF/6-1_Briyatmoko.pdf > Acesso em 25 nov. 2017.
- 8 IAEA Nuclear Energy Series No.NF-T-5.4; ***Non-HEU Production Technologies for Molybdenum-99 and Technetium-99m*** International Atomic Energy Agency Vienna, **2013**. Disponível em < <http://www-pub.iaea.org/books/IAEABooks/10386/Non-HEU-Production-Technologies-for-Molybdenum-99-and-Technetium-99m>> Acesso em 25 nov. 2017.

9 G. E. DALE, D. A. DALMAS, M. J. GALLEGOS, K. R. JACKMAN, C. T. KELSEY, I. MAY, S. D. REILLY, G. M. STANGE. 99Mo Separation from High-Concentration Irradiated Uranium Nitrate and Uranium Sulfate Solutions. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 51, 13319 **2012**. Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br>. Acesso em 25 nov. 2017.

10 J. A. OSSO JR., C. R.B.R. DIAS, T. P. BRAMBILLA, R. TEODORO, M. F. CATANOSO, J. Z., R. R.L. BEZERRA, L. A. VILLELA, J. L. CORREIA, E. IVANOV, F. M.S. CARVALHO, L. POZZO, P. L. SQUAIR, J. MENGATTI. *Production of 99Mo at IPEN/CNEN/ SP-Brazil* MO-99.TOPICAL MEETING ON MOLYBDENUM-99. **2013** Disponível em <http://mo99.ne.anl.gov/2013/>> Acesso em 25 nov. 2017.

11 S. CHEMERISOV, A. GELIS, P. TKAC, D. BOWERS, V. MAKARASHVILI, A. BAKEL, G. VANDEGRIFT . Argonne Activities for the Production of Mo-99 Using Linac Irradiation of Mo-100”, Proceedings of the 2010 International RERTR Mtg, Lisbon, Portugal, RERTR, Argonne, IL. **2010**.

12 OECD-NEA (2011a), *The Supply of Medical Radioisotopes: the Path to Reliability*, OECD, Paris. ISBN 978-92-64-99164-4. **2011**; Disponível em <<http://www.oecd-nea.org/med-radio/#docs>> Acesso em 25 nov. 2017

13 Página de notícias pertencentes ao *Canadian Nuclear Laboratories*. Disponível em<http://www.cnl.ca/en/home/news-and-publications/bulletins/2015/NRU_decision.aspx> Acesso em 25 nov. 2017.

14 OECD-NEA (2014 b), *Medical Isotope Supply In The Future: Production Capacity And Demand Forecast For The 99mo/99mtc Market, 2015-2020*; 2014 Disponível em <http://www.oecd-nea.org/med-radio/reports/sen-hlgmr2014-2.pdf> Acesso em 25 nov. 2017.

15 OECD (2017) *The Supply of Medical Radioisotopes 2017 Medical Isotope Supply Review: 99Mo/99mTc Market Demand and Production Capacity Projection 2017-2022*. Disponível em < <https://www.oecd-nea.org/cen/docs/2017/sen-hlgmr2017-2.pdf>> Acesso em 25 nov. 2017.

16 Clipping de notícia IPEN 2017; Disponível em <https://intranet.ipen.br/portal_por/portal/interna.php?secao_id=40&campo=7223> Acesso em 25 nov. 2017

17 IAEA-TECDOC-643, *Research Reactor Core Conversion Guidebook, Fuels Apêndices(I-K)*, vol. 4.1992. Disponível em <[www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/te_643v4_prn.pdf](http://pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/te_643v4_prn.pdf)> Acesso em 25 nov. 2017.

18 YEON S. K. *Comprehensive Nuclear Materials. Uranium Intermetallic Fuels (U-Al, U-Si, U-Mo)*. Vol 3 Elsevier. 2012.

-
- 19 H. OKAMOTO, Al-U (Aluminum-Uranium); **J. Phase Equilib. Diff.** 33, 6. **2012**. Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017.
- 20 G. KATZ, A. J. JACOBS; Lattice constants of the intermetallic compounds UAl_2 and UFe_2 ; **J. Nucl. Mater.** 5 338 **1962**. Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 21 S. NAZARÉ, G. ONDRACEK, F. THÜMMER, Investigations on $UAlx$ -Al dispersion fuels for high-flux reactors **J. Nucl. Mater.** 56, 251 **1975**. Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 22 R. E. RUNDLE, A. S. WILSON, The structures of some metal compounds of uranium, **Acta Crystallogr.** 2 148. **1949** Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 23 V. Y. ZENOU, G. KIMMEL, C. COTLER, M. AIZENSHTAIN, Structure of UAl_4 prepared by solid state reaction **J. Alloys Compd.** 329, 189. **2001**. Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 24 S. SHU-YING KANG, T. GA, X. TIAN; First-principles study of electronic structure and elasticity of $UAlx$ ($x=1,2,3$) system **Physica B** 407 748–755 **2012** Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 25 R. O. JONES; Density functional theory: Its origins, rise to prominence, and future **Rev. Mod. Phys.** 87, 897 **2015** Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 26 Página da WEB disponível em <<http://www.atcp.com.br/images/stories/products/RT03-ATCP.pdf>> Acesso em 25 nov. 2017
- 27 J. HAINES, J. M. LEGER, G. BOCQUILLON; Synthesis and Design of Superhard Materials; **Annu. Rev. Mater. Res.** 31. (**2001**) Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 28 L. KNIZNIK, P. R. ALONSO, P. H. GARGANO, G. H. RUBIOLO; Energetics and electronic structure of UAl_4 with point defects **J. Nucl. Mater** 466 **2015** Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 29 A. R. KAUFMANN, **Nuclear Reactor fuel Elements Metallurgy and Fabrication**. Interscience Publishers. **1962**

-
- 30 F. B. J. Ferrufino. **Determinação quantitativa da homogeneidade da distribuição de urânio em combustíveis nucleares tipo placa**. Dissertação, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares; **2011**; Disponível em < <http://www.teses.usp.br> > Acesso em 25 nov. 2017.
- 31 A. MUSHTAQ; Specifications and qualification of uranium/aluminum alloy plate target for the production of fission molybdenum-99; **Nucl. Eng. Des.** 241, 163, **2011**
- 32 K. LIAQAT ALI, A. AHMAD KHAN, A. MUSHTAQ, F. IMTIAZ, M. ALI ZIAI, A. GULZAR, M. FAROOQ, N. HUSSAIN, N. AHMED, S. PERVEZ, J. H. ZAIDI; Development of low enriched uranium target plates by thermo-mechanical processing of UAl₂-Al matrix for production of ⁹⁹Mo in Pakistan; **Nucl. Eng. Des.** 255, 77. **2013** Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 33 K. CARLOS; DE LA F. MARIANO; E., PATRICIA; P. DANIEL; A. PABLO. **CNEA Targets Development of Low Enrichment For Production Of Mo99 For Fision** Las Vegas, Nevada, October 1-6, **2000**.
- 34 H. J. RYU, C.K. KIM, M.S. SIM, J.M. PARK, J.H.LEE; DEVELOPMENT OF HIGH-DENSITY U/AL DISPERSION PLATES FOR MO-99 PRODUCTION USING ATOMIZED URANIUM POWDER **Nucl. Eng. Technol.** 45:979–986 **2013** Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 35 H. J. RYU, Y. J. JEONG , J. M. NAM, J. M. PARK; Metallurgical considerations for the fabrication of low-enriched uranium dispersion targets with a high density for ⁹⁹Mo production **J. Radioanal. Nucl. Chem.** 305:31–39 **2015** Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 25 nov. 2017
- 36 K.H. Kim, D.B. Lee, C.K. Kim, I. H.Kuk, G. L. Hofman,.Proceedings of the 19th Int. Meet. on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors. Seoul, Korea. **1996**
- 37 Topical Meeting on Molybdenum-99 Technological Development. **2013** Disponível em < <http://mo99.ne.anl.gov/2013/>> Acesso em 25 nov. 2017
- 38 B. STEPNIK, C. BLAY, G. BOURDAT, P. COLOMB, C. JAROUSSE, A. KOCHER AND D. GESLIN; Industrialization of LEU ⁹⁹-Mo Target Production in AREVA-CERCA. Proceedings of **Mo-99 Topical Meeting** April 1-4, 2013, Embassy Suites Chicago Downtown, Chicago **2013**. Disponível em < <http://mo99.ne.anl.gov/2013/>> Acesso em 25 nov. 2017
- 39 M. SALVATORE, C. PAVÓN; TARGETS: A PERSPECTIVE FROM THE TECHNICAL AND COMMERCIAL POINT OF VIEW; Proceedings of **Mo-99 Topical Meeting** April 1-4, 2013, Embassy Suites Chicago Downtown, Chicago **2013**. Disponível em < <http://mo99.ne.anl.gov/2013/>> Acesso em 25 nov. 2017

40 Y. J. JEONG, K. H. LEE, S. H. KIM, K. N. KIM, J.M. PARK; UAlx Phase Analysis on the LEU Dispersion Targets with Changing the Composition of Atomized UAlx Powders. Proceedings of **Mo-99 Topical Meeting** August 31-September 3, **2015**, Hilton Boston Back Bay, Boston, Massachusetts, USA Hosted by Argonne National Laboratory Disponível em < <http://mo99.ne.anl.gov/2015/>> Acesso em 25 nov. 2017

41 **Technical Meeting on Global Capabilities for the Production and Manufacture of non-HEU Molybdenum-99 Targets** 27-28 abril, IAEA HQ, Vienna, Austria T3-TM-54731 **2017**. Disponível em <<https://www.iaea.org/events/3296>> Acesso em 16 nov. 2017.

42 L. OLIVARES, J. LISBOA, M. BARRERA, C. GUTIERREZ; CCHEN's Capabilities for Manufacture of 2nd Generation LEU Targets for 99Mo Production; **Technical Meeting on Global Capabilities for the Production and Manufacture of non-HEU Molybdenum-99 Targets** 27-28 abril, IAEA HQ, Vienna, Austria T3-TM-54731 **2017**

43 R. Howard; Qualification of Irradiation Targets to Support 99Mo Reactor Production; **Technical Meeting on Global Capabilities for the Production and Manufacture of non-HEU Molybdenum-99 Targets** 27-28 abril, IAEA HQ, Vienna, Austria T3-TM-54731 **2017**

44 G. VANDEGRIFT; Low-enriched Uranium High-Density Target Project: Compendium Report; **Technical Meeting on Global Capabilities for the Production and Manufacture of non-HEU Molybdenum-99 Targets** 27-28 abril, IAEA HQ, Vienna, Austria T3-TM-54731 **2017**; Disponível em <http://www.ipd.anl.gov/anlpubs/2016/11/130420.pdf> Acesso em 25 nov. 2017.

45 R. JAMIE, Industrial Scale Utilisation of LEU Dispersion Targets: NECSA Experience to Date; **Technical Meeting on Global Capabilities for the Production and Manufacture of non-HEU Molybdenum-99 Targets** 27-28 abril, IAEA HQ, Vienna, Austria T3-TM-54731 **2017**

46 Y. J. Jeong, J. M. Park, S. H. Kim, K. N. Kim, K. H. Lee Current Status on the Development of LEU Dispersion Targets for Mo-99 at KAERI; **Technical Meeting on Global Capabilities for the Production and Manufacture of non-HEU Molybdenum-99 Targets** 27-28 abril, IAEA HQ, Vienna, Austria T3-TM-54731 **2017**

47 L. ALI; Development Of LEU Target Plates By Thermo-Mechanical Processing Of Ual2-Al Matrix For Production Of Mo-99 **Technical Meeting on Global Capabilities for the Production and Manufacture of non-HEU Molybdenum-99 Targets** 27-28 abril, IAEA HQ, Vienna, Austria T3-TM-54731 **2017**

-
- 48 M. B. FEBRIAN; Current Development Status of Mo-99 in Indonesia; **Technical Meeting on Global Capabilities for the Production and Manufacture of non-HEU Molybdenum-99 Targets** 27-28 abril, IAEA HQ, Vienna, Austria T3-TM-54731 **2017**
- 49 V. P. SINHA; Challenges and experience in fabrication of LEU based targets and its qualification for Mo99 production at BARC; **Technical Meeting on Global Capabilities for the Production and Manufacture of non-HEU Molybdenum-99 Targets** 27-28 abril, IAEA HQ, Vienna, Austria T3-TM-54731 **2017**
- 50 Especificação da miniplaca alvo para a produção de Mo-99 no RMB, subsistema RMB-N01-00-PC-10381-KG-001. **2014**
- 51 H. J. COLS , P. R. CRISTINI , A. C. MANZINI, Mo – 99 FROM LOW – ENRICHED URANIUM; 2000 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Las Vegas, Nevada, Outubro 1-6, **2000**.
- 52 D. B. DOMINGOS. *Análises neutrônica e termo-hidráulica de dispositivos para irradiação de alvos tipo LEU de UAlx-Al e U-Ni para produção de Mo-99 nos reatores IEA-R1 e RMB*. Tese, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. **2014**
- 53 E. VIEIRA. *Estudo paramétrico da deformação de placas combustíveis com núcleos de dispersão de U_3Si_2 -Al*. Dissertação (Mestrado) Instituto de pesquisas Energéticas e Nucleares. **2011**; Disponível em < <http://www.teses.usp.br> > Acesso em 25 nov. 2017.
- 54 M. DURAZZO; *Radioisotopes: Applications in Physical Sciences*", ISBN: 9789533075105, capítulo intitulado "Research Reactor Fuel Fabrication to Produce Radioisotopes". **2011**
- 55 A. S. BATISTA; *Procedimento de fabricação de elementos combustíveis a base de dispersões de alta concentração de urânio*. Dissertação, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. **2011**
- 56 H. M. Rietveld ; A profile refinement method for nuclear and magnetic structures *J. Appl. Crystallogr.* 2 (2): 65 **1969**. Disponível em < www.periodicos.capes.gov.br > Acesso em 25 nov. 2017
- 57 C. J. HOWARD, R. J. HILL, M.A.M. SUFI, *Chem. in Austral.* 55, 367 **1988**.
- 58 G. W. Brindley; XLV. The effect of grain or particle Size on x-ray reflections from mixed powders and alloys, considered in relation to the quantitative determination of crystalline substances by x-ray methods; *Phil. Mag.* 36, 347, **1945** Disponível < <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/14786444508520918> > Acesso em 26 nov. 2017.

59 H. J. EDING, E. M. CARR; **High Purity Uranium Compounds**-Final Report; ANL-6339; Argonne National Laboratory: Argonne, IL, 1961.

60 Win Summary Report on **Fuel Development and Miniplate Fabrication for the RERTR Program 1978–1990**, ANL/RERTR/TM-15, 1995.

61 EBSD Explained EBSD; From data acquisition to advanced analysis. Disponível em <<https://www.oxford-instruments.com/products/microanalysis/ebsd>> Acesso em 30 de nov 2017

62 A. J. SCHWARTZ, M. KUMAR, B. L. ADAMS, D. P. FIELD **Electron Backscatter Diffraction in Materials Science** Second Edition. Springer 2000

63 T. MAITLAND, S. S. W. ZHOU, Z. L. WANG; Scanning Microscopy for Nanotechnology: Techniques and Applications capítulo 2 **Electron Backscatter Diffraction (EBSD) Technique and Materials Characterization Examples** Springer Science & Business Media; 2007

64 Website da Oxford instruments; disponível em < <http://www.ebsd.com/>> Acesso em 29 nov 2017.

65 D. WALTON, B. CHAEMERS **Trans AIME** 215 447 1959 *Apud* R. E. Reed-Hill, R. ABBASCHIAN; **PHISICAL METALLURGY Principles** 3ª edição;1991

66 M. M. NOWELL, S. I. WRIGHT; **Phase differentiation via combined EBSD and XEDS Journal of Microscopy**, 213, pg 296; 2004

67 AZtecSynergy – Phase Identification in a High Temperature Steel AZtecSynergy microanalysis system using the Tru-I® indexing engine to perform Phase Identification. Disponível em < <http://www.ebsd.com>> Acesso em 02 dez 2017

68 Website da Instituição **University College London**; Disponível em <<http://pd.chem.ucl.ac.uk/pdnn/refine1/errors.htm>> Acesso em 26 nov. 2017

69 F. THÜMMLER, H. E. LILIENTHAL, S. NAZARÉ, **Powder Metall.**, 12:23, 1-22 1969. UAl₂-Al instead of UAl₃-Al in fuel-element plates for advanced test-reactors; Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 26 nov. 2017

70 Metals Handbook, Vol.2 - **Properties and Selection: Nonferrous Alloys and Special-Purpose Materials, Properties of Wrought Aluminium and Aluminium Alloys** ASM International 10th Ed. 1990.

71 A. D. LE CLAIRE , I. J. BEAR; The Interdiffusion of uranium and aluminium; **J. Nuclear Energy**. 2, 229 **1956**. Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 26 nov. 2017

72 J. C. BRESSIANI **Desenvolvimento de combustível tipo placa, com núcleo constituído por dispersão U-Al para reatores de ensaios de materiais** Dissertação (Mestrado) Instituto de pesquisas Energéticas e Nucleares. **1979**

73 A. K, Chakraborty, R. S. Crouse, W. R. Martin; Factors affecting the swelling during degassing of compacts containing uranium-aluminum intermetallics Dispersed in aluminum; **J. Nucl. Mater.** 38,93 **1971**. Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 26 nov. 2017

74 U. B Hans, W. Horst; *Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry* 8th Edition Volume B2 **Alloys of Uranium with Alkali Metals, Alkaline Earths, and Elements of Main Groups III and IV**.1989

75 N. V. CHANDRA SHEKAR, P. CH. SAHU, M. SEKAR, MOHAMMAD YOUSUF, K. GOVINDA RAJAN; Powder X-ray diffraction data for UAl_4 ; **Powder Diffraction** 11 (4), 1996. Disponível em <www.periodicos.capes.gov.br> Acesso em 26 nov. 2017

76 COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR; Michelangelo Durazzo, Giovanni de Lima Cabral Romeiro Conturbia, Davilson Gomes da Silva, Adonis Marcelo Saliba Silva; **Método de fabricação de múltiplos alvos para produção de Mo-99**; BR 10 2014 032272 8. **28/06/2016**. Disponível em <http://www.inpi.gov.br/> Acesso em 08 nov. 2017.

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Diretoria de Pesquisa, Desenvolvimento e Ensino
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária CEP: 05508-000
Fone/Fax(0XX11) 3133-8908
SÃO PAULO – São Paulo – Brasil
<http://www.ipen.br>

**O IPEN é uma Autarquia vinculada à Secretaria de Desenvolvimento, associada
à Universidade de São Paulo e gerida técnica e administrativamente pela
Comissão Nacional de Energia Nuclear, órgão do
Ministério da Ciência, Tecnologia e Inovação.**