

# PRODUÇÃO DE URÂNIO METÁLICO PARA ELABORAÇÃO DE LIGA $U_3Si_2$

Eng. Adonis Marcelo Saliba Silva, Msc.\* e Eng. Paulo Ernesto Lainetti, Msc.\*\*

(\*) Divisão de Processamento Metalúrgico (MCM- IPEN/CNEN-SP)

e-mail: adonis@net.ipen.br

(\*\*) Departamento de Tecnologia de Combustíveis (MC-IPEN/CNEN-SP)

e-mail: lainetti@net.ipen.br

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP  
Travessa R, nº400, Cidade Universitária - São Paulo (SP)

## RESUMO

A produção de urânio metálico é uma fase importante na obtenção da liga  $U_3Si_2$ . Esta liga será utilizada na confecção de elementos combustíveis para o reator de pesquisa IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP. A reação magnésio-térmica do tetrafluoreto de urânio permite que se obtenha o metal urânio de uma forma eficaz e com qualidade nuclear. O rendimento compatível deve ser alto, devido ao alto custo agregado do material enriquecido isotopicamente. Objetiva-se também aumentar o rendimento da redução na bomba de reação para se evitar etapas químicas posteriores para recuperação de metal agregado na escória de redução. Desenvolve-se uma simulação de aporte térmico e termodinâmico. Mostrou-se que se deve atingir níveis de temperatura da ordem de  $1500^{\circ}C$  no momento da reação. Conclui-se que a produção de urânio metálico enriquecido é factível, com possibilidade de se atingir níveis de rendimento que são da ordem de 90%.

## INTRODUÇÃO

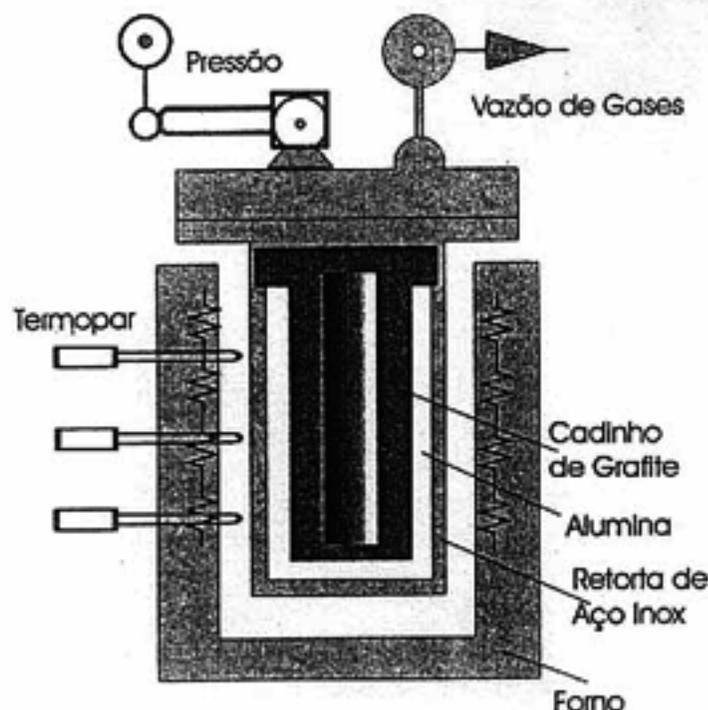
A obtenção de urânio metálico enriquecido é uma etapa essencial para que o programa de modernização do reator IEA-R1 seja executado. Necessita-se urânio metálico enriquecido para fabricação de elemento combustível à base de siliceto de urânio (>80% de  $U_3Si_2$ ). Isto possibilitará um aumento de potência deste reator de 2MW para 5MW. Para viabilizar a fabricação de combustíveis vem sendo desenvolvida, no IPEN, a tecnologia de obtenção de urânio metálico enriquecido (20% em peso de  $^{235}U$ ) [ 1].

Iniciou-se, em novembro de 1995, uma sequência de experiências para se produzir urânio metálico natural, visando-se estabelecer as bases de um processamento futuro de urânio metálico enriquecido a 20% de  $^{235}U$ . Estas experiências objetivam otimizar o reator de redução e os parâmetros de processo para atender as especificações em termos das presenças de impurezas e melhorar o rendimento do processo.

Em uma primeira fase, fez-se o projeto de um novo reator para conter uma massa sub-crítica com no máximo 3kg de urânio metálico contido. Foram feitas simulações, em pressão ambiental, do aquecimento no interior do reator, para se obter o gradiente de temperatura no processo anterior ao da reação magnésio-térmica. Nesta fase do aquecimento, ocorre desumidificação da carga e dos demais componentes internos da bomba (grafite e alumina). A inadequação do processo de desumidificação implica em um rendimento baixo por oxidação de urânio pela água.

As reduções magnésio-térmicas estão ainda curso, mas já se obtiveram resultados consistentes de rendimentos maiores que 85% em peso de urânio. Discute-se também, neste trabalho, a sequência experimental para a futura produção do urânio enriquecido.

A tecnologia de fabricação de urânio metálico de pureza nuclear emprega a redução magnésio-térmica do tetrafluoreto de urânio ( $UF_4$ ). A produção de  $U_3Si_2$  é feita em um forno a vácuo, tipo Sindus, que permite a obtenção da liga fundida a partir do urânio obtido pela magnesioterma adicionado da quantidade necessária de silício para gerar o



**Figura 1 - Desenho esquemático da Bomba de Redução para produção de Urânio Metálico.**

Foi feito um estudo de aquecimento em vazio, dentro da bomba de redução, para se conhecer e modelar o aumento de temperatura do material no centro da carga. Tenta-se analisar com isto o padrão de temperatura necessário para deflagração do processo de magnesioterapia. Utilizou-se, para isto, no corpo do cadinho, um substrato de alumina em pó, com um termopar central. A bomba ficou fechada, mas não lacrada. A Fig. 2 mostra um gráfico de aquecimento com as curvas médias de evolução da temperatura, da setagem do equipamento, dos termopares externos à bomba e do termopar colocado no centro do cadinho.

Em relação ao volume interno do cadinho de grafite, houve um aumento gradativo de volume desde a primeira experiência até a quarta. Nesta última experiência, ele atingiu o nível desejado de aproximadamente 3800 cm<sup>3</sup> de área útil interna carga. Este nível deverá ser mantido doravante, pois se considera otimizado para o nível de produção almejado (máx.3kg por redução).

**TABELA 1 - Quadro de Experiências Magnésio-térmicas para produção de Urânio Metálico**

<i>Programa</i>	Experiências UN01 a UN05. Produção de Urânio Metálico não enriquecido com no máximo 3kg de produto metálico. Parametrização do processo produtivo.
<i>Objetivo</i>	Reduzir uma carga de 6kg da mistura UF <sub>4</sub> +Mg
<i>Preparação</i>	Briquetes de Ø100x50mm, com uma carga de 20 tf. Prensa da Usina
<i>Cadinho</i>	Variação gradativa do diâmetro interno do cadinho, desde a experiência UN01 até a UN04. A partir desta experiência se mantém constante até a UN10.
<i>Operação</i>	Forno ligado as 6h30, com setagem para 550°. As 8hs, mantém-se o patamar 550°C por 4 horas, segue-se um aquecimento para 1000°C por mais 4 horas. Registra-se o momento da reação em torno das 14h30-15h00. Desliga-se o sistema às 17hs.
<i>Rendimento</i>	de 84,2% a 90,3%
<i>Produto</i>	Dingotes com densidade aparente variável de 17,9 a 18,3g/cm <sup>3</sup> . Aparência superficial boa. Boa separação metal-escória.

intermetálico desejado U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>. No IPEN, já se produziu urânio metálico natural anteriormente, em escala produtiva. Chegou-se a produzir dingotes de até 100kg. Atualmente, a produção deste elemento será feita por reduções que não serão maiores do 3kg de urânio enriquecido, devido às restrições impostas pelo reprocessamento isotópico e aos níveis de criticalidade envolvidos. Objetiva-se, no entanto, um produto de alta pureza nuclear, e com alto rendimento de processo, devido ao custo envolvido neste material.

### PLANO EXPERIMENTAL

Planejou-se uma sequência experimental de 10 reações magnésio-térmicas, com UF<sub>4</sub> natural (sem enriquecimento), em bombas de redução. Portanto, o presente trabalho apenas registra os primeiros resultados já obtidos e mostra os parâmetros que já foram conseguidos até a quinta experiência. Nos próximos ciclos operacionais, serão simuladas as condições obtidas até o presente momento (Maio 96).

Foi projetado e construído um novo reator de redução, em aço refratário de dimensões compatíveis com a redução de quantidades relativamente pequenas de urânio. Os componentes internos do reator são constituídos de peças de grafite e material refratário. A Fig. 1 mostra um desenho esquemático do conjunto.

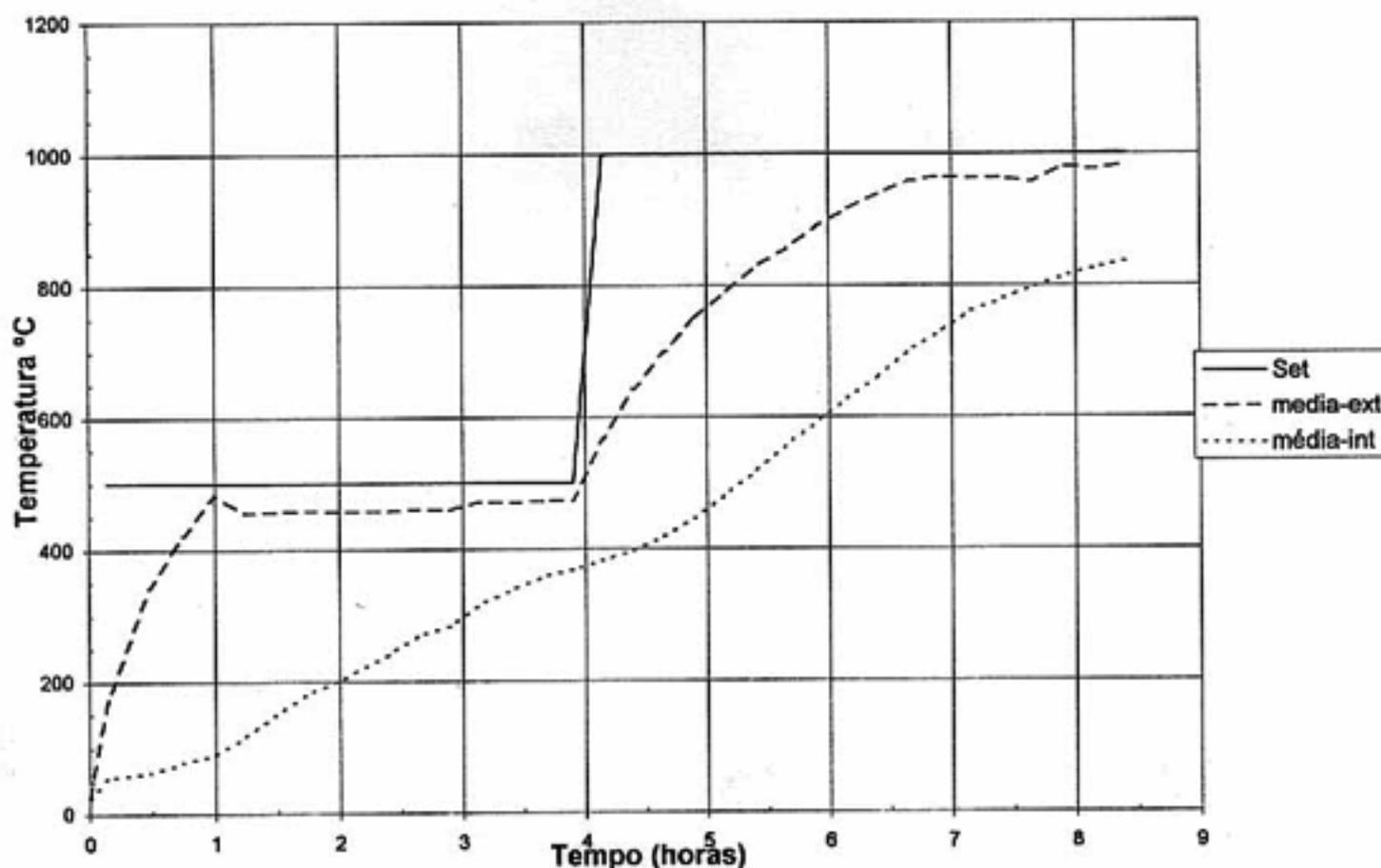


Figura 2 - Curva de Aquecimento sem carregamento.

Mostram-se tres curvas: a curva de ajustagem (set) da temperatura desejada no painel do equipamento, a curva média da temperatura dos pirômetros externos (média-ext) e a curva da média de temperatura interna (media-int).

**Redução de Urânio Metálico.** A carga da mistura ( $UF_4 + \sim 17\%$  em peso de Mg) é feita em briquetes cilíndricos. Estes briquetes são obtidos por prensagem em uma prensa hidráulica com carga de 20tf ( $\sim 64 \text{ kg/cm}^2$ ) tendo dimensões de  $\varnothing 100 \times 50 \text{ mm}$ . Faz-se controle dimensional e de peso de todo este material produzido. A carga total consta de aproximadamente 7 briquetes. O material residual, desagregado dos briquetes, é colocado nos interstícios da bomba ou na base inferior do cadinho, de tal forma a preencher toda a coluna interna do cadinho. Uma vez fechado o sistema, o conjunto é mantido lacrado. Coloca-se o material em um forno vertical e com aquecimento por resistências. Controla-se a partir daí a evolução externa da temperatura e a pressão interna através de um manômetro de relógio. A água é liberada pelo sistema através de uma válvula de alívio de pressão (ajustada para 0,5atm). O vapor de água que sai do sistema por esta válvula é recolhida através de borbulhamento em um béquer. Nota-se que esta liberação da umidade do sistema ocorre até aproximadamente os primeiros 200 min após o início de aquecimento da bomba.

Na Tabela 1 estão os resultados experimentais globais. Estes dados já nos parametrizam para as demais experiências em curso.

Após o desligamento do forno, o material é extraído após o esfriamento completo da bomba. Espera-se em torno de 36 horas. Todo o processo de abertura e extração do dingote é manual. Faz-se a pesagem e encaminham-se as amostras para os laboratórios para a análise química e metalográfica. A avaliação do teores de contaminação e

controle metalográfico destas corridas serão apresentados futuramente, bem como, toda a caracterização do produto.

Apresenta-se na Fig. 3 a evolução típica de temperatura de uma bomba dentro do processo normal de aquecimento. Mostra-se neste diagrama o momento da reação.

## ANÁLISE DOS RESULTADOS

**Simulação da Temperatura de Redução.** Baseando-se no modelo cilíndrico de transmissão de calor, conforme sugerido por Poirier & Geiger [2], considera-se um perfil de transferência de calor em um anel cilíndrico. Simplificou-se o modelamento, sem perda de muita precisão, que todo o conjunto bomba, alumina e cadinho de grafite fosse um único corpo. A única forma de transmissão de calor considerada é a condução térmica fluindo do exterior para o interior. Através deste modelo, chega-se que a temperatura em qualquer ponto do sistema é dada por:

$$T = T_s + (T_o - T_s) \frac{\ln\left(\frac{r}{r_s}\right)}{\ln\left(\frac{r_o}{r_s}\right)}$$

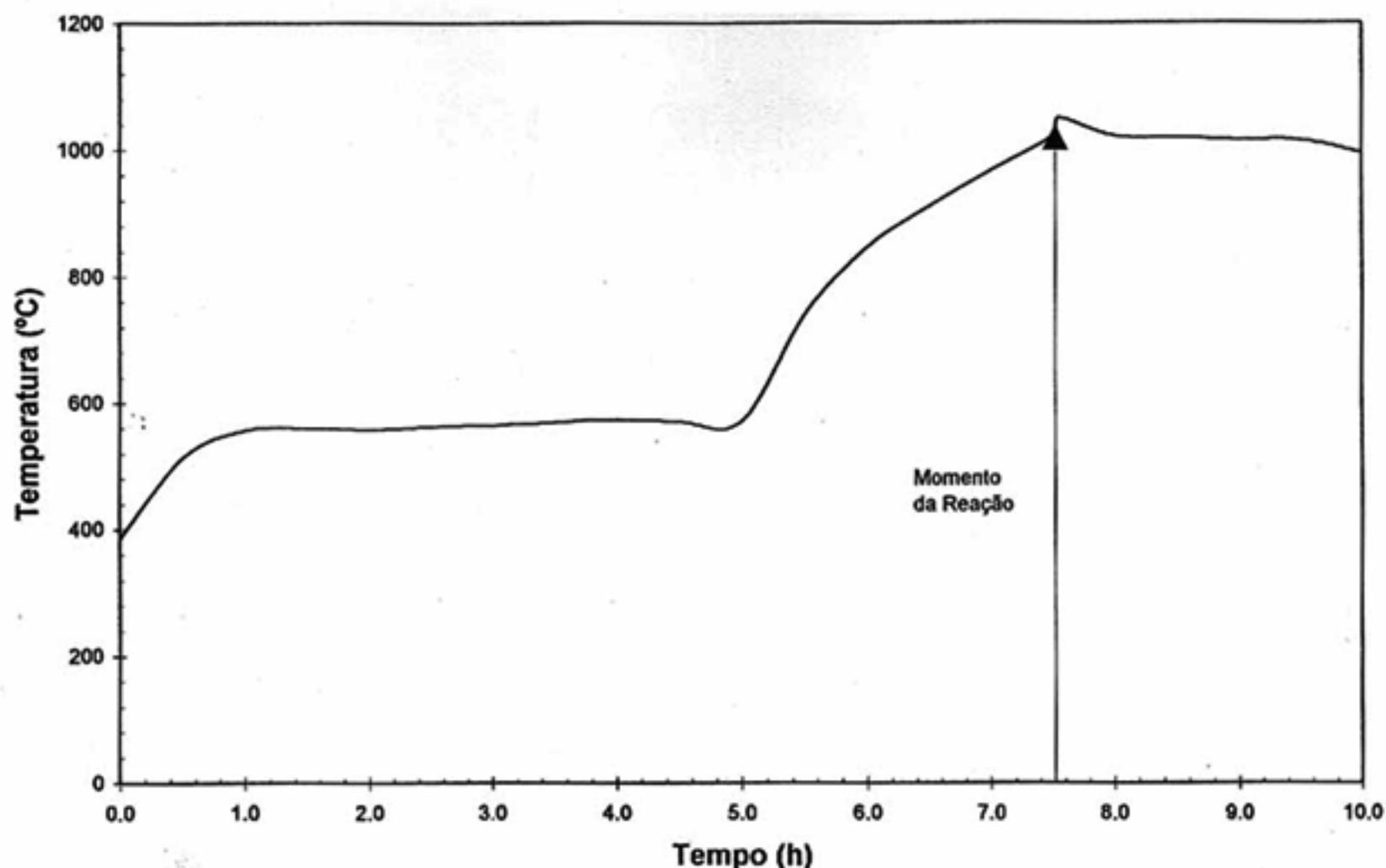
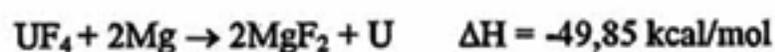


Figura 3 - Curva de Aquecimento com carga. Curva típica das experiências realizadas.

Onde  $T$  é a temperatura em qualquer ponto do bloco,  $T_s$  é a temperatura na superfície do bloco,  $T_o$  é a temperatura no centro do bloco,  $r$  é o raio a partir do centro de carga e  $r_o$  e  $r_i$  são respectivamente os raios internos e externos do anel cilíndrico considerado para o modelamento. O resultado desta simulação para a região interna do cadinho está apresentado na Fig. 4. A região tomada como referência foi em torno de 60mm, para cálculo da temperatura, pois é a região onde o material atingiria a condição inicial de reação (interface da parede do cadinho com o material). Logo a reação se dá do diâmetro mais externo para o centro do briquete. Pela observação experimental, sabe-se que a reação ocorre após 400 min de aquecimento por este esquema, deduz daí que a região de temperatura crítica é da ordem de 800°C. Como se mediu na verdade alumina no centro do cadinho, e na realidade a substância majoritária no processo real é o  $UF_4$  e que tem a condutividade térmica com uma ordem de grandeza menor que a alumina, conclui-se que a temperatura real atingida deva ser em torno de 650 a 750°C, quando então deflagra-se a reação.

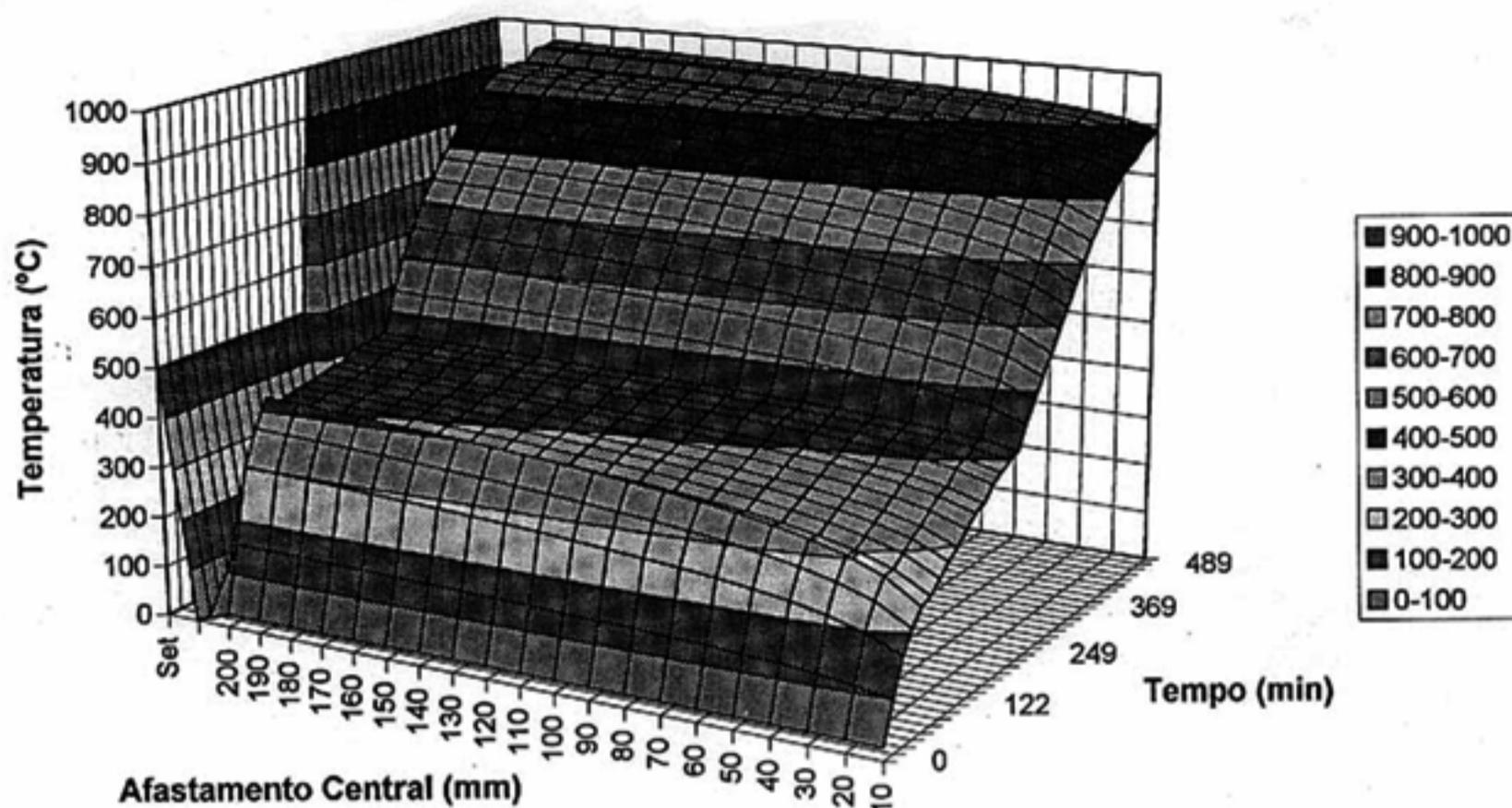
Considerando-se a reação magnésio-térmica [3]:



Como o calor liberado se transforma em acréscimo de temperatura e sabendo-se que o calor específico médio molar dos produtos é 48 cal/K entre 500-1750K, tem-se o aumento de temperatura esperada para esta reação seja de 1038°C. Espera-se, portanto, que no caso específico dessa montagem experimental que se atinja temperaturas da ordem de 1750°C, logo após a reação. Este nível de temperatura é suficiente para fundir não só o urânio formado, mas também a escória de  $MgF_2$  que se funde a 1263°C. Constatou-se, na observação experimental que todos os produtos da reação realmente se fundiram e separaram adequadamente.

**Reduções Experimentais.** Considerando-se apenas as cinco primeiras primeiras experiências realizadas, nota-se que houve uma evolução em relação ao rendimento de urânio metálico. Registra-se na literatura [4, 5] valores da ordem de 93 a 97%, como rotineiros. Não se sabe se este nível de rendimento tão alto será atingido, mas isto é parte da parametrização e controle que se fará doravante. Um trabalho técnico a ser publicado futuramente relatará a caracterização químico-física e metalográfica do urânio metálico produzido nesta escala experimental.

O rendimento da reação também é afetado pela água de cristalização presente na molécula de  $UF_4 \cdot nH_2O$  ( $n$  pode variar de 1 a 5). Vendo sendo desenvolvido um trabalho de otimização do processo de obtenção do  $UF_4$  e de caracterização dos produtos obtidos, inclusive por análise térmica diferencial, com o objetivo de caracterizar a quantidade de



**Figura 4 - Simulação da Temperatura na Bomba de Redução.**

O afastamento central significa a distância em milímetros que se afasta do ponto central do cadinho. O *set-point* do forno está indicado esquematicamente no eixo de temperatura.

água presente na forma de água adsorvida ou de cristalização e de avaliar o rendimento de modo mais preciso.

A produção de urânio metálico enriquecido a 20% é vista como factível, face aos resultados obtidos em 5 testes satisfatórios realizados no IPEN de um grupo de testes previstos com urânio natural. O nível de rendimento esperado em produção normal deve ser acima de 90%. A alotropia isotópica não deve influenciar no processo como um todo. O único parâmetro condicionante neste caso é o custo agregado ao material enriquecido. Por isto todas as simulações são feitas em material natural, objetivando o maior rendimento possível. No entanto, o rendimento do processo não indica perda de urânio, pois ele poderá ser recuperado a partir de processamento químico nas escórias produzidas no processo.

### CONCLUSÕES

É possível se simular o comportamento térmico de uma bomba de redução de urânio. O trabalho experimental de controle de temperatura mostrou que a temperatura de

início da redução magnésio-térmica deve ocorrer numa faixa de temperatura entre 650 a 750°C. A temperatura após a reação deve atingir o nível de 1750°C, em função da exotermicidade da reação. Certamente, isto aconteceu nos experimentos, pois o nível de pureza e densidade do urânio produzido foi alto, bem como se teve uma separação nítida de escória e metal, provando que esta separação ocorreu em estado líquido. Estima-se que tenha sido da ordem de 1500°C, pois a escória formada estava bem líquida e com baixa viscosidade.

Conclui-se também que é possível se produzir urânio metálico, com rendimento razoável, no nível de 90% em material metálico. Podendo-se atingir níveis maiores com recuperação química do metal via processamento químico das escórias produzidas.

### REFERÊNCIAS

- [1] LAINETTI, P.E. O. ET ALLI, Desenvolvimento do Processo de Fabricação de Miniplacas com Alta Concentração de Urânio contendo  $U_3Si_2$ , Proce-

dings of V CGEN, September, 1994, Rio de Janeiro, pg. 597-602

- [2] POIRIER, D.R. E GEIGER, G.H., **Transport Phenomena in Materials Processing**, TMS Publication, 1994, EUA
- [3] RAND, M.H. AND KUBASCHEWSKI, O., **The Thermochemical Properties of Uranium Compounds**, Oliver&Boyd, London, 1963
- [4] FREITAS, C. T. **Redução de Tetra-Fluoreto de Urânio por magnésio; Estudo experimental da influência de algumas variáveis.**, Metalurgia ABM, vol24, 123, Fev.1968, pg.131-137.
- [5] BELTRÁN, A.D. ET ALLI, **Fabricacion de Uranio Metal**, *Energia Nuclear*, Public. JEN,XVI,Jan-Fev.72, nº75, pg.295-320

#### ABSTRACT

The production of metallic uranium is an important step to produce  $U_3Si_2$ . This alloy will be used in the fabrication of fuel elements for the research nuclear reactor IEA-R1 of IPEN/CNEN-SP. The magnesiothermic reaction of uranium tetrafluoride allows to obtain metallic uranium efficiently and with nuclear grade. The yield is expected to be high, because the cost of isotopically enriched material is high. It is aimed to improve the reaction yield inside the reduction bomb to avoid following chemical steps for recovering of metal from the reduction slag. A thermal and thermodynamical approach simulation was developed. It was found that a 1500°C temperature level is reached in the moment of reduction. It was concluded that the production of enriched metallic uranium is feasible, with possibilities of reaching levels of yield around 90%.