



**REDUÇÃO DE TETRA-FLUORETO DE URÂNIO POR
MAGNÉSIO; ESTUDO EXPERIMENTAL DA
INFLUÊNCIA DE ALGUMAS VARIÁVEIS**

CLAUER TRENCH DE FREITAS

PUBLICAÇÃO IEA N.º 155⁶
Fevereiro — 1968

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"
SÃO PAULO — BRASIL

REDUÇÃO DE TETRA-FLUORETO DE URÂNIO POR MAGNÉSIO; ESTUDO
EXPERIMENTAL DA INFLUÊNCIA DE ALGUMAS VARIÁVEIS

Clauer Trench de Freitas

Divisão de Metalurgia Nuclear
Instituto de Energia Atômica
São Paulo - Brasil

Publicação IEA nº 155
Fevereiro - 1968

Separata de "METALURGIA - REVISTA DA ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE METAIS", vol. 24, nº 123,
fevereiro, p. 131-137, 1968.

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof. Uriel da Costa Ribeiro

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof. Dr. Luis Antonio da Gama e Silva

Instituto de Energia Atômica

Diretor: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IEA

Prof. Dr. José Moura Gonçalves	}	pela USP
Prof. Dr. José Augusto Martins		
Prof. Dr. Rui Ribeiro Franco	}	pela CNEN
Prof. Dr. Theodoro H. I. de Arruda Souto		

Divisões Didático-Científicas

Divisão de Física Nuclear -

Chefe: Prof. Dr. Marcello D. S. Santos

Divisão de Radioquímica -

Chefe: Prof. Dr. Fausto Walter de Lima

Divisão de Radiobiologia -

Chefe: Prof. Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni

Divisão de Metalurgia Nuclear -

Chefe: Prof. Dr. Tharcísio D. S. Santos

Divisão de Engenharia Química -

Chefe: Lic. Alcídio Abrão

Divisão de Engenharia Nuclear -

Chefe: Engº Pedro Bento de Camargo

Divisão de Operação e Manutenção de Reatores -

Chefe: Engº Azor Camargo Penteado Filho

Divisão de Física de Reatores -

Chefe: Prof. Paulo Saraiva de Toledo

Divisão de Ensino e Formação -

Chefe: Prof. Rui Ribeiro Franco

REDUÇÃO DE TETRA-FLUORETO DE URÂNIO POR MAGNÉSIO; ESTUDO
EXPERIMENTAL DA INFLUÊNCIA DE ALGUMAS VARIÁVEIS

Clauer Trench de Freitas

RESUMEN

Los estudios experimentales realizados en la Divisão de Metalurgia Nuclear, del Instituto de Energia Atômica, tuvieron por objetivo determinar la influencia de las principales variables sobre el rendimiento de la producción de uranio metálico por la reducción de su tetra-fluoruro por magnésio, visando el proyecto y construcción de bombas para la producción de cargas de 10 a 20 kg de metal. El interés, por la producción de uranio en mayor escala está relacionado con el funcionamiento, esperado para dentro de breve tiempo, del horno eléctrico de inducción, para fusión y lingotaje en vacío, que, se encuentra actualmente en montaje en los laboratorios de la División.

Fueron estudiados los rendimientos de producción de uranio para dos tipos diferentes de tetra-fluoruro de uranio, resultantes de diferentes procesos de fabricación, determinándose también la influencia del exceso de magnésio y de la densidad de carga, inclusive aumentada por medio de briquetaje. También fueron considerados los efectos de la velocidad de calentamiento de las bombas, de su tipo de cierre y de revestimiento.

Las experiencias se realizaron en bombas de una capacidad de carga de cerca de ... 1,5 kg, las cuales fueron proyectadas y construidas en el IEA englobando diversos perfeccionamientos resultantes de trabajos anteriores desarrollados en ese Instituto.

Fueron consideradas también las condiciones para un adecuado control del desarrollo de reacción de reducción, empleándose método acústico y térmico.

Los resultados obtenidos mostraron que los rendimientos de reacción varían sensiblemente con el tipo de UF_4 utilizado, con las densidades de cargas y las velocidades de calentamiento de las mismas. El control acústico de reacción demostró plenamente satisfactorio.

RESUME

Les études expérimentales réalisées dans la Divisão de Metalurgia Nuclear de l'Instituto de Energia Atômica ont eu comme objet la détermination de l'influence des principales variables sur le rendement de la production d'uranium métallique par réduction de son tétra-fluorure par magnésium ayant pour but le projet et la construction de pompes à production de charges de 10 à 20 kg de métal. L'intérêt à la production d'uranium en plus large échelle est relationné avec le fonctionnement, attendu en peu de temps, du four électrique à induction pour la fusion et lingotage sous vide, qui est en ce moment en train d'être mis au point dans les laboratoires de la Divisão.

On a étudié les rendements de la production d'uranium par deux différents types de tétra-fluorure d'uranium résultants de procédés différents de fabrication, en déterminant aussi l'influence de l'excès de magnésium et de la densité de charge, qui est aussi augmentée par le moyen de briquetage. On a aussi considéré les effets de la vitesse de chauffage des pompes, de son type de fermeture et de revêtement. Les expériences se sont réalisées dans des pompes à capacité de charge d'environ 1,5 kg, qui ont été projetées et construites à l'IEA, comme résultat de plusieurs perfectionnements réalisés dans cet Institut.

On a considéré aussi les conditions d'un contrôle convenable du développement de la réaction de réduction, en employant la méthode acoustique et thermique.

Les résultats obtenus ont montré que les rendements de réaction varient sensiblement avec le type de UF_4 utilisé, avec les densités des charges et les vitesses de chauffage de celles-ci. Le contrôle acoustique de réaction s'est prouvé bien satisfaisant.

ABSTRACT

The experimental studies carried out at the Divisão de Metalurgia Nuclear of the Instituto de Energia Atômica had as objective to determine the influence of the principal variables upon the efficiency of the production of metallic uranium by the reduction of its tetra-fluoride by magnesium, designing and making bombs for the production of charges of 10 to 20 kg of metal. The interest by a larger scale production of uranium is related to the further utilization, of the induction vacuum furnace which is presently being assembled, at the plant of the Division.

The efficiencies of the production of uranium for two different types of uranium

tetra-fluoride due to different processes of fabrication were studied. The influence of the excess of magnesium and of the density of the charge, increased by briquetting were also determined. The effects of the rate of heating of the bombs, of their type of closing and of lining were also considered. The experiences were carried out in bombs with charges of about 1,5 kg. The bombs were designed and made at the I.E.A., considering different improvements resulted of previous experience in this Institute. The conditions for an adequate control of the development of the reduction reaction, using acoustic and thermal method were also considered.

The data obtained showed that the efficiencies of reaction change markedly with the UF_4 utilized, for the same densities of charge and the rates of heating. The acoustic control of reaction was very satisfactory.

REDUÇÃO DE TETRA-FLUORETO DE URÂNIO POR MAGNÉSIO; ESTUDO EXPERIMENTAL DA INFLUÊNCIA DE ALGUMAS VARIÁVEIS ⁽¹⁾

CLAUER TRENCH DE FREITAS ⁽²⁾

R E S U M O

Os estudos experimentais realizados na Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica objetivaram determinar a influência das principais variáveis sobre o rendimento da produção de urânio metálico pela redução de seu tetra-fluoreto por magnésio, visando o projeto e construção de bombas para a produção de cargas de 10 a 20 kg de metal. O interesse pela produção de urânio em maior escala está relacionado com o funcionamento, esperado para dentro em breve, do forno elétrico de indução, para fusão e lingotagem sob vácuo, que se encontra presentemente em montagem nos laboratórios da Divisão.

Foram estudados os rendimentos de produção de urânio para dois tipos distintos de tetra-fluoreto de urânio, resultantes de processos diferentes de fabricação, determinando-se também a influência do excesso de magnésio e da densidade da carga, inclusive aumentada por meio de briquetagem. Foram ainda considerados os efeitos da velocidade de aquecimento das bombas, de seu tipo de fechamento e de revestimento. As experiências realizaram-se em bombas com a capacidade de carga de cerca de 1,5 kg, as quais foram projetadas e construídas no I.E.A. englobando diversos aperfeiçoamentos resultantes de trabalhos anteriores desenvolvidos nesse Instituto.

Foram consideradas também as condições para um adequado controle do desenvolvimento de reação de redução, empregando-se método acústico e térmico.

Os resultados obtidos mostraram que os rendimentos de reação variam sensivelmente com o tipo de UF_4 utilizado, com as densidades das cargas e as velocidades de aquecimento das mesmas. O controle acústico de reação demonstrou-se plenamente satisfatório.

1. INTRODUÇÃO

Estudos experimentais de produção de urânio figuram no programa da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica e nela vêm sendo desenvolvidos desde 1963. Visam principalmente a obtenção da necessária experiência para a fabricação de elementos combustíveis que empregam ligas à base de urânio. Observe-se que esse tipo de combustível nuclear tem sido extensivamente empregado pela "United Kingdom Atomic Energy Authority", na Inglaterra, e pelo "Commissariat à l'Energie Atomique" da França, para a produção de energia átomo-elétrica. Tem tido também amplo emprego em reatores de pesquisa e em conversores plutonígenos.

Os primeiros trabalhos experimentais brasileiros, referentes à produção de urânio metálico, foram realizados em junho de 1960, no Instituto de Pesquisas Tecnológicas de São Paulo. As experiências desenvolvidas no Instituto de Energia Atômica, até junho de 1964, acham-se descritas em contribuição técnica apresentada ao XIX Congresso de Associação Brasileira de Metais ¹.

Nesta fase foi possível obter blocos metálicos de até 485 g de urânio.

2. OBJETIVOS DO PROGRAMA EXPERIMENTAL

Conforme foi demonstrado em contribuição técnica já citada ¹, os rendimentos obtidos na produção de urânio metálico por redução do tetra-fluoreto de urânio por magnésio variaram entre 55 e 93%. O limite superior pode ser considerado um valor bastante elevado, principalmente ao se levar em conta a escala das experiências realizadas, com cargas de apenas 1100 g de UF_4 e magnésio.

O programa recentemente desenvolvido no Instituto de Energia Atômica teve como principal objetivo estudar a influência de determinadas variáveis de processo no rendimento da reação:



Procurou-se também determinar o comportamento de diferentes tipos de tetra-fluoreto de urânio, caracterizar condições para um adequado controle acústico ou térmico da operação de redução, no momento de ignição e estudar a estrutura das bombas utilizadas, no decorrer de séries de experiências. Foram ainda estabelecidas bases para o projeto de bombas com capacidade de 10 a 20 kg de metal e, finalmente, verificou-se a possibilidade de empregar nas mesmas revestimentos refratários moldados, nas partes internas.

(1) Contribuição Técnica n.º 730. Apresentada ao XXII Congresso Anual da ABM, Vitória, ES, 3 a 7 de julho 1967.

(2) Membro da ABM; Engenheiro Civil e Engenheiro Nuclear, Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.

3. MATERIAIS UTILIZADOS

Magnésio — Empregou-se magnésio importado dos Estados Unidos. Foi produzido pelo processo Pidgeon e sua pureza torna possível a produção de urânio nuclearmente puro. A granulometria do material está indicada na tabela I.

TABELA I — Análise Granulométrica do Magnésio Utilizado

Fração granulométrica (malhas por polegada)	Porcentagem (%)	Porcentagem acumulada (%)
⊙ + 9	1,2	1,2
— 9 + 20	79,0	80,2
— 20 + 35	18,0	98,2
— 35 + 65	1,0	99,2
— 65	0,8	100,0

Tetra-fluoreto de urânio — Foram utilizados materiais de duas procedências: a) importado do Canadá, de um dos produtores comerciais de tetra-fluoreto de urânio, obtido provavelmente por reação de HF gasoso em reatores contínuos do tipo "fluid-bed reactor"; b) importado da Alemanha, produzido em unidades semi-contínuas e de menor capacidade que as canadenses. Designaremos o material canadense como "UF₄ tipo C" e o alemão como "UF₄ tipo A". As densidades aparentes dos pós dos dois tipos apresentam valores bem distintos, constantes da tabela II. Tais valores foram obtidos determinando-se as densidades de 20 g de material colocados em cilindro de vidro graduado, de 20 mm de diâmetro; o índice d_b corresponde à densidade obtida após vinte quedas sucessivas do cilindro, de uma altura de 5 cm, sobre um suporte de cortiça; o índice d₁ corresponde ao valor limite de densidade, para quedas repetidas, nas mesmas condições anteriores; d_s é a densidade do material, simplesmente depositado no cilindro.

TABELA II — Densidades aprantes dos dois tipos de UF₄ utilizados

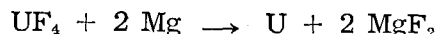
Índices	UF ₄ tipo A	UF ₄ tipo C
	densidades	(g/cm ³)
d _s	1,7	2,2
d _b	2,0	3,0
d ₁	2,1	3,2

4. OBTENÇÃO DE URÂNIO METÁLICO

O processo empregado encontra-se exposto detalhadamente em contribuição técnica apresentada ao XIX Congresso da Associação Brasileira

de Metais¹. Não difere, em suas linhas gerais, do comumente utilizado nos Estados Unidos da América.²

Preparo da Carga — Foi feito com base nas massas necessárias de reagentes, utilizando-se excessos de magnésio variáveis entre 2,5 e 10%, sobre a quantidade estequiométrica, obtida considerando-se a reação:



A mistura do UF₄ e do magnésio foi feita em recipientes de polietileno, de dois litros de capacidade 12 cm de diâmetro, a 86 rpm, durante uma hora, em dispositivo acionado por motor elétrico.

Em algumas experiências foi feita briquetagem da carga com a finalidade de aumentar sua densidade. As pressões de compactação variaram entre 1,3 e 3,8 t/cm².

Bomba para redução — A reação tem de se desenvolver em bomba metálica, devido às altas pressões de vapor de magnésio reinantes durante o processo, no qual a temperatura alcança valores da ordem de 1350°C. Como nos primeiros trabalhos sobre o assunto, realizados no Instituto de Energia Atômica¹, foram empregados cadinhos de grafita, encerrados dentro da bomba. Entre o cadinho e a parede interna da bomba colocou-se uma camada de areia fina (granulometria correspondente a 100 malhas por polegada quadrada), com cerca de 2 mm de espessura. Realizou-se também uma experiência em que, em vez de se utilizar um cadinho usinado de grafita, revestiu-se a parede interna da bomba com grafita moldada; o resultado foi bastante satisfatório no que se refere ao aspecto do botão de urânio resultante e à integridade da estrutura da bomba.

As bombas descritas em¹ demonstraram poder resistir bem a cerca de três operações, sendo seu emprêgo assim limitado devido à deformação excessiva da tampa e do flange. Na série de experiências aqui consideradas pôde-se conseguir um aumento substancial na vida útil das bombas com o reforço das partes que apresentaram maior deformação, tendo sido possível realizar vinte operações com o modelo mostrado na figura 1.

A contaminação do urânio por carbono do cadinho, conforme⁴, deve ser da ordem de 310 ppm.

5. CONTRÔLE DA OPERAÇÃO DE REDUÇÃO

Efetou-se o contrôlo de duas maneiras: na primeira utilizou-se um conjunto de pares termo-elétricos; na segunda empregou-se um método acústico.

Controle por pares termo-elétricos — Foram empregados três pares termo-elétricos de cromel-alumel. Um deles encontrava-se a cerca de 5 cm da parede externa da bomba, fornecendo a temperatura do forno em que se realizava a operação. Os dois pares restantes localizavam-se respectivamente sobre a tampa, em seu centro, e na parede externa lateral, a um terço da altura, a contar da base.

A figura 2 mostra as indicações de temperaturas dos pares, em função do tempo. Note-se que há uma variação brusca nas temperaturas correspondentes à tampa e à parede lateral, maior para esta última, onde atingiu um valor da ordem de 40°C.

Note-se que em várias das experiências realizadas não foi possível detectar, com os pares termo-elétricos citados, quaisquer variações significativas de temperaturas, que pudessem indicar início de reação.

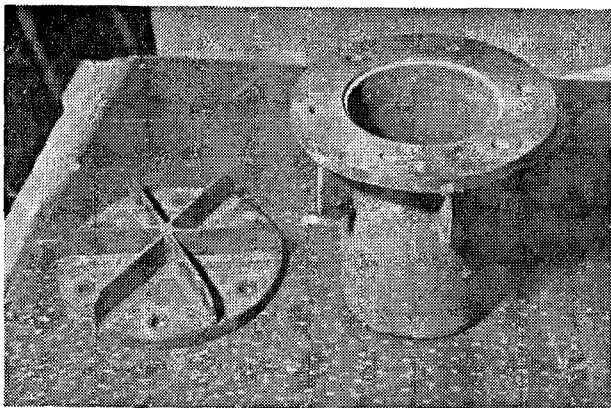


Fig. 1 — Modelo de bomba de redução, utilizado nas operações realizadas.

Contrôle acústico — Nas vinte e seis operações de redução realizadas, vinte e três foram acompanhadas de forte ruído, sempre associado a variações bruscas de temperaturas, quando estas puderam ser detectadas. Nas condições em que foram efetuadas as experiências, o controle acústico revelou-se muito mais seguro que o térmico, como indicador de início da reação.

A fim de melhor caracteriza a evolução da intensidade do ruído, registrou-se o mesmo em fita magnética, empregando-se gravador "National", de modelo RQ-102S. Por meio de aparelho "Graphic Level", tipo 1521-B, da General Radio Company, foi possível traçar gráficos de intensidade de ruído em função do tempo, um dos quais está apresentado na figura 3. Todas as gravações foram estudadas em osciloscópio, havendo evidência de correlação entre as indicações das curvas obtidas e os rendimentos das reações respectivas.

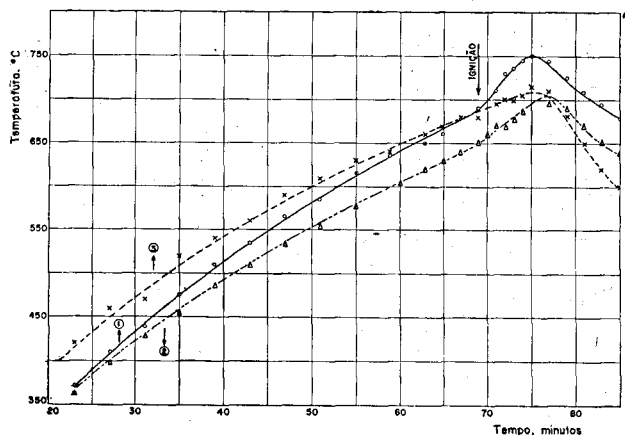


Fig. 2 — Temperaturas indicadas por pares termo-elétricos, no decorrer de operação de redução. As curvas 1, 2 e 3 correspondem a pares colocados respectivamente junto à parede lateral externa da bomba, sobre a tampa e a 5 cm da parede externa.

Curvas irregulares, desenvolvendo-se em tempos longos, corresponderam sistematicamente a rendimentos baixos. Alguns gráficos sugerem que a reação, embora rápida (em média com duração de cerca de quarenta segundos), pode se desenvolver em várias fases. Com efeito, na figura 3 por exemplo, constata-se três fortes picos de intensidade de ruído; verificou-se também que alguns botões de urânio obtidos, são constituídos por camadas superpostas de material, indicando que a reação se deu de forma descontinua.

Havendo interesse em se conhecer o mecanismo de propagação da reação⁴, por estar este relacionado com o rendimento respectivo, o método acústico de controle parece ser potencialmente interessante inclusive para melhorar a eficiência das operações de redução.

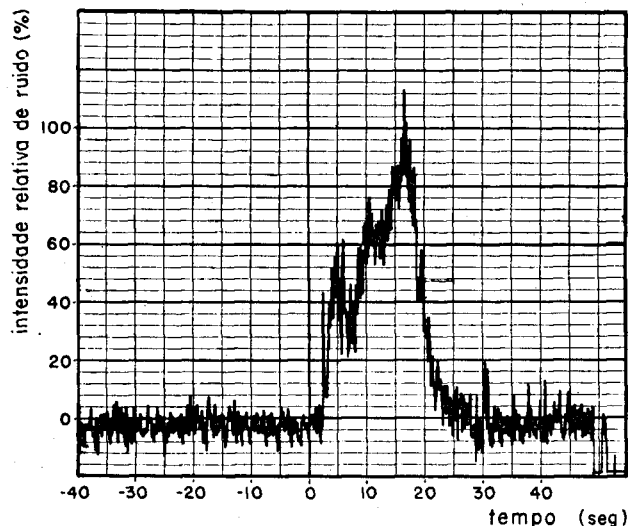


Fig. 3 — Intensidade relativa de ruído, desenvolvido na redução a partir do momento de ignição da carga. A intensidade zero corresponde à origem dos tempos.

6. VARIÁVEIS DE PROCESSO ESTUDADAS

Foram consideradas as seguintes variáveis de processo: excesso de magnésio, sobre o valor estequiométrico, densidade da carga e velocidade de aquecimento da bomba. Para o estudo destas variáveis foi empregado exclusivamente UF₄ tipo C. O parâmetro de comparação adotado foi o rendimento de reação, definido porcentualmente como a relação entre a massa de urânio obtida e aquela prevista por estequiometria, multiplicada por 100.

Para cálculo do rendimento tomou-se a massa do botão de urânio após este ter sido cuidadosamente limpo com pincel de fibras duras. Note-se todavia que parte da escória de fluoreto de magnésio e de magnésio aderidos, não puderam ser retirados dessa forma. Foi possível conseguir uma limpeza mais completa por imersão do botão em ácido nítrico diluído, mas o metal era atacado, embora fracamente.

A validade do critério adotado para determinação dos rendimentos pode ser demonstrada por experiências de reprodutibilidade de resultados.

Verificação da reprodutibilidade dos resultados: Os resultados obtidos nas experiências efetuadas para verificação de reprodutibilidade dos rendimentos, calculados segundo o critério citado anteriormente, constam da tabela III. Nela figuram valores correspondentes a duas séries de operações.

TABELA III — Estudo de reprodutibilidade de resultados

Característico	Série A	Série B
Massa de UF ₄ , g	1330	1060
Massa de Mg, g	220	149
Velocidade média de aquecimento, °C/min	5	10
Tempo de aquecimento até a ignição, min	118 ± 3	68 ± 2
Excesso de Mg, %	5	5
Número de reduções	3	2
Densidade da carga, g/cm ³ ...	2,8	2,8
Rendimento, %	89,5 ± 0,6	90,7 ± 0,4

Tendo em vista esses resultados, os valores dos rendimentos podem ser expressos com dois algarismos significativos.

Influência do excesso de magnésio: O excesso de magnésio sobre o valor estequiométrico, foi considerado no intervalo com extremos de 2,5

e 10%. A velocidade de aquecimento da bomba e a massa da carga permaneceram constantes, sendo respectivamente de 10°C/min e 1330 g. As densidades de carga variaram de cerca de 3%, devido aos diferentes teores de magnésio. Os resultados obtidos figuram na tabela IV.

TABELA IV — Influência do excesso de magnésio

(Velocidade de aquecimento da bomba = 10°C/min;
massa da carga = 1330 g)

Excesso de Mg %	Densidade da carga * g/cm ³	Temperatura de início de reação °C	Rendimento de redução %
2,5	2,9	700	90
5,0	2,9	690	90
7,5	2,8	700	89
10,0	2,8	700	91

* Trata-se do valor da densidade da carga já colocada na bomba.

Nas condições em que foram realizadas as experiências e sendo os erros na determinação dos rendimentos da ordem de 1%, conforme tabela III, não se constatou influência do excesso de magnésio sobre o rendimento de reação.

Influência da densidade da carga: As cargas foram adensadas por simples socagem e por briquetagem. Efetuou-se a briquetagem da carga em prensa mecânica, com capacidade para atingir até 30 toneladas. Compactaram-se pastilhas de 10 mm de diâmetro, utilizando UF₄ do tipo C, com 5% de excesso de magnésio. As densidades obtidas constam da tabela V:

TABELA V — Variação das densidades de pastilhas de UF₄ e magnésio, em função da pressão de compactação

Pressão t/cm ²	Densidade g/cm ³
1,3	3,72
2,5	3,83
3,8	3,85

As experiências desenvolveram-se com o emprego de cargas simplesmente condicionadas, sem adensamento, cargas compactadas no cadinho, por socagem, e cargas briquetadas, nas quais os interstícios entre as pastilhas foram preenchidos com material simplesmente condicionado. Mantiveram-se constantes o excesso de magnésio e a velocidade de aquecimento da bomba; os valores respectivos foram 5% e 10°C/min.

Os resultados obtidos figuram na tabela VI, em que se nota a sensível influência das densidades de cargas sobre os rendimentos respectivos. Observe-se ainda que a densidade da carga no cadinho aumenta de 2,9 para 3,3 g/cm³ (14%), quando o material é briquetado.

TABELA VI — Variação do rendimento de reação em função das densidades de carga

Carga	Massa g	Densidade g/cm ³	Temperatura de início de reação °C	Rendimento %
Como condicionada	1061	2,9	690	90
Compactada no cadinho	1120	3,0	690	92
Briquetada	1226	3,3	675	97

Pode-se pois concluir que os rendimentos aumentam para valores crescentes das densidades de carga.

Influência da velocidade de aquecimento da bomba: Consideraram-se velocidades de aquecimento entre 4 e 10°C/min. Mantiveram-se constantes o excesso de magnésio (5%) e a densidade de carga (2,8 g/cm³). Os resultados obtidos figuram na tabela VII.

TABELA VII — Influência da velocidade de aquecimento da bomba no rendimento da reação

Velocidade de aquecimento °C/min	Temperatura de início de reação °C	Rendimento %
4,0	650	86
5,0	635	85
8,6	700	87
10,0	700	91

O efeito da velocidade de aquecimento, no intervalo considerado é pois sensível, havendo aumento de rendimento para velocidades crescentes.

7. REDUÇÕES DE CARGAS CONTENDO UF₄ DO TIPO A

Procederam-se a várias reduções de cargas contendo UF₄ do tipo A. Não foi possível determinar os respectivos rendimentos, por impossibilidade de separar o urânio da escória formada na operação.

8. CONCLUSÕES

1. Das três variáveis de processo estudadas, a densidade de carga foi a que demonstrou ter maior influência nos rendimentos de redução. Constatou-se aumento dos valores dos rendimentos, para densidades crescentes.

2. Os rendimentos de reação aumentam para velocidades crescentes de aquecimento das bombas, para o intervalo de 4 a 10°C/min.

3. Para excessos de magnésio variando entre 2,5 e 10%, a variação no rendimento de redução é inferior ao valor do erro experimental ($\approx 1\%$).

4. A briquetagem de cargas constituídas por misturas de UF₄ do tipo C e magnésio, é facilmente executada em prensa mecânica.

5. O UF₄ do tipo C possibilitou rendimentos de reação até da ordem de 97%. Com o UF₄ do tipo A os rendimentos foram muito baixos, tendo sido impossível determiná-los com precisão, devido à má separação do urânio da escória formada.

6. Os aperfeiçoamentos introduzidos no modelo de bomba empregado nos primeiros trabalhos realizados no Instituto de Energia Atômica, descritos em¹, permitiram aumentar substancialmente sua vida útil. Foi assim possível efetuar 20 reduções com a mesma bomba.

7. É possível revestir com grafita moldada as paredes internas das bombas de redução, podendo-se pois dispensar a onerosa utilização de cadinhos usinados.

8. A experiência adquirida em 26 operações de redução permitirá o projeto de bombas, com capacidade de 10 a 20 kg, sobre bases bastante sólidas, sobretudo no que concerne às deformações do material utilizado ao longo de sua vida útil.

9. O controle acústico do início de reação revelou-se perfeitamente realizável. O ruído correspondente é bastante intenso, tendo sido ouvido na maior parte das operações realizadas. O controle por pares termo-elétricos nem sempre foi possível, devido ao fato de em certas operações não terem ocorrido variações significativas de temperaturas.

AGRADECIMENTOS

O autor manifesta seu agradecimento pela colaboração prestada pelos engenheiros Dr. Heliton Motta Haydt, Erberto Francisco Gentile, José Deodoro Trani Capocchi e Sebastião Hermano Leite Cintra, da Divisão de Metalurgia do Instituto de Energia Atômica, nas pesquisas bibliográficas. Ressalta ainda o valioso auxílio recebido da parte do Sr. Ariosvaldo de Azevedo, no desenvolvimento dos trabalhos experimentais.

BIBLIOGRAFIA

1. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. & TRENCH DE FREITAS, C. — *Produção Experimental de Urânio e Tório Metálicos no Instituto de Energia Atômica*. METALURGIA, vol. 21, n.º 87, fevereiro, págs. 147-152, 1965.
2. WILKINSON, W. D. & MURPHY, W. F. — *Nuclear Reactor Metallurgy*. D. Van Nostrand Company, Inc. Princeton, New Jersey, págs. 28-32, 1958.
3. BEATTY Jr., K. O. & MAGOTEAUX, O. R. — *Thermal Conditions in the Bomb Reduction of UF₄ to Metal*. NLCO — 771 (TID - 4500, 14.ª edição), pág. 27, 1959.
4. NEU Jr., C. A.; BRODI, G.; MAGOTEAUX, O. R.; ELSTON, D. L. & TRAPP, J. R. — *A Semicontinuous Process for the Reduction of Uranium Tetrafluoride with Magnesium*. NLCO - 922 (TID - 4500, 38.ª edição), págs. 14-16, 1965.

DISCUSSÃO

MÁRIO RENNÓ GOMES (1) — Em primeiro lugar, desejo cumprimentar o Eng.º Clauer Trench de Freitas pelo trabalho realmente interessante que apresentou. Tive oportunidade de conhecer uma aplicação bastante curiosa desse registro acústico e perguntaria se já é uma técnica utilizada em processo como esse, ou se foi desenvolvido próprio, realizado pelo autor em seu trabalho.

CLAUER TRENCH DE FREITAS (2) — Na realidade, a literatura cita o controle de início de reação pelo método acústico, mas não consegui encontrar em nenhuma publicação o registro do nível de intensidade de ruído em função do tempo para um estudo sequer inicial de início de reação. Na Ref. 3 da Bibliografia da tese — *Thermal Conditions in the Bomb Reduction of UF₄ to Metal* — NLCO — Beatty Jr. chega mesmo a dizer, na página 27, que não há um método seguro de estudo de desenvolvimento da reação. Após o início, o mecanismo de propagação da reação é desconhecido. É exatamente a expressão que ele utiliza. Talvez a minha pesquisa bibliográfica não tenha sido suficientemente ampla, mas não encontrei referência alguma sobre estudo desse tipo. Entretanto, o controle de início de reação por método acústico desse tipo já é feito nos Estados Unidos; não é original.

M. R. GOMES — Pareceu-me interessante o método porque sobretudo ele apresenta uma resposta rápida, de vez que o controle termo-elétrico por essa forma é bem influenciável por vários fatores de propagação de calor; há uma defasagem, naturalmente.

Outra pergunta: na tabela I encontramos a análise granulométrica do magnésio utilizado, que é obtido pelo processo Pidgeon. Perguntaria: é o magnésio cristalizado nas retortas, depois submetido a processo de desagregação e moagem, ou teria tido preparação especial para esse fim?

C. T. FREITAS — Eu responderia citando uma observação que fiz do magnésio obtido por processo Pidgeon, pelo Eng.º Davi Gonçalves Oliveira, assistente do Prof. Tharcisio Damy de Souza Santos, que conseguiu desagregar magnésio obtido nas retortas Pidgeon em

granulometria muito próxima daquela que consta da tabela I. Mas na realidade desconheço as variáveis do processo Pidgeon desenvolvido no IPT e na Politécnica.

T. D. SOUZA SANTOS (3) — A sua observação é inteiramente correta. Trata-se de simples desintegração, por assim dizer, um corte grosseiro na coroa, que é como que desintegrada por uma ferramenta rápida de corte, simplesmente despregados os critais de magnésio aderente.

M. R. GOMES — E aproveita-se a cristalização coerente que se tem no processo Pidgeon para separar o magnésio.

OSWALDO STÊNIO CARDOSO DE SOUZA (4) — Em primeiro lugar, gostaria de obter do autor mais esclarecimentos sobre o que foi dito quanto à utilização futura do magnésio de procedência nacional; referiu-se a trabalho realizado pelo próprio IPT.

C. T. DE FREITAS — Exatamente. Esses trabalhos que vêm sendo desenvolvidos pelo Eng.º Davi Gonçalves de Oliveira, sob a direção do Prof. Tharcisio Damy de Souza Santos, foram iniciados no Instituto de Pesquisa Tecnológicas. Todavia, o histórico dos mesmos pode ser exposto com mais precisão pelo próprio Prof. Tharcisio, pelo que pediria novamente a sua colaboração.

T. D. SOUZA SANTOS — É um dos trabalhos que vêm sendo desenvolvidos com a colaboração do IPT e do Departamento de Metalurgia da Escola Politécnica, o estudo das variáveis da matéria-prima pelo processo Pidgeon, já desenvolvido há um tempo razoavelmente grande. Todo o equipamento foi construído, um conjunto especial de alto vácuo foi importado e isto deverá importar numa tese de doutoramento proximamente. O decurso desse estudo experimental temos utilizado cargas de poucos quilos para as experiências a que se referiu o Eng.º Clauer Trench de Freitas.

O. CARDOSO DE SOUZA — O estudo é de laboratório?

T. SOUZA SANTOS — Sim, é de laboratório, mas trabalhamos com cargas da ordem de quilos.

O. CARDOSO DE SOUZA — A segunda pergunta é quanto à reatividade do urânio, principalmente quanto a carbono, oxigênio e nitrogênio. Não há formação de compostos na superfície, que possam comprometer a qualidade do metal urânio?

C. T. DE FREITAS — Eu cito no desenvolvimento do trabalho que a literatura registra uma contaminação de carbono da ordem de 320 partes por milhão. Este valor é um tanto alto, embora esteja dentro das especificações de material nuclear, mas poderá ser consideravelmente reduzido se depositarmos sobre as paredes do cadinho de grafita camadas protetoras, como por exemplo, de zirconato de magnésio. Essa parte do estudo ainda não foi desenvolvida, mas certamente o será em futuro próximo. A única referência que tenho no trabalho, sobre contaminação de carbono, é de 320 p.p.m.. Não foi feito um estudo mais apurado, mas será realizado.

O. CARDOSO DE SOUZA — Qual a pureza do urânio obtido nessa redução?

(1) Diretor da ABM. Engenheiro de Minas, Metalurgia e Civil. Professor catedrático da Escola de Engenharia da UFMG; Belo Horizonte, MG.

(2) Membro da ABM e autor da CT. Engenheiro Civil e Nuclear; da Divisão de Metalurgia Nuclear do IEA; São Paulo, SP.

(3) Conselheiro da ABM, na presidência da sessão. Engenheiro metalurgista; Professor Catedrático e Diretor da Escola Politécnica da USP; Chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear do IEA; São Paulo, SP.

(4) Membro da ABM. Capitão Aviator e Engenheiro Industrial e de Metalurgia; Instituto de Pesquisas e Desenvolvimento do CTA; São José dos Campos, SP.

C. T. DE FREITAS — Partimos de um material de grande pureza, como citamos de início. O magnésio obtido pelo processo Pidgeon realmente apresenta as características adequadas para a obtenção de material nuclear. O UF₄ também, sem dúvida, mas ainda não temos as análises do urânio obtido. Esse trabalho está em desenvolvimento com espectrômetros na Divisão de Engenharia Química do Instituto de Energia Atômica.

O. CARDOSO DE SOUZA — O processo se caracteriza por ser intermitente?

C. T. DE FREITAS — Exato.

O. CARDOSO DE SOUZA — Tal é solução adotada em outros países que produzem urânio?

C. T. DE FREITAS — Exatamente. Foi desenvolvido pela National Lead Co. — NLCO — um processo semi-contínuo em forno de indução, mas não tem sido aplicado intensivamente. Cito na referência bibliográfica, a descrição desse processo. Eu o estudei com certo cuidado e verifiquei que é muito promissor, mas ainda não está sendo aplicado intensivamente nos Estados Unidos.

O. CARDOSO DE SOUZA — Na redução dos metais refratários, como o titânio e o zircônio, o carregamento da matéria-prima, como o tetra-cloreto de titânio, por exemplo, é feito progressivamente. Não há possibilidade de ocorrer o mesmo em relação ao urânio? Ou então a solução sugerida pelo Bureau of Mines, em que é feito o vazamento durante o processo de redução, tendo em vista a melhoria do seu rendimento? O mesmo não é possível em relação à redução de urânio?

C. DE FREITAS — As técnicas para carregamento de bombas, descritas nos vários trabalhos consultados e em particular constantes da nossa referência 2, não fazem referência a esse tipo de carregamento.

T. SOUZA SANTOS — Posso esclarecer que é completamente diferente do processo de zircônio e de titânio, em que a reação dá-se em condição de bombas, isto é, sob pressões internas instantâneas, que podem ser calculadas dependendo do processo, mas em temperaturas instantâneas que podem atingir 1.350 a 1.400°C. Se isto for assim, com a pressão residual do magnésio, mesmo o remanescente, sem contar a carga inicial, podemos ter pressões da ordem de muitas atmosferas, de modo que não há possibilidade.

O. CARDOSO DE SOUZA — A redução é praticamente na pressão atmosférica.

T. SOUZA SANTOS — Daí a extraordinária dificuldade do processo.

RICARDO TEIXEIRA (5) — Em virtude de estar trabalhando com aço inoxidável, gostaria de fazer a seguinte pergunta: o Eng.º Clauer Trench de Freitas disse que o cadinho e tampa eram de aço 1020 e as aletas de aço 18-8; não poderiam essas aletas ser também de aço 1020 para minorar a despesa? A meu ver, como fundidor, com essas aletas visou-se apenas impedir o empeno. Em escala industrial acho que ficaria um tanto oneroso colocar aletas de 18-8 para um cadinho de 20 reduções. Será que poderiam ser essas aletas também em aço 1020, ou teriam de ser necessariamente de aço 18-8?

C. T. DE FREITAS — Realmente, poderemos considerar para os nossos futuros estudos aplicação de aço 1020 nas aletas. Nessa primeira fase do trabalho partimos para o aço 18-8, mas pode ser que a experiência demonstre que seja necessário mudar.

R. TEIXEIRA — Qual o tipo de aço inoxidável usado?

C. T. DE FREITAS — Temos usado o 316.

R. TEIXEIRA — Baseados na experiência de forno a gás e a óleo, temos usado para proteger as abóbadas do forno o "termax" 15% de níquel e 25% de cromo. Agora estamos fazendo experiências nas ventaneiras. Parece que ele resiste a uma variação de temperatura maior. O material tem aprovado para esses casos de variação de temperatura. Uma experiência com "termax" talvez fosse interessante para a vida maior desses selos. A impressão que se tem do trabalho é que as 20 e poucas reduções que se dão são devidas a esse flange. O resto se mantém constante uma vez que tem camisa de areia, e a grafita é altamente refratária. A deficiência dessa bomba parece que é nesse setor.

C. T. DE FREITAS — Eu observaria que a bomba certamente ainda terá uma vida útil bastante maior. No momento só temos 26 reduções, seis foram feitas na outra unidade. Esperamos ainda poder funcionar mais tempo com a mesma bomba. A determinação do seu limite superior de vida exigirá um tratamento mais prolongado.

R. TEIXEIRA — Essa bomba é semelhante àquela do método de início de reação, ou semelhante à bomba para determinação de enxofre em óleos combustíveis em geral? Tem um sistema elétrico que dê a partida da reação?

C. T. DE FREITAS — O aquecimento é externo, embora em alguns casos se possa provocar a ignição eletricamente. Mas não é esse o caso. O processo já foi empregado, principalmente com o tetra-fluoreto aqui já descrito. Sua sugestão para o desenvolvimento de pesquisas é muito interessante e agradeço mais uma vez.

T. SOUZA SANTOS — Em relação à observação que fez o Eng.º Ricardo Teixeira, poderia dizer que muito provavelmente é uma questão econômica; mas na sua linha de crescimento as bombas que nos vierem para uso industrial já serão de aço inoxidável, talvez aços refratários do tipo Pidgeon. Provavelmente, essa solução vai ser melhor do que a forma mista, como estamos fazendo. Mas naturalmente será um problema econômico.

PEDRO MIJARES CIBRIÁN (6) — Queria saber se o processo da bomba está relacionado com a geometria e o tamanho, ou se os valores para uma bomba pequena também são válidos para uma bomba maior.

C. T. DE FREITAS — A observação é adequada. Esperamos melhorar o rendimento passando para bombas maiores quando as quantidades de carga forem maiores. Sabemos, pela literatura, que o tamanho da bomba influi fortemente no método de reação. A forma talvez seja uma variável de menor influência. Não posso afirmar categoricamente que seja um parâmetro de problema muito importante. A forma usual é a cilíndrica, com relação de altura e diâmetro de aproximadamente 2:1 ou 3:1.

P. M. CIBRIÁN — Com relação ao início da reação observei, em visita aos Estados Unidos, que o início era feito por meio de uma vela de ignição de carro. Esse processo também não serviria para o urânio?

C. T. DE FREITAS — Conforme eu disse ao Eng.º Ricardo Teixeira, esse processo poderia ser aplicado. Mas parece que nas mais modernas instalações americanas o processo é considerado ultrapassado e não é mais utilizado. Talvez para materiais de qualidade mais pobre, o UF₄ tipo A alemão, pode ser.

(5) Membro da ABM. Engenheiro Químico; Chefe da Divisão de Fundição da Cia. Aços Especiais Itabira; Ace-sita, MG.

(6) Membro da ABM. Químico; Pesquisador associado do Instituto de Pesquisas e Desenvolvimento do CTA; São José dos Campos, SP.