

# ESTADO ATUAL DA TECNOLOGIA DA PRODUÇÃO DE TÓRIO METÁLICO <sup>(1)</sup>

HELITON M. HAYDT <sup>(2)</sup>

## RESUMO

*Em virtude da importância das reservas de minérios de tório no Brasil, vem a Comissão Nacional de Energia Nuclear dando grande importância aos estudos que permitam, no futuro, a produção de energia em reatores de tório-plutônio. Nesta contribuição o Autor apresenta uma síntese do estado atual da tecnologia de produção de tório metálico, utilizando-se óxido de tório como matéria prima. Descreve as principais etapas do processo, a começar pela de fluoretação por HF sêco gasoso, a redução por cálcio metálico do tetrafluoreto de tório em presença do cloreto de zinco e as operações subseqüentes de pré-fusão e fusão final com a lingotagem do metal, realizadas estas em forno elétrico de eletrodo consumível.*

## 1. INTRODUÇÃO

Em virtude do interesse que representa para o Brasil a utilização de tório em reatores para o ciclo de produção de U-233, é conveniente se dar um balanço do estado atual da tecnologia da produção de tório metálico. Esta contribuição é uma adaptação de um trabalho desenvolvido pelo autor <sup>2</sup> no "International Institute of Nuclear Science and Engineering" do "Argonne National Laboratory", Argonne, Illinois, Estado Unidos da América do Norte, durante o estágio realizado entre fevereiro de 1960 e abril de 1961. Para a elaboração desse trabalho foi consultada extensa literatura especializada, relacionada no fim <sup>2 a 6</sup>.

O plano da divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica prevê, entre outros projetos, o estudo em escala piloto para a produção de tetrafluoreto de tório e a redução a tório metálico.

- 
- (1) Contribuição Técnica n.º 495. Apresentada ao XVII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais; Rio de Janeiro (GB), julho de 1962.  
(2) Membro da ABM; Engenheiro Metalurgista do CETN (Ministério da Marinha); Membro da Divisão de Metalurgia Nuclear; Instituto de Energia Atômica; São Paulo. SP.

## 2. PRODUÇÃO DO TETRAFLUORETO DE TÓRIO

A produção de sais de tório de pureza nuclear em escala piloto vem constituindo, há já alguns anos, um dos principais objetivos do grupo especializado da Orquima, Indústrias Químicas Reunidas de São Paulo. Dêsses trabalhos, resultaram diversas publicações<sup>7 a 11</sup>, nas quais são descritas diversas etapas do processo de tratamento da monazita do litoral do Espírito Santo, e que, após a separação das terras raras e do urânio contido, permitem separar o tório na forma de óxido de tório.

O óxido de tório, com os característicos correspondentes ao produzido pela Orquima, é que constituirá a matéria prima a partir da qual a Divisão de Metalurgia Nuclear produzirá o tetrafluoreto para ulterior redução e processamento metalúrgico subsequente, até a produção dos elementos combustíveis que empreguem tório metálico ou suas ligas.

Para a primeira fase de produção de tetrafluoreto de tório, o óxido de tório é submetido à reação com ácido fluorídrico gasoso sêco em contra-corrente num forno dotado de quatro tubos horizontais dispostos um sôbre os outros. Esse forno consiste de quatro unidade independentes de aquecimento, controladas individualmente. O material é passado através dos tubos por transportadores helicoidais manobrados por motores de velocidade variada. O tubo superior n.º 1, onde é feita calcinação do óxido entre 650°C e 675°C, deverá ser de aço inoxidável 309 com Nb e o transportador de Inconel ou Ilium R. Os outros três tubos para fluoretação são idênticos e de inconel, com os transportadores de Inconel ou Hastelloy C. Os tubos de fluoretação n.ºs 2, 3 e 4 devem ser aquecidos respectivamente às temperaturas de 260°C, 370°C e 560°C, sendo que neste último a temperatura deverá ser mantida acima de 550°C, para volatilização dos fluoretos de boro e silício, caso existam, bem como sinterização do produto, aumentando assim sua densidade e diminuindo sua higroscopicidade, assegurando assim reação completa.

A vazão de ácido fluorídrico gasoso a ser usado deverá permitir manter a concentração de 70% do HF na corrente de gás de saída, entre os dois primeiros tubos. Os gases passam por um filtro de tubo de carbono e daí para a recuperação ou neutralização.

A corrosão do material pode ser diminuída com contrôlo cuidadoso de temperatura, a fim de evitar a condensação do ácido fluorídrico nos pontos de baixa temperatura dos tubos ou o vazamento através dos alimentadores (funís de alimentação de entrada no primeiro tubo e saída do último tubo) e também pela manutenção de especificações rígidas do conteúdo de sulfato residual no material de alimentação.

O tetrafluoreto de tório sólido é descarregado continuamente por meio de um extrator rotativo, depois de passar por um resfriador dotado de camisa água.

### 3. REDUÇÃO DO TETRAFLUORETO A TÓRIO METÁLICO

O tetrafluoreto de tório é misturado com cloreto de zinco em quantidade correspondente a 10% do seu peso e, em seguida, com cálcio metálico, com 25% de excesso sobre a quantidade estequiométrica, a fim de se assegurar a maior recuperação possível. O calor da reação entre o cloreto de zinco e cálcio escorva a reação e melhora o balanço térmico.

Parte do zinco se dissolve no tório, dando liga de ponto de fusão mais baixo; o cloreto de cálcio produzido serve como fundente para o fluoreto de cálcio.

A carga é carregada num recipiente revestido com dolomita. Cheio o recipiente da bomba, coloca-se um disco de grafita e sobre ele uma camada de dolomita; em seguida, a bomba é fechada por meio de tampa de aço aparafusada no flange. O conjunto fechado é colocado num forno de resistência elétrica, que é aquecido previamente a 660°C. O conjunto deve ser perfeitamente estanque, para evitar que o tório reaja com componentes da atmosfera a altas temperaturas.

A reação de redução é fortemente exotérmica e dá-se em cerca de 40 minutos, produzindo uma liga de tório e zinco que se deposita no fundo do recipiente. Terminada a reação, o conjunto é resfriado à temperatura ambiente, primeiro com ar e depois com água. O fundido depois de removido da cuba de redução precisa ser limpo de escória e da dolomita aderente, num local bem ventilado e contém de 4% a 7% de zinco.

O cálcio, o cloreto de zinco e a dolomita a serem usados devem seguir especificações bastantes estritas. O tetrafluoreto de tório contém muitas vezes impurezas metálicas introduzidas pela corrosão de materiais do aparelhamento de fluoretação, as quais persistem nas fases metalúrgicas subsequentes aparecendo no produto final como impurezas intergranulares.

### 4. FUSÃO PARA ELIMINAÇÃO DO ZINCO

O material produzido na fase anterior é aquecido sob vácuo a 1200°C num forno de indução de alta frequência com cadinho de óxido de zircônio para destilação de zinco, o que é feito num condensador resfriado a água e colocado acima do cadinho.

O tório metálico dezincado que permanece, fica com aparência esponjosa. Durante a dezincagem sob vácuo, o metal se torna plástico e um tanto deformado, não fluindo livremente para chegar a tomar a forma do vaso. Se a fusão fôr muito rápida, a violenta evaporação do zinco pode causar a projeção do material para fora do cadinho.

Deve-se tomar cuidado na operação de dezincagem porque o condensador resfriado por água pode falhar como coletor de zinco, deixando vapores de zinco no campo de alta voltagem da bobina de indução, provocando tempo perdido em demasia e manutenção excessiva.

## 5. FUSÃO E LINGOTAGEM EM FORNO DE ARCO DE ELETRODO CONSUMÍVEL

O forno típico consta essencialmente de uma cuba de cobre revestida por uma camisa d'água e uma super estrutura abrangendo o eletrodo consumível, que é suspenso por uma haste de cobre resfriada a água. O conjunto inteiro é fechado sob vácuo por anéis de vedação.

Uma conexão múltipla a vácuo inclui válvulas de admissão para hélio e argônio. Os cabos condutores de corrente elétrica são ligados a um flange na cuba e à barra suporte do eletrodo. A haste e a bucha do eletrodo são isoladas do revestimento e da super estrutura do forno por uma junta de micarta, com as partes superior e inferior vedadas por anéis em O.

Como o forno opera em pressões menores do que a atmosférica, não são necessários parafusos e uma pressão reduzida dentro do forno segura as diferentes partes no lugar durante a operação. Na montagem, enquanto o forno não está em operação, os componentes são mantidos nos lugares por pontos de solda. Este arranjo elimina diafragma e outras formas de segurança. Se ocorrer rápido aumento na pressão interna, o forno simplesmente abre antes que haja pressão suficiente para causar explosão.

O forno consiste de 3 partes:

- a) a superior, através da qual a haste-suporte de eletrodo se desloca;
- b) a do meio, que suporta os reservatórios superior e inferior;
- c) a inferior, consistindo de uma cuba de cobre revestida por uma camisa d'água para resfriamento onde o lingote se solidifica. Somente esta secção é resfriada à água.

A parte inferior é presa à secção média, porém esta não está presa à superior, podendo separar-se uma da outra se ocorrer uma explosão no forno. Isto reduz a possibilidade de queimar os gases explosivos que se possam formar, caso haja falta d'água. A tampa para a coluna de regulação hidráulica pode também abrir-se se a pressão aumentar no forno.

As lingotagens primária e secundária são executadas em fornos idênticos.

É necessário se tomar cuidado na fusão e lingotagem sob ação do arco voltaico, porque o tório reage com água a alta temperatura para desprender hidrogênio. Para uma operação protegida, o equipamento deve estar separado da sala de controle por uma parede protetora de aço. O operador observa o forno através de uma janela de vidro resistente a alta temperatura. A voltagem entre o eletrodo e a cuba de cobre resfriada a água é regulada por controle remoto, por meio de movimento vertical do eletrodo. Para o caso de emergência, deve existir uma chave de interrupção da força principal do painel de operação.

O eletrodo é preparado serrando o tório esponjoso da fase anterior por meio de uma serra mecânica para metais. As peças serradas são soldadas de tampo num cilindro horizontal, formando o eletrodo que se transformará no lingote primário. Esse cilindro é ligado a outros dois menores, sendo que na extremidade de um deles há uma porta através da qual o eletrodo é carregado no cilindro maior. Uma bomba a vácuo está ligada ao outro cilindro menor. A solda é feita através de duas aberturas para as mãos por meio de um porta-eletrodos operado manualmente, que segura uma vareta de tungstênio revestido de tório, com 3,2 cm de diâmetro.

A solda é feita em atmosfera de argônio para evitar impurezas de oxigênio, nitrogênio e hidrogênio do ar atmosférico. O arco é iniciado por meio de uma unidade elétrica de alta frequência, a fim de evitar contacto direto entre o eletrodo de tungstênio e a peça. A corrente deve ser de 180A a 200A e de 20V a 25V. Um pedaço de lingote rosqueado e soldado de tampo a uma das extremidades do eletrodo liga este ao terminal de força do forno.

Para evitar qualquer reação do metal com os componentes da atmosfera, os pedaços soldados devem ser resfriados antes da remoção do cilindro. Os eletrodos primários assim preparados pesam cerca de 13,5 kg cada e devem ser guardados num lugar seco, de preferência sob gás inerte.

Para a lingotagem primária, aparas de tório são colocadas, antes, numa cuba de cobre de 12,7 cm de diâmetro antes de estar o forno sob vácuo. O arco é aberto nesta pequena camada de aparas, em vez de ser no fundo da cuba de cobre, evitan-

do a queima dêste por eletricidade. Antes da lingotagem, o vácuo no forno deve estar numa pressão menor do que 500 microns de mercúrio, devendo ser mantido num vazamento menor do que 10 microns por minuto. O forno é, então, envolto com argônio a 630 mm de pressão absoluta. O arco voltaico é formado e a lingotagem é iniciada com 2000A e 25V a 30V. Depois de 20 a 30 segundos, a amperagem é levantada a 3000 e mantida neste nível durante o resto da fusão. O eletrodo médio pesando 13,5 kg é fundido em 2 a 3 minutos.

Depois de completada a operação, a câmara do forno é evacuada, recolocada à pressão atmosférica com argônio e em seguida aberta à atmosfera. Outro eletrodo de tório é, então, colocado na câmara e o lingote primário é removido da cuba.

A maioria das impurezas voláteis é eliminada durante o processo. Estas impurezas consistem, na maior parte, de compostos de zinco e cálcio, que condensam na parte superior e nos lados do lingote. A parte inferior dêste consiste de aparas fundidas. Portanto, as extremidades devem ser cortadas e usinadas as superfícies do lingote. Esta usinagem deve ser feita com cuidado já que o material do lingote primário é altamente pirofórico.

Três pequenos lingotes primários usinados e um níplo são soldados a tampo num cilindro de aço para formar um eletrodo secundário. Êste cilindro de aço, resfriado à água e de aproximadamente 2,4 m de comprimento, e 0,75 m de diâmetro, deve ficar sob vácuo. Ligam-se em seguida uma bomba à vácuo de 28,3 dm<sup>3</sup>/minuto e um retificador de 400A e 20V a 30V, de corrente contínua ao cilindro de solda.

Três porta-eletrodos, resfriados a água, são interpostos ao longo do comprimento, para permitir a solda em pontos diferentes. São usados eletrodos de tungstênio de 12,7 mm de diâmetro. A peça trabalhada tem dois apoios que a fazem girar durante a solda. Um sistema hidráulico movimenta os apoios horizontalmente permitindo soldar ao longo do comprimento da peça. Como na preparação do eletrodo primário, usa-se a alta frequência para abrir o arco e evitar contacto entre o eletrodo e a peça de trabalho. As operações são efetuadas remotamente por aparelhos mecânicos.

A lingotagem secundária é feita numa cuba de cobre resfriada a água, de cerca de 18 cm de diâmetro, num forno idêntico ao usado para a lingotagem primária. No princípio da fusão, uma corrente de 320A é usada. Uma vez formado o arco e existindo metal liquefeito, a potência é aumentada para 6500A, e êste valor é mantido para o resto do tempo de lingotagem, mantendo-se habitualmente tensão entre 25V e 30V. A fusão leva aproximadamente 10 minutos.

Cada lingote é radiografado para verificação de defeitos e a localização de contração interna; no caso de defeitos ou de excessiva cavidade de contração, é necessária a sua refusão.

Os lingotes produzidos da maneira descrita acima, necessitam de ser usinados nas extremidades superior e inferior. A parte superior contém a maioria das impurezas e o vazão da solidificação, enquanto a parte inferior contém cavacos previamente soldados. As superfícies do lingote devem ser usinadas para remoção dos defeitos superficiais.

Finalmente, os lingotes estão prontos para usinagem posterior até as dimensões necessárias ou para as operações de transformação mecânica.

## 6. CONSIDERAÇÕES FINAIS

Conforme recentes comunicados publicados na imprensa, a Comissão Nacional de Energia Nuclear está vivamente interessada, nos desenvolvimentos de reatores de potência no país, em basear esses desenvolvimentos na utilização de tório, metal cujos minérios conta o Brasil com grandes reservas, talvez as maiores do mundo. É bem sabido que o tório natural não produz fissão em cadeia, sendo por isso necessário que os elementos combustíveis desses reatores conttenham ou urânio enriquecido em U-235 ou em Pu. Por isso, o projeto de reator de potência da região centro-sul, presentemente em fase final de estudo pela Comissão Nacional de Energia Atômica, será reator de urânio natural nacional resfriado por gás carbônico e produzirá plutônio que será utilizado com tório nos reatores que estão em estudo para o Rio Grande do Sul e para o Nordeste.

Estas considerações decorrentes do programa nacional da Comissão mostram a importância da tecnologia da produção de tório e constituem uma justificativa adicional desta contribuição.

## BIBLIOGRAFIA

1. HAYDT, H. M. — *"Thorium Production from Monazite Ores"*. Trabalho apresentado ao International Institute of Nuclear Science and Engineering, Argonne National Laboratory, março 1961 (não publicado).
2. CUTHBERT, F. L. — *"Thorium Production Technology"*. Addison-Wesley, 1958.
3. WILHELM, H. A. — Technical Editor — *"The Metal Thorium"*. Proceedings of the Conference on Thorium, held October 11, 1956 at Cleveland, Ohio, ASM, 1958.
4. HAYWARD, D. R. and CORZINE, P. — *"Thorium-Uranium Fuel Elements for SRE"*, in Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, P/785, vol. 16, 1958.
5. MILNE, G. R.; WARD, F. R. and STOLLER, S. M. — *"The Consolidated Edison Company of New York Nuclear Electric Generating Station"*,

- in Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, P/1885, vol. 8, 1958.
6. KELLER, J. P. — *Thorium and its Alloys*. Reactor Handbook, vol. 3, Mc Graw Hill Company, Inc. N. Y., 1955.
  7. KRUMHOLZ, P. and GOTTDENKER, F. — *The Extraction of Thorium and Uranium From Monazite*, in Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, P/126, vol. 8, 1955.
  8. KRUMHOLZ, P. — *Brazilian Practice of Monazite Treatment*. Symposium on Rare Metals, Publishing by Atomic Energy Establishment, Trombay, Bombay, The Indian Institute of Metals, pág. 78, 1957.
  9. BRIL, K. Y. and KRUMHOLZ, P. — *Process for the Separation of Thorium and Uranium*. Patente canadense 880.046, 1959.
  10. GOTTDENKER, F. and KRUMHOLZ, P. — *A process for Separating Thorium, Cerium, and Rare Earths from Mixtures of their Oxides or Hydrides*. Patente britânica, 855.481, 1958.
  11. KRUMHOLZ, P. and BRIL, K. Y. — *Produção de tório nuclearmente puro*. Trabalho apresentado em conferência ao III Simpósio Interamericano de Energia Nuclear, Petrópolis, julho de 1960.



## DISCUSSÃO

**H. Lopes de Amorim** <sup>(1)</sup> — Queria perguntar ao Comandante Motta Haydt se se pensou apenas em produzir o tetra-fluoreto de tório partindo do óxido de tório por reação com HF?

**H. Motta Haydt** <sup>(2)</sup> — Neste caso, só por transporte mecânico.

**H. Lopes de Amorim** — Não houve previsão?

**H. Motta Haydt** — Eu, pelo menos, nada vi a êsse respeito. O processo por precipitação de uma solução de nitrato de tório tem sido utilizado em base experimental, apresentando problemas em operações de produção.

**J. A. Sabato** <sup>(3)</sup> — O senhor poderia informar qual será o tipo de forno de eletrodo consumível?

**H. Motta Haydt** — O trabalho feito, como disse antes, foi realizado no laboratório de Argonne. Nada de concreto existe sobre isso.

**J. A. Sabato** — E não está previsto qual o tipo de forno de eletrodo consumível?

**H. Motta Haydt** — Ainda não. A divisão de Metalurgia do Instituto de Energia Atômica de São Paulo estudará posteriormente as diversas soluções que existem em uso no exterior para decidir qual delas melhor convirá ao nosso programa.

(1) Membro da ABM e Professor do Curso de Engenharia Nuclear do Instituto Militar de Engenharia; Rio de Janeiro, GB.

(2) Membro da ABM, Engenheiro do C.E.T.N. e Autor do trabalho; Divisão de Metalurgia do Instituto de Energia Atômica; São Paulo, SP.

(3) Membro da ABM e Chefe da Divisão de Metalurgia da "Comisión Nacional de Energia Atômica" da República Argentina; Buenos Aires.

# ORGANIZAÇÃO E REALIZAÇÕES DA DIVISÃO DE METALURGIA NUCLEAR DO INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA <sup>(1)</sup>

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS <sup>(2)</sup>

RICHARD M. BIDWELL <sup>(3)</sup>

HELITON M. HAYDT <sup>(4)</sup>

CLAUER TRENCH DE FREITAS <sup>(5)</sup>

PAULO SÉRGIO C. PEREIRA DA SILVA <sup>(6)</sup>

## RESUMO

*Tendo em vista o relevante papel que deve caber à energia nuclear como meio de reduzir o "deficit" energético do Brasil, particularmente em algumas de suas regiões, a implantação e o desenvolvimento das atividades tecnológicas de metalurgia nuclear deverão ter importantes conseqüências em futuro próximo.*

*Nesta contribuição examinam-se os objetivos visados pela Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica, descrevendo sua organização e a evolução prevista para, por fim, mencionar concisamente as principais realizações, não só as decorrentes de sua constituição, em janeiro de 1962, como as iniciais, realizadas no IPT a partir de 1960.*

## 1. INTRODUÇÃO

Na utilização da energia nuclear para fins pacíficos, a metalurgia desempenha um papel de grande importância, a começar pela produção dos metais combustíveis nucleares.

- (1) Contribuição Técnica n.º 496. Apresentada ao XVII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais; Rio de Janeiro (GB), julho de 1962.
- (2) Membro da ABM; Instituto de Pesquisas Tecnológicas em comissão como chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica; Professor Catedrático de Metalurgia dos Metais Não-Ferrosos, Escola Politécnica da Universidade de São Paulo, São Paulo, SP.
- (3) Membro da ABM; Conselheiro da Agência Internacional de Energia Atômica junto à CNEN, Divisão de Metalurgia Nuclear, IEA, São Paulo; em licença do "Los Alamos Scientific Laboratory", Los Alamos, N. M., Estados Unidos.
- (4) Membro da ABM; Engenheiro Metalurgista do CETN, Ministério da Marinha; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.
- (5) Membro da ABM; Divisão de Metalurgia Nuclear; Instituto de Energia Atômica; São Paulo, SP.
- (6) Membro da ABM; Divisão de Metalurgia Nuclear; Instituto de Energia Atômica; São Paulo, SP.

O progresso havido nesse setor desde o advento da energia nuclear foi de tal monta que constitui hoje um novo ramo da metalurgia, a chamada "*metalurgia nuclear*", a qual engloba muitos setores especializados, começando pela metalurgia extrativa de urânio e tório para abranger até o reprocessamento pirometalúrgico de combustíveis irradiados, promissor método de tratamento desenvolvido ultimamente, principalmente nos Estados Unidos.

Desde os primeiros trabalhos realizados no Brasil pela Comissão de Energia Nuclear do Conselho Nacional de Pesquisas e, depois, pela Comissão Nacional de Energia Nuclear desde seu estabelecimento como órgão independente, se vem prestando a devida atenção às grandes conseqüências que deverão resultar da utilização industrial dessa nova fonte de energia. Dado o "deficit" energético do Brasil, particularmente acentuado em algumas de suas regiões, era natural que se depositasse crescente esperança no sentido de se poder modificar radicalmente as perspectivas atuais pela utilização crescente e de forma progressiva da energia nuclear.

A despeito de constituírem desenvolvimento bastante recente os reatores de potência — o primeiro reator construído especialmente para esse fim, tendo entrado em operação há cerca de oito anos — o certo é que o progresso logrado nos principais países foi considerável. Existem já reatores, principalmente os de potência superior a 100 MW, que competem, ou que se espera possam competir, com usinas clássicas na produção de energia elétrica.

A engenharia nuclear — novo ramo da engenharia aberto pela ciência nuclear — tem na metalurgia um de seus principais pontos de apoio. Por isso, é naturalmente importante que se cuide de promover a base tecnológica que possibilite seu rápido desenvolvimento no Brasil.

Os primeiros trabalhos de metalurgia foram aqui realizados quase simultaneamente com o desenvolvimento do processo de purificação dos sais de urânio, em diuranato de amônio de pureza nuclear, levado a efeito pelo Prof. F. W. Lima e seus colaboradores da Divisão de Radioquímica do Instituto de Energia Atômica<sup>1</sup>, em fins de 1959. Os trabalhos realizados no Instituto de Pesquisas Tecnológicas consistiram principalmente na produção de pastilhas de elevada densidade de óxido de urânio, partindo daquele sal<sup>2</sup>, além de estudos preliminares sobre a produção de urânio metálico, utilizando tetrafluoreto de urânio, também produzido no IEA, por magnésio.

Os trabalhos tiveram maior incremento após estágio realizado no "*Argonne National Laboratory*", em Argonne, Illinois,

Estados Unidos, o que forneceu as bases para a efetivação de plano mais extenso para o setor de metalurgia nuclear.

Em dezembro de 1961 foi celebrado convênio entre a Comissão Nacional de Energia Nuclear e o Instituto de Energia Atômica para o estabelecimento e realização de programas bastante amplos em novas instalações, as da Divisão de Engenharia Química e da Divisão de Metalurgia Nuclear; ao mesmo tempo, outro convênio entre o Instituto de Energia Atômica e o Instituto de Pesquisas Tecnológicas, para aproveitar devidamente pessoal, aparelhamento e principalmente a experiência acumulada em outros ramos da metalurgia, permitiu acelerar a realização desses planos.

Esta contribuição constitui um apanhado das atividades desenvolvidas, do exame dos objetivos e da descrição da organização atual e futura dessa Divisão. Com sua apresentação ao XVII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais, pretenderam os autores tornar mais conhecidas essas atividades que, para o futuro, deverão ter crescente influência no desenvolvimento da engenharia nuclear brasileira.

## 2. OBJETIVOS DA DIVISÃO

A Divisão de Metalurgia Nuclear, integrada como uma das unidades do Instituto de Energia Atômica, tem os seguintes objetivos principais:

- 1) formar o pessoal técnico, tanto de nível superior como colaboradores, especializados nos diversos setores adiante indicados;
- 2) tratar, em escala piloto (cêrca de 2 t/mês), sais de urânio e de tório para a produção desses metais e de suas ligas;
- 3) utilizar êsses metais e suas ligas na produção de componentes de elementos combustíveis, por fusão e lingotagem, seguida ou não de transformação mecânica;
- 4) produzir  $UO_2$  e  $ThO_2$  para as aplicações de cerâmica nuclear e produzir pastilhas sinterizadas desses materiais;
- 5) construir elementos combustíveis para reatores de pesquisas, bem como protótipos de elementos combustíveis para outros tipos de reatores, sob a orientação da Comissão Nacional de Energia Nuclear;
- 6) ensaiar materiais nucleares, bem como materiais para revestimento e outros, do ponto de vista de suas principais propriedades, bem como elementos combustíveis montados;
- 7) constituir, em futuro próximo, um núcleo para estudos tecnológicos de reprocessamento pirometalúrgico de combustíveis irradiados para a separação e recuperação dos metais contidos.

Com êsses objetivos, a Divisão de Metalurgia Nuclear vem se orientando de forma a abordar exclusivamente questões tecnológicas de interesse mais direto para o programa de ação da Comissão Nacional de Energia Nuclear. Em conseqüência dessa orientação, a Divisão está menos interessada em problemas de metalurgia fundamental, não só porque os problemas que lhe são cometidos são tecnológicos, como também porque outros grupos técnicos especializados já foram constituídos em outras instituições, como principalmente no Instituto de Pesquisas Radioativas de Belo Horizonte, para estudar problemas de física dos metais nucleares.

Além dessas razões, essa mesma é a orientação que foi e vem sendo seguida pelo Instituto de Pesquisas Tecnológicas em tôdas as suas atividades, inclusive e principalmente nas de metalurgia, e que tão grandes conseqüências práticas tiveram no desenvolvimento e no progresso da metalurgia brasileira.

### 3. ORGANIZAÇÃO DA DIVISÃO DE METALURGIA NUCLEAR

A organização que está sendo dada à Divisão de Metalurgia Nuclear permite contar com as seguintes unidades, constituídas como Secções Técnicas:

- 1) processamento de diuranato de amônio e produção de tetrafluoreto de urânio para redução por magnésio; processamento de óxido de tório para produção de tetrafluoreto de tório para redução com cálcio; produção desses metais a partir dos sais citados;
- 2) processamento do diuranato de amônio para a produção de  $UO_2$  e para  $U_3O_8$ , para "cermets";
- 3) fusão e lingotagem de ligas de urânio e de tório, tanto para utilização direta em elementos combustíveis como através de prévia transformação mecânica;
- 4) produção de pastilhas de  $UO_2$  e de compactados por swaging e por outros meios;
- 5) ensaios mecânicos e exames metalográficos de materiais combustíveis nucleares, inclusive materiais cerâmicos e de revestimento;
- 6) solda em gases inertes e outros processos de solda e de fechamento de elementos combustíveis;
- 7) ensaios não destrutivos de elementos combustíveis e de seus componentes, principalmente radiografia e gamagrafia, ensaios por ultrassons de eco pulsado e cintilometria de raios gama; e
- 8) estudos de reprocessamento pirometalúrgico de combustíveis irradiados visando a recuperação dos elementos que interessam do ponto de vista nuclear.

Evitando a duplicação de trabalho de outros grupos que trabalham em pesquisas tecnológicas e científicas, contar-se-á com valiosa colaboração do Instituto de Pesquisas Tecnológicas principalmente através de sua Divisão de Metalurgia, na produção de materiais especiais de interesse, inclusive componentes de fornos, além de ensaios mecânicos e estudos metalográficos de materiais estruturais e de revestimento, setores nos quais já é considerável a experiência acumulada pelo corpo técnico do IPT. De acordo com a mesma orientação, utilizar-se-ão os resultados de estudos tecnológicos a serem empreendidos no IPT em colaboração com o Departamento de Engenharia Metalúrgica da Escola Politécnica na produção de magnésio de pureza nuclear.

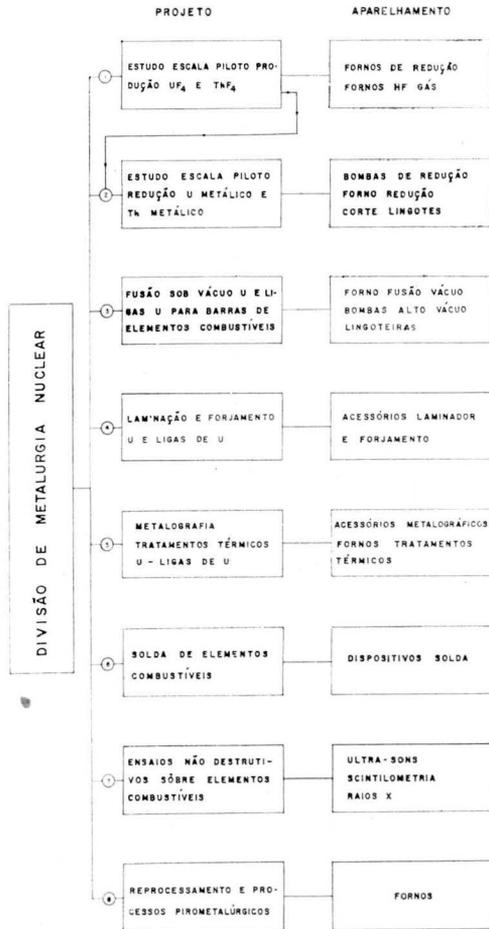


Fig. 1

A figura 1 esquematiza a organização atual da Divisão de Metalurgia Nuclear e o desenvolvimento previsto de seu programa quadrienal.

#### 4. DESENVOLVIMENTO E PROGRAMA DAS ATIVIDADES DA DIVISÃO

A previsão do desenvolvimento da Divisão compreende as três seguintes etapas:

1. *Etapa inicial* — Até meados do segundo semestre deste ano as atividades se concentrarão em cerâmica de  $UO_2$ , trabalhos que se acham em pleno desenvolvimento com novas unidades de redução e de sinterização sob argônio em fins de construção. Foram instalados nos prédios do Instituto de Energia Atômica, em caráter provisório, a Secção de Metalografia, a Secção de Solda sob Argônio e o Laboratório de controle das pastilhas de  $UO_2$ .
2. *Etapa intermediária* — Em meados do segundo semestre deverão ser instalados em novos edifícios do Instituto as unidades das Secções de Redução, de Fusão e Lingotagem, de Transformação Mecânica e de Montagens de elementos combustíveis, além das de Metalografia e de Cerâmica Nuclear. Esse conjunto novo ocupará área total de cerca de 2.000 m<sup>2</sup> e contará com as facilidades experimentais essenciais para abordar os objetivos anteriormente enumerados. Ao mesmo tempo que se instalarem essas novas unidades, dever-se-á ampliar bastante o corpo técnico, bem como o número de colaboradores. Os programas previstos para fins de 1963 exigirão cerca de 15 técnicos de nível superior e 50 colaboradores.
3. *Etapa final* — A etapa final do programa quadrienal e que deverá ser atingida em fins de 1966 prevê a construção e a instalação de novos edifícios totalizando área de cerca de 7.000 m<sup>2</sup> úteis, para abrigar em caráter definitivo as Secções enumeradas e as novas Secções de Ensaio Não-Destrutivos e de Reprocessamento Pirometalúrgico, bem como oficinas e serviços auxiliares. O corpo técnico nessa fase terá de ser ampliado para abranger de 40 a 60 técnicos e de 80 a 140 colaboradores, dependendo dos programas específicos detalhados.

#### 5. REALIZAÇÕES DA DIVISÃO DE METALURGIA NUCLEAR

As principais realizações, desde a fase anterior à organização da Divisão em janeiro deste ano, foram as seguintes:

1. Produção de  $UO_2$  e de pastilhas de  $UO_2$  de alta densidade. Os trabalhos realizados em 1960 no Instituto de Pesquisas Tecnológicas anteriormente à organização da Divisão permitiram desenvolver os métodos de produção de pastilhas de 10,4 g/cm<sup>3</sup>

de densidade, tendo cerca de 7 mm de diâmetro, a partir de óxido produzido com o diuranato de amônio da Divisão de Rádio-química do IEA. Os trabalhos foram divulgados no III Simpósio Interamericano de Utilização de Energia Atômica para Fins Pacíficos, realizado em julho de 1960 em Petrópolis<sup>2</sup>.

2. Estudos preliminares de produção de urânio metálico. Em junho de 1960 foram realizados também no IPT os primeiros trabalhos de produção de urânio metálico por redução de tetrafluoreto de urânio, também produzido no IEA, por magnésio em bombas dotadas de recipientes de grafita.
3. Desenvolvimento de trabalhos relativos a elementos combustíveis de  $UO_2$ , adensados por "swaging" em tubos de alumínio 1100. Esses trabalhos relacionaram-se a uma variante de conjunto sub-crítico estudada pela Divisão de Física de Reatores e Divisão de Engenharia Nuclear do IEA.
4. Estudos tecnológicos relativos à produção de pastilhas de 22 mm de diâmetro de  $UO_2$ , sinterizadas sob argônio, visando principalmente determinar experimentalmente a influência das variáveis de processo.
5. Desenvolvimento de produção de pastilhas de 40 mm de diâmetro para o conjunto sub-crítico RE-SUCO atualmente em construção no IEA. Os estudos procedidos visaram adaptar os dados obtidos anteriormente para o projeto detalhado das operações, tendo em vista principalmente os aspectos econômicos e a utilização de aparelhos e fornos construídos em São Paulo. O programa exige a produção de cerca de 2.060 kg de pastilhas para constituir 231 elementos combustíveis fechados, de liga de alumínio 1100, tendo 930 mm de altura útil no caroço. Esse trabalho exigiu a construção de fornos especiais para a redução e para a sinterização, dotados destes de zonas distintas de temperatura regulável.
6. Trabalhos referentes à produção dos elementos combustíveis para o reator ARGONAUTA, do Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro, Estado da Guanabara. Acham-se presentemente em fase de projeto adiantado todas as etapas necessárias à produção dos elementos planos para esse reator, segundo projeto modificado pelo "Argonne National Laboratory". Os elementos combustíveis serão obtidos por "roll bonding" e não por extrusão, a partir de "cermet" de alumínio e  $U_3O_8$  tendo 20% de enriquecimento em  $U^{235}$  (a ser obtido por cessão pela "Atomic Energy Commission" dos Estados Unidos).
7. Desenvolvimento de processo para lixiviação alcalina sob altas pressões, de determinados minérios de urânio.
8. Desenvolvimento de forno de escala piloto para a fluoretação por HF sêco de  $UO_2$ , obtido por redução de diuranato de amônio. Além de permitir estudar os característicos do tetrafluoreto de urânio do ponto de vista de seu comportamento nas bombas de redução com magnésio, essa unidade será também empregada nos estudos preliminares relativos à produção de tetrafluoreto de tório, a partir do óxido que vem sendo há muitos anos produzido pela Orquima S.A. para a Comissão Nacional de Energia Nuclear.

## 6. CONCLUSÕES

1. O desenvolvimento do programa da Comissão Nacional de Energia Nuclear visando a implantação de reatores de potência, confere grande importância à instituição de um agrupamento dedicado aos problemas tecnológicos da metalurgia nuclear.

2. De acordo com a orientação descrita, a ênfase principal será dirigida para os setores tecnológicos mencionados, a começar pelos de produção de urânio e tório metálicos e terminando pelos de inspeção de elementos combustíveis, para abranger ainda, dentro em breve, problema de reprocessamento de combustíveis irradiados, pelo processo pirometalúrgico.

3. A segunda etapa do programa descrito, a ter início dentro de poucos meses, permitirá ampliar consideravelmente os programas em andamento, estabelecendo assim as condições para acelerar a formação dos especialistas necessários aos desenvolvimentos futuros da metalurgia nuclear no Brasil.

4. As atividades realizadas pela Divisão, inclusive as que foram desenvolvidas pelo Instituto de Pesquisas Tecnológicas antes da criação definitiva da Divisão, embora limitadas pelo tempo e pelo número de especialistas, já constituem um acervo considerável para a posterior evolução do plano.

## AGRADECIMENTOS

Agradecem os Autores ao Prof. Dr. Marcello Damy de Souza Santos, presidente da Comissão Nacional de Energia Nuclear, pelo entusiástico apoio que vêm recebendo, extensivo ao Prof. Dr. Luiz Cintra do Prado, diretor do Instituto de Energia Atômica, e inclusive por ter sido autorizada a apresentação desta contribuição ao XVII Congresso Anual da ABM. Agradecem igualmente ao Prof. Dr. Francisco João Maffei, pela colaboração prestada pelo Instituto de Pesquisas Tecnológicas, sem a qual teria sido sobremodo difícil realizar em curto prazo o trabalho até agora realizado.

## REFERÊNCIAS

1. LIMA, F. W. — "O processo desenvolvido no IEA para a produção de di-uranato de amônio de pureza nuclear". Trabalho apresentado em conferência ao III Simpósio Inter-Americano sobre as Aplicações Pacíficas da Energia Nuclear; Petrópolis, julho de 1960.
2. SOUZA SANTOS, T. D.; BARCELLOS LEITE, P. e SIMÕES LOPES, I. — "Produção de pastilhas de  $UO_2$  de alta densidade a partir de di-uranato de amônio". Trabalho apresentado em conferência ao III Simpósio Inter-Americano de Energia Nuclear; Petrópolis, julho de 1960.

## DISCUSSÃO

**P. S. Pereira da Silva** <sup>(1)</sup> — Este trabalho deveria ter sido apresentado neste Congresso pelo Prof. Tharcisio Damy de Souza Santos; chamado com urgência à Europa, encarregou-me de aqui representá-lo. Os autores pretendem dar uma notícia do que está sendo realizado em São Paulo no campo da metalurgia nuclear. Terei prazer em prestar as informações que forem solicitadas.

**A. de Lima e Silva** <sup>(2)</sup> — Numa pesquisa sobre comportamento de revestimentos refratários, na Usina de Monlevade, usamos refratário com óxidos de urânio e de tório como traçadores, para verificar o carreamento desse refratário pelo aço. Indago se tem certeza de que esses óxidos são estáveis no aço lingotado. Porque, pela confrontação das energias livres dadas por outros autores, a conclusão é que as energias livres de formação dos óxidos de alumínio e titânio são menores do que as de tório. Eu queria saber se, pelos processos de obtenção de urânio tem-se a segurança de que esses óxidos permaneceram na escória em vez de penetrar no aço. Por meio de análises químicas, confirmamos que o carreamento no refratário era muito pequeno, o que foi confirmado também pela não radioatividade do material sob a forma de óxido no aço. Quando falo em óxido estável, refiro-me a estabilidade desses óxidos na presença de alumínio, silício e titânio. Eles poderiam ser reduzidos ao penetrar nos lingotes. Para evitar essa dúvida, pretendemos usar isótopos radioativos artificiais.

**H. Lopes de Amorim** <sup>(3)</sup> — Eu talvez pudesse encaminhar o assunto, quanto à pergunta do Eng. Lima e Silva. A resposta à sua indagação está publicada no livro "*National Nuclear Energy Series: Metallurgy and Fuels*", volume V. Segundo o que aí encontra-se relatado, foram feitos estudos da redução do óxido de urânio em diversos metais. Informam que esse processo não é usado na redução de urânio, porque forma uma liga que virá prejudicar a pureza desse metal. De outro lado, o óxido em contacto com o alumínio talvez dê uma redução. Mas o livro referido dá uma série de trabalhos e de estudos, dos quais assim de pronto não tenho dados. Mas o Eng. Armênio de Lima e Silva encontrará nesse livro o esclarecimento desejado.

**P. S. Pereira da Silva** — Quanto ao uso de elementos radioativos como traçadores, sugeriria que o Eng. Lima e Silva entrasse em contacto com a Divisão de Engenharia Nuclear, que está desenvolvendo trabalhos nesse sentido.

**Luiz Neves** <sup>(4)</sup> — Desejaria saber o que se realizou em Argonne, especificamente para o trabalho do "Argonauta".

**H. Motta Haydt** <sup>(5)</sup> — O "Projeto Argonauta" foi para um reator a ser construído no "Argonne National Laboratory". Os desenhos pertencem à Comissão Americana de Energia Nuclear. A Comissão Nacional de Energia Nuclear, comprou esses desenhos para fabricar um reator desse tipo a ser instalado no Rio de Janeiro. Ele está praticamente pronto e a questão dos elementos combustíveis está a cargo do

(1) Membro da ABM; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica de São Paulo; São Paulo, SP.

(2) Membro da ABM; Engenheiro da usina de Monlevade da Cia. Siderúrgica Belgo-Mineira; Monlevade, MG.

(3) Membro da ABM; Instituto Militar de Engenharia, Rio de Janeiro, GB.

(4) General do Exército e Engenheiro; na Presidência da Comissão Técnica; Diretor do IME; Rio de Janeiro, GB.

(5) Membro da ABM e do Corpo de Engenheiros e Técnicos Navais; da Divisão de Metalurgia do Instituto de Energia Atômica; São Paulo, SP.

Instituto de Energia Atômica, em São Paulo. O processo desenvolvido em Argonne foi modificado para as nossas condições aqui no Brasil. Tôda a responsabilidade do projeto é nossa.

**J. A. Sabato** (\*) — Primeiramente, desejaria saber se o relator do trabalho apresentado poderia descrever a obtenção por "swaging" do elemento combustível de  $UO_2$ .

**P. S. Pereira da Silva** — Êsses estudos de obtenção de elemento combustível por "swaging" foram realizados pelo Prof. T. D. de Souza Santos, no IPT, antes da criação da Divisão de Metalurgia Nuclear, mas não foram completados a ponto de se poder publicar um trabalho a êsse respeito. Assim que o problema do RE-SUCO estiver resolvido, o Prof. Souza Santos terá oportunidade de publicar um trabalho nesse sentido.

**J. A. Sabato** — O elemento combustível leva alumínio como material de revestimento?

**P. S. Pereira da Silva** — Sim, a liga 1100.

**J. A. Sabato** — Outra pergunta é a respeito do regime de sinterização de  $UO_2$ , que se vai ampliar para 4 cm de diâmetro. Êsse tratamento vai ser feito com hidrogênio na etapa final?

**P. S. Pereira da Silva** — Provavelmente, a etapa final será realizada com hidrogênio. Sabemos que com argônio realmente a densidade seria mais alta. Mas isso não nos preocupa muito, porque a densidade que desejamos é relativamente baixa. O nosso problema maior é o da condutividade térmica, devido ao tamanho avantajado da pastilha, de 4 cm de diâmetro a cerca de 3 cm de altura.

**J. A. Sabato** — Desejaria saber agora o seguinte: para o projeto dos fornos de sinterização, qual a temperatura máxima prevista?

**P. S. Pereira da Silva** — Os fornos estão sendo feitos por uma companhia de São Paulo; foram projetados de tal maneira que é fácil a substituição dos elementos de aquecimento. No momento, para a aplicação do RE-SUCO a temperatura necessária vai ser beixa, da ordem de  $1.200^{\circ}C$ . Para desenvolvimento futuro, como complementação daqueles trabalhos de pastilhas de alta densidade, então o forno poderá ser adaptado para temperaturas mais elevadas. O importante é que o forno permite grande maleabilidade de operação, devido às 8 zonas de que dispõe, com controle independente de temperatura. A velocidade de aquecimento pode ser muito bem controlada. Seria um processo contínuo de sinterização com um forno trabalhando 24 horas por dia, sem interrupção.

**J. A. Sabato** — Qual vai ser o núcleo para o elemento combustível tipo "Argonauta". Que tamanho vai ter?

**H. Motta Haydt** — As dimensões são as mesmas do elemento "Argonauta" original.

**J. A. Sabato** — Quería saber qual o núcleo e a composição. Qual o óxido que se vai empregar? Que dimensões tem êsse núcleo?

**R. M. Bidwell** (7) — Êsse núcleo deve ter 2 mm de espessura e cerca de 68 mm de largura. Não tenho aqui os dados relativos às suas dimensões exatas.

(6) Membro da ABM e Diretor da Divisão de Metalurgia da "Comisión Nacional de Energia Atômica" da República Argentina, Buenos Aires.

(7) Membro da ABM e Conselheiro da Agência Internacional de Energia Atômica junto à CNEN; Instituto de Energia Atômica de São Paulo, SP.