

**FUSÃO E LINGOTAGEM DE URÂNIO SOB VÁCUO EM
FORNO ELÉTRICO DE LABORATÓRIO**

*CLAUER TRENCH DE FREITAS, SEBASTIAO HERMANO LEITE
CINTRA, ERBERTO FRANCISCO GENTILE, JOSÉ
DEODORO TRANI CAPOCCHI*



PUBLICAÇÃO IEA N.º 161
Junho — 1968

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

FUSÃO E LINGOTAGEM DE URÂNIO SOB VÁCUO
EM FORNO ELÉTRICO DE LABORATÓRIO

Clauer Trench de Freitas
Sebastião Hermano Leite Cintra
Erberto Francisco Gentile
José Deodoro Trani Capocchi

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

Publicação IFA nº 161
Junho - 1968

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof. Uriel de Costa Ribeiro

Universidade de São Paulo

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

Instituto de Energia Atômica

Director: Prof. Nônio Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IFA

Prof. Dr. José Moura Gonçalves	}	pela USP
Prof. Dr. José Augusto Martins		
Prof. Dr. Rui Ribeiro Franco	}	pela CNEN
Prof. Dr. Theodoro M. 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 Metalurgia Nuclear -
Chefe: Prof. Dr. Tharcísio D.S. Santos

Divisão de Engenharia Química -
Chefe: Lic. Alcídio Abrão

Divisão de Engenharia Nuclear -
Chefe: Eng.º Pedro Bento de Camargo

Divisão de Operação e Manutenção de Reatores -
Chefe: Eng.º Azor Camargo Penteado Filho

Divisão de Física de Reatores -
Chefe: Prof. Paulo Saraiva de Toledo

Divisão de Ensino e Formação -
Chefe: Prof. Dr. Rui Ribeiro Pieroni

FUSÃO E LINGOTAGEM DE URÂNIO SOB VÁCUO
EM FORNO ELÉTRICO DE LABORATÓRIO

Clauer Trench de Freitas
Sebastião Hermano Leite Cintra
Erberto Francisco Gentile
José Deodoro Trani Capocchi

RESUMEN

La fusión y lingotaje de uranio en vacío, obtenido en las bombas de reducción , constituyen importantes operaciones metalúrgicas para la fabricación posterior de elementos combustibles que emplean el metal o sus aleaciones, inclusive en virtud de causar refino parcial. Con el objeto de estudiar el rendimiento de obtención de lingotes a partir de cargas de uranio bruto, y la determinación de la mejor secuencia de las operaciones para la degasificación del crisol y de la carga, bien como la eliminación de las impurezas presentes, fueron realizadas experiencias en escala de laboratorio, utilizando horno eléctrico de resistencia "Wild Barfield".

En esas experiencias fueron utilizadas pequeñas cargas de metal bruto, temperaturas finales entre 1300 e 1460 °C y presiones finales entre 0,20 e 0,09 micrones de mercurio, variándose también el tiempo de duración de esas operaciones.

Los pesos de los lingotes obtenidos fueron entre 77,1 y 90,4 % de la carga.

El empleo de los crisoles de grafito, dotados de tapa y con las características de construcción descriptas, fue enteramente satisfactorio, porque todavía no se disponía de datos en cuanto al tenor de carbono en los lingotes obtenidos.

RÉSUMÉ

La fusion et lingotage sous vide de l'uranium, obtenu dans des enceintes de réduction, constituent d'importantes opérations métallurgiques pour la fabrication d'éléments combustibles qui emploient le métal ou ses alliages, aussi à cause du raffinage partiel ainsi

produit. Ayant pour but l'étude du revenu, d'obtention de lingots à partir des charges d'uranium brut, obtenues à la División de Metalurgia Nuclear, du comportement de creusets de graphite, et de la détermination de la meilleure suite d'opérations pour le dégazage du creuset et de la charge, aussi bien que l'élimination d'impuretés présentes, on a fait des expériences en échelle de laboratoire, en employant un four électrique de résistance "Wild-Barfield".

Dans ces expériences on a utilisé de petites charges de métal brut, des températures finales entre 1300 et 1460°C et des pressions finales entre 0,20 et 0,09 microns de mercure, en étant varié aussi le temps de durée de ces opérations. Les poids des lingots ont été obtenus avec 77,1 et 90,4% du poids de la charge.

L'emploi de creusets de graphite, dotés de tampon et avec les caractéristiques de construction décrites, a été entièrement satisfaisant, bien que l'on n'ait pas encore des données quant au dosage de carbone dans les lingots obtenus.

ABSTRACT

Melting and casting of uranium under vacuum are important metallurgical operations for the fabrication of metallic fuel elements, being important the fact that these operations allow partial refining of the charge.

In this paper are described the operations conducted in a Wild Barfield electric resistance furnace, under vacuum, starting with uranium buttons obtained by magnesium reduction of uranium tetrafluoride. The objectives were to determine the yield of ingots, the behavior of the machined graphite crucibles produced, the establishment of the best sequence of operations for degassing the crucible and the charge, and the removal of entrapped impurities.

Small charges of uranium buttons were used and the operations were carried out in the range of 1300 to 1460°C under residual pressures between 0,20 and 0,09 microns of mercury. The obtained ingots corresponded between 77,1 and 90,4 pct. of the weight of the charges.

The used of covered machined graphite crucibles and the described construction features were wholly satisfactory.

FUSÃO E LINGOTAGEM DE URÂNIO SOB VÁCUO EM FORNO ELÉTRICO DE LABORATÓRIO⁽¹⁾

CLAUER TRENCH DE FREITAS⁽²⁾
SEBASTIÃO HERMANO LEITE CINTRA⁽³⁾
ERBERTO FRANCISCO GENTILE⁽²⁾
JOSÉ DEODORO TRANI CAPOCCHI⁽³⁾

RESUMO

A fusão e lingotagem sob vácuo de urânio obtido nas bombas de redução, constituem importantes operações metalúrgicas para a fabricação posterior de elementos combustíveis que empregam o metal em suas ligas, inclusive em vista de causarem refino parcial. Com o objetivo de estudar o rendimento de obtenção de lingotes a partir de corpos de urânio bruto, obtidos na Divisão de Metalurgia Nuclear, o comportamento de cadinhos de grafita, e a determinação da melhor sequência de operações para a desgasificação do cadinho e da carga, bem como a eliminação de impurezas presentes, foram realizadas experiências em escala de laboratório, utilizando forno elétrico de resistência "Wild-Barfield".

Nessas experiências foram utilizados pequenos corpos de metal bruto, temperaturas fixas entre 1350 e 1450°C e pressões fixas entre 0,20 e 0,29 milhões de mercúrio, variando-se também a tempo de duração dessas operações.

Os pesos dos lingotes obtidos caíram entre 77,1 e 90,5% da carga.

O empelgo de cadinhos de grafita, estudado de tempo e com as características de construção descritas, foi inteiramente satisfatório, conquanto ainda não se disponha de dados operató no teor de carbono nos lingotes obtidos.

1. INTRODUÇÃO

O programa de pesquisas da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica, para o corrente ano, previu a obtenção de urânio metálico para ser utilizado na confecção de ligas alumínio-urânio, que foram empregadas na confecção de elementos combustíveis planos revestidos com liga de alumínio⁽¹⁾.

A obtenção de urânio metálico para esta utilização envolve duas etapas. A primeira consiste na redução de UF₆ por Mg⁽²⁾ e a segunda na fusão e lingotagem do material obtido na operação anterior, com o objetivo da eliminação das impurezas inerentes ao processo de redução.

A realização do presente estudo justifica-se, também, pela necessidade do desenvolvimento de tecnologia básica necessária para a operação do forno a vácuo, de indução, com capacidade de 40 kg de carga, cuja montagem está sendo feita dentro das instalações desta Divisão.

2. GENERALIDADES SOBRE TÉCNICA DE FUSÃO DE URÂNIO

O urânio é um metal que apresenta alta reatividade ao ar, tendo a 500°C uma velocidade de oxidação⁽³⁾ de 157 mg./cm².h, com a forma-

ção de diversos óxidos, tornando-se necessário que a operação com metal a altas temperaturas seja realizada sob condições que previnam a oxidação.

As técnicas empregadas para a fusão e lingotagem, conforme apresentado por W. D. Wilkinson⁽⁴⁾, são as seguintes:

- 1) Fusão a vácuo.
- 2) Fusão sob atmosfera inerte.
- 3) Fusão com escória protetora.

A fusão a vácuo é a técnica que apresenta condições ideais por favorecer a volatilização das impurezas de alta pressão de vapor, sendo amplo o seu emprego, seja em escala industrial, utilizando aquecimento por indução, seja em escala de laboratório, onde além do aquecimento por indução, também é utilizado o aquecimento por resistência.

3. DESCRIÇÃO DA PARTE EXPERIMENTAL

Forno Wild-Barfield — Nas experiências em curso na Divisão de Metalurgia Nuclear cujos resultados, obtidos até o presente, são apresentados neste trabalho, é utilizado um forno a vácuo, de laboratório, de 20 kVA, fabricado por "Wild-Barfield Electric Furnaces Limited" (fig. 1). Esta unidade permite a operação sob vácuo de 10⁻⁴ mm de mercúrio, contando o sistema com uma bomba mecânica "Leybold" e uma bomba de difusão "Wild-Barfield", de três estágios, com velocidade de bombeamento de 350 l./seg. O elemento de resistência é de tungstênio.

(1) Contribuição Técnica n.º 740. Apresentada ao XXII Congresso Anual da ABM, Vitória, ES, junho de 1967.

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

(3) Membro da ABM; Engenheiro Metalurgista e Nuclear; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo.

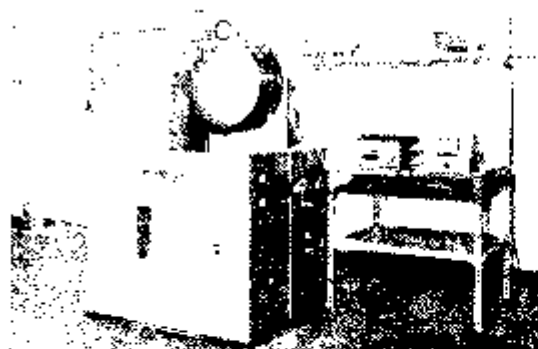


Fig. 1. Fotografia do forno elétrico de laboratório, sob vácuo, "Wild-Burfield" empregado nas experiências, mostrando também, os equipamentos utilizados na determinação de temperatura e pressão.

tório, circundado na sua parte externa por blindagens térmicas de molibdênio (fig. 2). O recinto do forno propriamente dito é construído em cobre, refrigerado por água, que circula em serpentinas do mesmo material, à pressão de 28 metros de água, garantindo uma vazão de 8 l/min. A manipulação de todas as partes internas à câmara de vácuo pode ser realizada externamente por meio de dispositivos adequados.

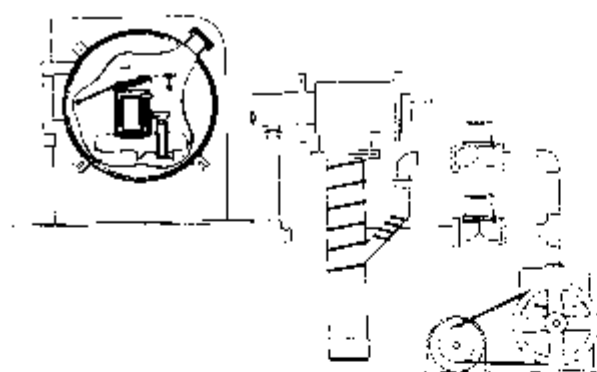


Fig. 2. Esquema do sistema de vácuo e da câmara de fusão.

Cadinho e lingoteira — A unidade acima descrita não permite o vazamento da carga fundida por orifício na base do cadinho, que é o processo mais conveniente para as operações de lingotagem de urânio, pois evita a contaminação do lingote com as impurezas insolúveis que sobrenadam o banho.

A solução adotada para contornar essa dificuldade foi a utilização de cadinho com bico de chaleira que, apesar de apresentar a desvantagem da diminuição de seu volume útil, garante a retenção das impurezas insolúveis nas paredes do mesmo.

Outro fator importante no que se refere ao projeto do cadinho é a necessidade da utilização de tampa superior para evitar a projeção de urânio fundido por ocasião da efervescência, que ocorre durante o processo de fusão. Tal ejeção de material pode danificar os componentes do forno.

Face às características desejáveis para o cadinho, o material empregado na sua confecção foi grafita, proveniente de eletrodos, por apresentar boa usinabilidade e permitir qualquer velocidade de aquecimento, sem apresentar o problema de choque térmico.

A fusão de urânio em grafita tem o inconveniente da contaminação de carbono que pode chegar a níveis superiores a 1.000 ppm⁴. Tor-na-se então necessário o emprego de revestimento de óxidos refratários que minimizam essa contaminação. Estudos realizados por Feder e colaboradores² e por Magoteaux e colaboradores³, empregando revestimentos de MgO, Al₂O₃, ZrO₂, ThO₂, BeO, MgZrO₃ e espinélio, 20% em moles de MgO, mostraram que os melhores resultados foram obtidos com os dois últimos materiais aplicados no estado de semi-fusão sobre as paredes do cadinho. O aumento do teor de carbono caiu para 73 e 198 ppm respectivamente. No estágio dos estudos desenvolvidos não foram aplicados revestimentos protetores sobre o cadinho, o que deve ser objetivo da próxima fase dos trabalhos.

A não existência de revestimento, além de dar origem à contaminação por carbono, é responsável pela formação de espessa camada de produtos de reação constituída de carbonetos de urânio, o que pode ser constatado na tabela I, onde é apresentada a variação de massa do cadinho antes e após a operação.

Podemos notar que a variação de massa decresce com o número de utilizações do cadinho, pois a camada de carboneto formada atua como revestimento.

Para evitar a contaminação do urânio pelas impurezas contidas no cadinho, decorrente das operações de usinagem, o mesmo foi, antes de cada série de operações, degaseificado a temperatura 50°C superior à de trabalho e a vácuo de 0,01 microns de mercúrio.

As lingoteiras utilizadas nas presentes experiências eram cilíndricas, com conicidade de 1,5° e de diâmetro médio de 26,5 mm para as sete primeiras experiências, 30 mm na oitava e 17 mm na última. Com exceção da última que era de cobre, as outras eram de grafita.

A adoção de lingoteiras em grafita apresenta os problemas da necessidade de revestimento protetor contra contaminação e da erosão provo-

TABELA I — Variação da massa do cádmio na operação de fusão

Operação (N.º)	Massa do cádmio antes (g)	Massa do cádmio depois (g)	Variação de massa (%)	Utilização do cádmio	Observações
1	317,9 ± 0,1	305,9 ± 0,1	148,0 ± 0,1	1,0	---
2	305,9 ± 0,1	298,8 ± 0,1	79,0 ± 0,1	2,0	---
3	286,8 ± 0,1	290,6 ± 0,1	33,7 ± 0,1	3,0	---
4	280,0 ± 0,1	177,8 ± 0,2	87,2 ± 0,1	4,0	Contaminação com molibdênio
5	256,9 ± 0,1	260,5 ± 0,1	99,0 ± 0,1	1,0	-
6	273,0 ± 0,1	183,5 ± 0,1	108,5 ± 0,2	1,0	Cádmio com lama
7	259,6 ± 0,1	223,6 ± 0,2	73,0 ± 0,1	2,0	Cádmio com lama
8	120,1 ± 0,1	177,1 ± 0,1	37,3 ± 0,1	3,0	Cádmio com lama
9	274,3 ± 0,1	302,1 ± 0,1	81,8 ± 0,1	2,0	Cádmio com lama



Fig. 3 — Fotografia do lingote de urânio obtido na segunda utilização da lingoteira de grafita.



Fig. 4 — Fotografia do lingote de urânio obtido na sexta utilização da lingoteira de grafita, podendo-se observar irregularidades superficiais devido à deterioração da superfície interna da lingoteira, face à erosão provocada pelo jato de urânio líquido.

cada pelo jato do urânio líquido. Nas figuras 3 e 4 são apresentados dois lingotes de urânio obtidos, respectivamente, na segunda e sexta operação com a mesma lingoteira. Face a deterioração da superfície interna da mesma, podemos observar irregularidades no lingote.

O forno de laboratório "Wild-Barfield" não permite o aquecimento da lingoteira, o que é necessário para evitar a condensação das impurezas voláteis nas suas paredes internas, bem como resfriamento controlado. No caso de se trabalhar com molde frio, por ocasião da lingotagem há volatilização destas impurezas, provocando o aparecimento de bôlhas no tópo do lingote.

A fim de prevenir a ocorrência de respingos de metal quente sobre as partes constituintes do forno, por ocasião do vazamento, foi utilizado um funil, também de grafita, encaixado no tópo da lingoteira.

Preparação da carga — A carga utilizada para as presentes experiências foi constituída de botões obtidos pela redução do UF₄ por Mg⁰.

Os botões provenientes da redução contêm, retidos na sua superfície, escória e magnésio não reagido, sendo necessária a sua retirada.

A remoção dessas impurezas foi realizada por decapagem em solução de HNO₃, a 10% em volume, acompanhada, em alguns casos, de decapagem em água quente, a fim de reduzir a quantidade de urânio dissolvido no ácido nítrico⁷. A decapagem em água quente ajuda a remoção do fluoreto de magnésio, bem como reduz o tempo de permanência do botão na solução ácida. Deve-se destacar que anteriormente a

essa limpeza foi realizada com escova de aço³.

A seguir o botão foi partido, utilizando-se ferramenta apropriada, em prensa com esforço de até 5 toneladas. Esta quebra tornou-se necessária face às dimensões internas do cadinho utilizado. Por ocasião deste fraturamento também ocorria o despreendimento de escória e magnésio não reagido da parte central do botão.

As variações de massa ocorridas nas duas operações são apresentadas na tabela II.

Carregamento — As cargas para as nove operações de fusão e lingotagem do urânio foram constituídas de botões, lingotes de operações anteriores e material retido no funil e na bica de vazamento. A composição das diversas cargas é indicada na tabela IV.

A quantidade de material de carga para as diversas operações foi determinada para ocupar no máximo 50% do volume útil do cadinho, quando no estado líquido, sendo porém função da forma do material no estado sólido.

A operação de carregamento foi realizada de modo a se evitar todo e qualquer contato que pudesse contaminar o cadinho e o forno.

Técnica de fusão e de lingotagem — A fusão a vácuo, como já anteriormente afirmado, apresenta a vantagem de favorecer a volatilização das impurezas de alta pressão de vapor, que contaminam a carga, provenientes dos processos anteriores.

Na tabela III¹ podemos observar as pressões de vapor de algumas impurezas a 1227°C. A essa temperatura a pressão de vapor de urânio é menor que 10^{-4} mm Hg.

TABELA III — Pressão de vapor de alguns fluoratos a 1227°C

Fluoratos	Pressão de vapor (mm Hg)
MgF ₂	3,8 / 10 ⁻²
LiF	11
KF	68
UF ₆	72

As técnicas de fusão podem, de uma forma geral, ser resumidas em dois tipos de processamento.

A primeira é uma velocidade de aquecimento lenta, mantendo-se a pressão sempre inferior a um determinado valor, e a segunda, um tempo curto com alta velocidade de aquecimento, seguida de permanência durante determinado tempo num patamar de temperatura, abaixando-se a temperatura para o vazamento.

A segunda técnica parece ser mais vantajosa, pois: 1) permite menor tempo de permanência de urânio líquido, dentro do cadinho; 2) favorece a segregação das impurezas não voláteis.

TABELA II — Variação de massa nas operações de preparação de carga

N.º do Botão	LIMPEZA				QUEBRA				Observações	
	Massa antes (g)	Massa depois (g)	Variação de massa (g)	(%)	Massa depois (g)	Variação de massa (g)	(%)	Variação de massa (total) (g)		(%)
10	596,3	578,1	-18,2	-3,0	573,7	-5,5	-0,9	-23,6	-4,0	Corrida n.º 4
11	592,1	561,5	-30,5	-5,1	557,5	-4,1	-0,7	-14,8	-2,4	Corridas n.ºs 4, 5 e 6
6	586,9	564,0	-22,9	-3,9	554,8	-29,2	-5,0	-32,1	-5,5	Corridas n.ºs 6, 7 e 9
13	895,9	877,3	-18,6	-2,1	867,1	-10,2	-1,2	-28,8	-3,2	Corridas n.ºs 7, 10 e 13
14	597,5	565,9	-31,6	-5,3	564,3	-1,8	-0,3	-3,5	-0,6	Corrida n.º 8 - Redução c UF ₆ seco a 350°C - Excesso de Mg de 5%
17	931,7	918,2	-13,5	-1,5	895,5	-24,7	-2,8	-36,2	-3,9	Corridas n.ºs 9, 10 e 13
	4181,0	4113,3	-67,5	-1,6	4042,2	-71,3	-1,8	-138,8	-3,3	

O problema que se apresenta na segunda técnica é o controle da efervescência, sendo necessário adotar-se soluções que previnam a projeção de metal líquido.

Na figura 5 podemos observar um gráfico da evolução da pressão e da corrente na resistência em função do tempo. Não houve

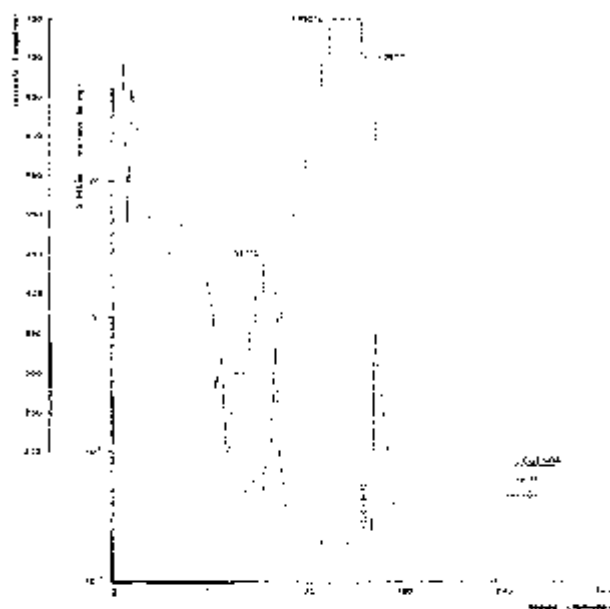


Fig. 5 Gráfico da evolução da pressão e da corrente na resistência em função do tempo.

uma medida direta da temperatura durante o aquecimento, face à perda térmica que ocorre por ocasião da abertura do recinto do forno. Apenas foram tomadas medidas de temperatura para alguns pontos característicos do processo de fusão. A unidade empregada nesta experiência tem como limite de trabalho para a bomba de difusão a pressão de 10 microns de Hg, daí a necessidade do abaixamento da tensão aplicada à resistência, quando o vácuo é inferior a 5 microns de Hg.

A existência do patamar favorece a eliminação das impurezas voláteis, bem como a coalescência das impurezas insolúveis e sua subida para a superfície do banho. O tempo de permanência no patamar é limitado, porém, pela contaminação de carbono do cadinho, devendo no entanto, ser coerente com o mecanismo de purificação em desenvolvimento².

A rápida redução da corrente após o patamar tem como objetivo provocar um resfriamento brusco da carga, para que ocorra variação da solubilidade dos gases, H₂ principalmente, e com isso favorecer a degaseificação do metal.

4 RESULTADOS EXPERIMENTAIS

Durante esta série de experiências foram realizadas nove fusões e lingotagens. Os resultados obtidos são apresentados na tabela IV.

TABELA IV - Características gerais das operações de fusão e lingotagem

Características	Corrida n.									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	
Carga	Massa em botões (g)	839,2	239,8	608,5	528,5	700,0	227,7	434,1	209,1	—
	Massa em lingotes (g)	—	670,9	—	—	—	517,2	—	363,1	348,8
	Massa em material incrementado (g)	—	15,7	0,8	29,1	—	—	26,2	21,1	18,8
	Massa total (g)	839,2	926,4	615,3	557,6	700,0	744,9	460,3	503,3	387,1
	Porcentagem de massa em lingotes (%)	—	72	—	—	—	69	—	61	93
Lingotamento	Massa do lingote (g)	670,9	837,8	517,2	428,4	572,4	610,9	363,6	499,7	285,4
	Rendimento (%)	79,9	90,1	84,2	77,1	80,6	82,1	79,1	84,2	77,7
	Massa do material no furo (g)	15,7	0,8	29,1	29,4	12,6	17,1	21,8	18,7	—
	Massa do material no cadinho (g)	148,0	70,9	53,7	87,2	93,6	108,4	70,0	57,8	81,9
	Porcentagem total de massa retida (%)	19,5	8,4	13,4	19,8	15,0	15,9	19,9	12,8	22,3
	Variação porcentual da massa (%)	- 0,6	1,2	- 2,3	- 3,3	4,4	- 1,0	1,0	- 2,9	—
	Temperatura no vazamento (°C)	1350	1480	1400	1450	1400	1870	1460	1560	1320
	Pressão no vazamento (μ Hg)	0,20	0,25	0,15	0,20	0,12	0,12	0,09	0,22	0,23
	Tempo de vazamento (s.)	16	17	13	15	11	17	17,5	7	5
	Vazão (g/s)	42,0	48,3	39,8	28,5	51,1	35,9	20,8	71,4	57,1
Operação	Tempo de aquecimento (min)	214	91	95	118	95	90	282	68	69
	Tempo de patamar (min)	15	20	34	10	30	36	30	20	20
	Velocidade de aquecimento (°C/h)	350	920	880	740	890	910	390	1280	1280

O máximo rendimento ocorreu na segunda operação, onde a carga era 72% constituída de lingotes; o material retido foi de apenas 8,4%, face ao fato de ser a segunda utilização do cadinho, portanto, já existindo uma camada protetora ligada às suas paredes. A nona operação, em que a carga era constituída apenas de lingotes, apresentou 22,3% de sua massa retida nas paredes do cadinho, devido a ser a primeira utilização do mesmo, dando um rendimento de 77,7%.

Na quarta operação ocorreu o despreendimento de parte da blindagem térmica superior do recinto do forno, que possivelmente foi dissolvida pelo banho de urânio líquido. O rendimento obtido, bem como a superfície do lingote denunciaram baixa temperatura de vazamento, o que pode ser correlacionado com o fato do diagrama de equilíbrio U-Mo apresentar linha de "liquidus" ascendente do lado de U.

A diferença de massa ocorrida entre o total carregado e a soma das quantidades obtidas como lingote e material retido apresenta um intervalo de variação de 0-4,4%, sendo o mínimo valor para a operação em 100% de carga refundida e o máximo para operação com carga constituída apenas de botões e cadinho sem tampa. Esta diferença é decorrente de perdas por projeções de metal líquido e pela evolução de impurezas de alta pressão de vapor. A segunda causa explica a não existência de variação com 100% de carga refundida e é função das condições em que se realizaram as operações de redução. Esta diferença, conforme Wilkson¹ é da ordem de 1 a 2%.

Na tabela V são apresentados, de forma global, os resultados obtidos nas nove experiências realizadas, dando um rendimento médio de 82,9%, em relação à carga original proveniente de botões.

TABELA V - Dados globais das operações de fusão e ligatagem

Botões carregados (g)	3.796,8
Lingotes produzidos (g)	3.148,9
Rendimento (%)	82,9

5. CONCLUSÕES

1. A utilização de cadinho com bico de chaleira permitiu obter lingotes isentos de contaminações das impurezas insolúveis, que sobrenadam o banho, por permitir vazar primeiramente a carga metálica.

2. A tampa colocada sobre o cadinho evita que projeções de metal líquido venham atingir as partes constituintes do forno e, em particular, a resistência e as blindagens.

3. A não utilização de revestimento sobre as paredes internas do cadinho acarreta contaminações de carbono e dá origem a camadas espessas de material retido.

4. As bôlbas que aparecem no topo do lingote são originárias da volatilização das impurezas, principalmente magnésio, que se depositam na superfície interna da lingoteira durante o processo de fusão. Essa deposição resulta de não ser aquecida a lingoteira.

5. Das operações de preparação da carga: a limpeza foi realizada em solução de ácido nítrico, acompanhada de imersão do botão em água quente, a fim de minimizar a reação do urânio metálico com o ácido; e a quebra, com ferramenta especial. Esta última contribui, também, para a separação de impurezas. A variação média de massa para a operação de limpeza foi de 1,6% e para a de quebra 1,8%, dando um total de 3,3%.

6. A carga foi constituída de botões provenientes da redução de UF₆ por Mg, de lingotes e de material retido, sendo calculada para ocupar no máximo 50% do volume do cadinho, quando líquida.

7. A técnica de fusão mais favorável é a do aquecimento rápido, seguido de um patamar a temperatura pré-determinada. O tempo total de operação deve ser o menor possível.

8. A diferença de massa carregada e da massa após a operação de fusão variou até 4,4%, variação essa dependente dos característicos da carga e do formato do cadinho.

9. Nas nove experiências realizadas foram fundidos 3.796,8 g de botões, obtendo-se 3.148,9 g de urânio em lingotes. O rendimento médio foi de 82,9%, com um valor máximo de 90,4% para operação com carga de 72% em forma de lingote e cadinho já utilizado anteriormente.

BIBLIOGRAFIA

1. HAYDT, H. M. & CINTRA, S. E. L. - Nota Preliminar Sobre a Fabricação de Elementos Combustíveis Planos Contendo Núcleo de Ligas de Alumínio-Urânio. META-LURGIA, v. 22, n.º 121, p. 955-959, dezembro 1967.
2. FREITAS, C. T. - Redução do Tetra-Fluoreto de Urânio por Magnésio. Estudo Experimental da Influência de Algumas Variáveis. Apresentando no XXII Congresso da ABM (a ser impresso), julho 1967.
3. MONTENYOHLE, V. E. - Uranium. In: *Radioactive Handbook*, v. 1, 2.ª ed., p. 130 - Interscience Publishers, Inc., N. Y., 1967.

1. WILKINSON, W. D. - Uranium Metallurgy, Vol. 1, nos. 2 e 3, Interscience Publishers, Inc. N. Y., 1962.
5. FEDER, H. M., CHELLEY, N. H. & ROSEN, C. L. - Interaction of Uranium and Its Alloys with Ceramic Oxides - ANI - 5785, 1967.
6. MAGOTEAUX, G. B.; ELSTON, D. I. & HALL, C. F. - Laboratory Evolution of Graphite Crucible Coating for Vacuum Melting Uranium - NUCC - 759, 1959.
7. CUTHBERT, F. L. - Casting and Fabrication of Natural Uranium TUD-7546, v. 1, p. 29-35, 1958.
8. ORTEL, Y & OLLIER, H. - Fusion sous Vide de l'Uranium. Advances in Vacuum Science and Technology, Proceedings of the First International Congress on Vacuum Techniques, v. II, Advances in vacuum science and technology, p. 513-552, Pergamon Press, 1960.

DISCUSSÃO

ETTORE BRESCIANI FILHO (1) - O Eng.º Cintra fez referência a lingotamento em lingoteiras de grafita e de cobre. Perguntaria que o levou à utilização do cobre e quais os resultados?

SEBASTIÃO HERMANO LEITE CINTRA (2) - A utilização da lingoteira de cobre teve como primeiro objetivo a necessidade de fornecimento de material em lingotes de menor diâmetro para a produção de ligas alumínio-urânio. Na ocasião, a lingoteira disponível de menor diâmetro era em cobre. Lingotes com maiores diâmetros apresentam alta perda de urânio, por ocasião do corte do metal em pedaços convenientes para o processo de obtenção da liga. Em segundo lugar, as referências bibliográficas sustentam que a lingoteira de cobre permite melhor acabamento superficial do lingote.

E. BRESCIANI FILHO - O efeito erosivo não foi pronunciado?

S. H. LEITE CINTRA - Foi realizada uma única experiência e não se pode tirar uma conclusão categórica. Mas a utilização foi satisfatória, aparentemente não ocorrendo erosão.

E. BRESCIANI FILHO - Se fosse pronunciado, eu iria sugerir uma liga que está sendo utilizada para moldes de fabricação de vidro, que tem alta resistência à fadiga térmica e, além disso, boa resistência à erosão. A liga é o "Ineramet 800", que tem alumínio e níquel em pequenos teores. Tem dado ótimos resultados, tendo já sido feitas experiências no CEBRACO, que possui bibliografia a disposição.

OSWALDO STENIO CARDOSO DE SOUZA (3) - Observamos uma variação da porcentagem de massa retida entre 15 a 20%. Perguntaria, também, em que forno o autor considerou a fusão desses botões?

S. H. LEITE CINTRA - O forno usado foi elétrico de resistência, sob vácuo.

O. S. CARDOSO DE SOUZA - A literatura faz referência à utilização de fornos de eletrodo consumível?

S. H. LEITE CINTRA - Sim, podendo neste caso ser utilizada fusão sob atmosfera inerte.

O. S. CARDOSO DE SOUZA - Outro ponto que gostaria de esclarecer é se a carga utilizada foi previamente purificada? ou estava contaminada por magnésio, escória e outras impurezas?

S. H. LEITE CINTRA - Como tivemos oportunidade de descrever, inicialmente foi realizada limpeza com escova de aço e posteriormente decapagem em solução de ácido nítrico e água quente.

O. S. CARDOSO DE SOUZA - O autor faz referência a utilização de tampa do cadinho nas últimas experiências, com o objetivo de evitar a contaminação do forno por causa do magnésio volatilizado durante o processo. Gostaria de saber por quê?

S. H. LEITE CINTRA - Na limpeza procuramos retirar o MgF₂ e o magnésio não reagido aderidos à superfície do botão. O material que está colado é impossível de ser retirado. Esse é volatilizado provocando uma efervescência do banho, que dá motivo a utilização da tampa a fim de se evitar a projeção de metal líquido.

ROLF HERBERT ETT (4) - O autor fez referência a diversos tipos de revestimentos para evitar a formação de carbonetos ou inclusões de carbono. Gostaria de saber de que maneira são aplicados esses revestimentos.

S. H. LEITE CINTRA - Um trabalho de pesquisa realizado por Magotiaux e colaboradores determinou quatro processos de revestimento. O primeiro era a aplicação do revestimento por solução aquosa do óxido refratário. O segundo, era a dispersão em estado de semi-fusão desse óxido refratário. Na terceira técnica, esse óxido refratário em solução aquosa, é aplicado sob as paredes do cadinho, que é, a seguir, aquecido em forno à vácuo, a temperatura da ordem de 1.500°C, fazendo com que o revestimento fique ligado à parede do cadinho por reações entre o óxido e a grafita. E o quarto processo, que foi o que ocorreu nas presentes experiências, é a obtenção de uma camada protectora, fluindo-se dentro do cadinho um metal que, reagindo com a grafita, forme uma camada de carboneto de motal. Nestes casos emprega-se zircônio ou tântalo, com sucesso. No caso presente temos a formação de carboneto de urânio.

R. HERBERT ETT - Nessa segunda modalidade só poderia ser feita coisa parecida por meio de aspersão à chama?

S. H. LEITE CINTRA - Exato.

R. HERBERT ETT - Nas temos revestido diversos cadinhos de grafita com óxido de alumínio. Isto seria interessante?

S. H. LEITE CINTRA - Não há dúvida que seria interessante, e este será o encaminhamento das experiências. Até agora fizemos em cadinho sem revestimento face a necessidade do desenvolvimento dos demais trabalhos da Divisão. Agora vamos nos preocupar, fundamentalmente, com o revestimento de cadinhos.

- (1) Membro da ABM e Orientador da Sessão Engenharia Consultor do CEBRACO, da Escola Politécnica da Universidade de São Paulo e da Faculdade de Engenharia Industrial, São Paulo, SP.
- (2) Membro da ABM e consultor da CT, Engenharia Metalúrgica e Nuclear; Divisão de Metalurgia Nuclear do IEA; São Paulo, SP.
- (3) Membro da ABM; Capitão-aviador e Engenheiro Industrial Metalúrgico; Instituto de Pesquisas e Desenvolvimento da CTA, São José dos Campos, SP.

(4) Gerente Técnico de Casaduro Industrial e Mercantil Ltda.; São Paulo, SP.

THARCISIO DAMY DE SOUZA SANTOS (-) - Conforme vimos, são duas áreas de um mesmo campo, o campo de urânio metálico e ligas à base de urânio, que nos interessam. Portanto, nos trabalhos que a Divisão de Metalurgia Nuclear desenvolve presentemente no Instituto de Energia Atômica, fizemos os planos que são os da Comissão Nacional de Energia Atômica relacionados com os reatores de potência. Em reatores de potência, um dos tipos que tem grande probabilidade de vir a ser utilizado é o de urânio natural resfriado por gás. Para esse desenvolvimento importa toda a abertura da tecnologia, não só de produção de urânio

metálico, como de seu processo ulterior. Os senhores verificaram, pelos dois trabalhos apresentados, a forma sistemática pela qual a Divisão estuda as características próprias dos diversos tipos de UF_6 que irão nos interessar em diversos aperfeiçoamentos introduzidos, bem como problemas relacionados à técnica de fusão e lingotagem sob vácuo, nesse trabalho em escala de laboratório e também em breve no forno a vácuo grande que acaba de ser montado e foi mostrado pelo Eng.^o Clauer Trench de Freitas. Nestas condições, trata-se de uma frente inteira de pesquisa tecnológica de energia aplicada nesse campo, que está sendo desenvolvida por essa equipe. Como chefe dessa Divisão, desejo enaltecer a qualidade do trabalho que foi desenvolvido pelo Eng.^o Clauer Trench de Freitas com a colaboração do Comandante Heilton Mota Haydt e de seus três colaboradores Engenheiros Sebastião Hernando Leite Cintra, que expos esse trabalho, Elyberto Francisco Gentile, que não pôde estar presente e José Deodoro Trani Capocchi.

(5) -
Conselheiro da ABM e na Presidência da Sessão. Engenheiro Civil e Metalurgista; Professor Catedrático e Doutor da Escola Politécnica da Universidade de São Paulo; Chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear do IEA; São Paulo, SP.