



TRATAMENTO PIRO-METALÚRGICO DE ELEMENTOS  
COMBUSTÍVEIS PLANOS  $U_3O_8$  - ALUMÍNIO

*THARCÍSIO D. DE SOUZA SANTOS*

PUBLICAÇÃO IEA N.º **193**

Novembro — 1969

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

TRATAMENTO PIRO-METALÚRGICO DE ELEMENTOS

COMBUSTÍVEIS PLANOS  $U_3O_8$  - ALUMÍNIO\*

Tharcísio D. de Souza Santos

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

Publicação IEA Nº 193

Novembro - 1969

---

\* Separata de "METALURGIA - REVISTA DA ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE METAIS", vol. 25, nº 142, setembro, p.681-685, 1969.

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. Dr. 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 Penteadado Filho

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

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

# TRATAMENTO PIRO-METALÚRGICO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS PLANOS $U_3O_8$ — ALUMÍNIO <sup>(1)</sup>

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

## RESUMO

*Descreve o autor o tratamento piro-metalúrgico direto de elementos combustíveis constituídos por placas com núcleo de "cermet"  $U_3O_8$ -Al revestidas por alumínio, visando o aproveitamento do urânio contido, na forma de liga alumínio-urânio. O tratamento consistiu essencialmente em se promover a fusão redutora das placas, cortadas em pedaços, em cadinho aberto de grafita, por alumínio líquido e recoberto por banho de criolita fundida. O cadinho é aquecido por corrente de alta frequência, de 1 MHz, fornecida por unidade 25 kW de potência máxima.*

*Uma vez concluída cada uma das operações, foi feito o vasamento do conteúdo do cadinho, em lingoteira de forma prismática, separando-se após a solidificação a massa de liga obtida da escória residual envolvente.*

*Os resultados obtidos mostraram que as placas elementos combustíveis podem ser tratadas diretamente, fornecendo ligas alumínio urânio com 23,9% a 30,2% U, variando a recuperação do urânio entre 93 e 98%.*

## 1. INTRODUÇÃO

O tratamento de elementos combustíveis de reatores nucleares é feito geralmente por processos químicos, por via aquosa, e visam separar os produtos de fissão dos materiais residuais contidos. Mais recentemente têm sido realizados extensos programas de pesquisas metalúrgicas, objetivando o tratamento piro-metalúrgico de elementos combustíveis <sup>(1, 2, 3)</sup>. Em alguns casos, já existem instalações <sup>(4, 5, 6)</sup> onde esse tratamento piro-metalúrgico é feito de forma bastante completa, permitindo fazer voltar à carga do reator novos elementos combustíveis fabricados em parte com os elementos recuperados por processos piro-metalúrgicos. Muito embora os problemas metalúrgicos defrontados nesse tipo de tratamento ofereçam grande complexidade, apresentam eles o atrativo de serem processos muito compactos, evitando os difíceis problemas de tratamento e de armazenamento de grandes volumes de soluções radioativas diluídas <sup>(7)</sup>.

Nesta contribuição, descreve o autor os trabalhos realizados nos laboratórios da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica, de caráter preliminar, e que objetivaram o tratamento de elementos combustíveis produzidos para estudos de fabricação dos elementos para reator "Argonauta", visando o aproveitamento do urânio contido nos mesmos, na forma de  $U_3O_8$  em dispersão com alumínio.

Em outra contribuição técnica <sup>(8)</sup>, descreveu o autor os resultados dos estudos experimentais relativos à redução  $U_3O_8$  em pó por alumínio líquido, sob carga fundida de criolita, ou de criolita com adição de determinados sais halogenados. Os resultados experimentais obtidos mostraram que, em determinadas condições de operação, podiam ser obtidas ligas alumínio-urânio com elevados teores de urânio, até 57,7% U, e que a recuperação do urânio nessas ligas podia atingir 97%. Esses resultados levaram o autor a realizar o programa de estudos experimentais descritos nesta contribuição técnica, visando o tratamento piro-metalúrgico direto de elementos combustíveis em placas.

Os elementos combustíveis utilizados no presente estudo eram elementos com urânio natural, na forma de  $U_3O_8$  em dispersão com alumínio, e revestidos com alumínio. Não haviam sido submetidos à irradiação, e assim não apresentavam produtos de fissão nem atividade de radiação. Podiam em consequência ser manipulados com facilidade, tomadas apenas as precauções usuais em trabalho com urânio pulverulento.

Um dos aspectos práticos da presente investigação reside no objetivo de tratamento de resíduos de fabricação de elementos combustíveis e de elementos defeituosos, todos com urânio natural. Felizmente não foi perdido nem um "cermet" nem uma única placa com urânio enriquecido, no decurso dos trabalhos de fabricação dos elementos combustíveis com urânio enriquecido, a 19,91% U-235, para o reator "Argonauta" do Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro. Se isso houvesse ocorrido, o tratamento posterior teria de ser executado nos Estados Unidos, de acordo com as condições que regem a cessão de urânio enriquecido pela "Atomic Energy Commission" dos Estados Unidos.

(1) Contribuição Técnica n.º 823. Apresentada ao XXIV Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais; São Paulo, SP; julho de 1969.

(2) Membro da ABM. Chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica; Professor Catedrático e Chefe do Departamento de Engenharia Metalúrgica, Escola Politécnica da Universidade de São Paulo, SP.

## 2. DESCRIÇÃO DO FORNO UTILIZADO

As operações de tratamento direto dos elementos combustíveis com a forma de placas foram realizadas em cadinho de grafita aquecido por unidade de alta frequência, promovendo-se a redução do  $U_3O_8$  contido no "cermet" por alumínio, sob proteção de banho líquido de criolita.

O cadinho utilizado era usinado a partir do eletrodo de grafita, e suas dimensões eram: 102 mm de diâmetro externo, 74 mm de diâmetro interno, 134 mm de altura total e 124 mm de profundidade. Era inserido em bobina constituída por seis espiras, de 117 mm de diâmetro e 105 mm de altura total, constituída por dois segmentos de três espiras cada, de tubo de cobre de 9,5 mm de diâmetro, refrigerado por água. O cadinho era colocado sobre tijolos refratários sílico-aluminosos, e, com o objetivo de diminuir as perdas por irradiação térmica do cadinho, eram colocados ao lado tijolos isolantes de baixa densidade, os quais foram ajustados de forma a acompanhar a superfície limite exterior da bobina.

A figura 1 mostra a unidade de alta-freqüência, de fabricação "Hochfrequenzwarme Schmidt", de 1 MHz e 25 kW, vendo-se o cadinho inserido no interior da bobina, e tendo sido antes retirados os tijolos de proteção. Concluída uma

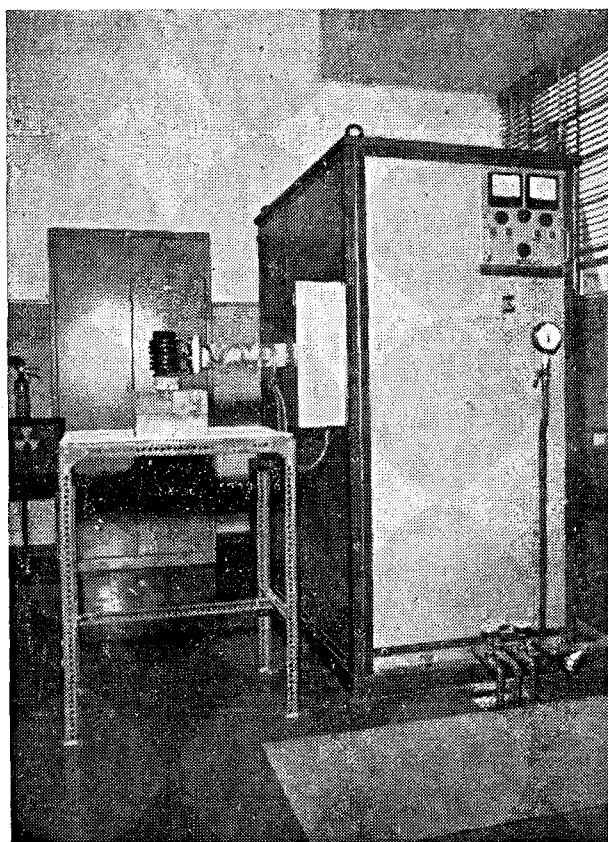


Fig. 1 — Vista do forno utilizado para as experiências.

operação, o cadinho era retirado com auxílio de uma tenaz apropriada, e seu conteúdo era vasado diretamente em uma lingoteira prismática, e que fôra antes devidamente pré-aquecida. Depois de solidificado o conteúdo, era a lingoteira aberta, pesada a escória de criolita, juntamente com a liga ainda encerrada no envólucro solidificado; feita depois a separação da criolita e de suas cascas aderentes da superfície da liga, eram pesados separadamente êsses produtos. Para as análises químicas, depois de destacadas as cascas aderentes de criolita, eram retirados cavacos dos blocos metálicos, com auxílio de brocas de cêrca de 4 mm de diâmetro, e de modo a atravessar todo o material.

Outros detalhes da unidade empregada e do arranjo experimental constam do outro trabalho apresentado, sôbre a redução de  $U_3O_8$  em pó por alumínio líquido<sup>(8)</sup>.

O conteúdo líquido do cadinho era facilmente acessível pela sua abertura superior, podendo não só ser feita com comodidade a introdução da carga a ser reduzida, como também promovida agitação periódica, por intermédio de haste de grafita, de 22 mm de diâmetro, presa em suporte apropriado. A introdução dessa haste podia ser feita com o forno ligado; permitia agitar o banho constituído pelos dois líquidos em equilíbrio e assim intensificar o contacto com alumínio líquido, ou com a liga alumínio-urânio subjacente ao banho de criolita fundida, dos fragmentos de "cermet", isto é, das misturas  $U_3O_8$ -alumínio em pó, introduzidas na forma de pedaços cortados das placas. Em geral, a haste retirada ao ar não mostrava materiais aderentes, indicando haver sido realizada a reação de redução da mistura pelo alumínio.

## 3. OPERAÇÕES REALIZADAS E RESULTADOS OBTIDOS

As placas utilizadas, como se disse, resultantes dos estudos experimentais realizados para servir de base para a posterior fabricação dos elementos combustíveis com urânio enriquecido para o reator "Argonauta", tinham dimensões de cêrca de 73 mm × 610 mm × 2,42 mm, e encerravam "cermet" com 51,0%  $U_3O_8$  — 49% Al, ou 54,36%  $U_3O_8$  — 45,64% Al, que constituía o núcleo, cujas dimensões eram cêrca de 68 mm × 590 mm × 1,86 mm.

Convém salientar que, diferentemente da forma do  $U_3O_8$  utilizado nas experiências de redução por alumínio líquido no trabalho já referido<sup>(8)</sup>, que era pó sôlto, nos elementos combustíveis empregados o  $U_3O_8$  achava-se em íntima mistura com o pó de alumínio. Além de homogêneo, êsse núcleo é adensado, correspondendo não sômente ao adensamento original do "cermet" inicial como ao aumento de densidade complementar, resultante

da laminação a quente dos conjuntos de moldura. Nessas condições, existiam condições muito mais favoráveis para a redução do  $U_3O_8$ , tanto pelo alumínio líquido carregado no cadinho sob a camada de criolita, como principalmente pelo próprio pó de alumínio componente do núcleo.

A tabela I reúne os principais caracteres de algumas das placas de elementos combustíveis que foram submetidas ao tratamento pirometalúrgico.

ração da escória de cada uma dessas partes foram posteriormente juntados e refundidos, com auxílio de parte da escória de criolita obtida nessas mesmas experiências. Obteve-se assim um único corpo metálico, correspondente a uma placa inteira, como forma prismática e com massa entre 280 e 360 g, o qual representa assim a liga alumínio-urânio resultante dessa placa.

A tabela II reúne todos os dados referentes ao tratamento das cinco placas cujos caracteris-

TABELA I — Principais características dos elementos combustíveis em placa utilizados nas operações de fusão redutora

elemento n.º	«cermet» n.º	$U_3O_8$ no «cermet» %	$U_3O_8$ contido g	Al no núcleo g	Al de revestimento g	Al total g
1	88	54,36	124,6	105,1	112,5	217,6
2	120	54,36	124,6	105,0	101,7	200,7
3	127	54,36	124,6	105,1	100,3	205,4
4	49	51,00	118,5	113,5	101,3	214,8
5	102	54,36	124,8	104,9	100,7	205,6

As placas foram cortadas com auxílio de trancha, em pedaços que abrangiam toda a largura das placas, e com cerca de 8 a 15 mm de altura. Eram esses fragmentos introduzidos no banho de criolita com auxílio de uma pinça; fundiam rapidamente em seu revestimento exterior e reagiam visivelmente no banho de criolita. De tempos em tempos era promovida agitação do conjunto, com auxílio da haste de grafita, como se disse.

Para evitar encher demasiadamente o cadinho com o conteúdo do tratamento de uma placa inteira, preferiu-se dividir cada placa em duas partes aproximadamente iguais, entretanto essas partes separadamente, em duas operações sucessivas. Os corpos metálicos obtidos após a sepa-

rações foram antes indicados na tabela I, através das dez operações de fusão redutora, realizadas na forma descrita.

Essas operações requeriam habitualmente cerca de 15 minutos, a potência ligada sendo de 10 kW. Antes de ser retirado o cadinho, nos instantes finais, era feita pela segunda vez agitação com haste de grafita, a primeira vez sendo feita logo depois de ter sido carregada a metade da carga.

Na tabela III foram reunidos todos os principais dados e os resultados obtidos nas operações finais de fusão das cargas de liga alumínio-urânio obtidas pelo tratamento das metades das placas, como foi descrito. O cálculo da recuperação foi feito com base na massa de U contido na

TABELA II — Tratamento de metades de placas elementos combustíveis Cadinho de 102 mm diâmetro; cargas de 150 g criolita

operação n.º	elemento n.º	massa de elemento carregada g	Al carregado g	liga Al-U obtida g
1	1	171,0	87,0	181,0
2	1	171,2	81,5	185,0
3	2	167,0	82,0	177,0
4	2	164,3	79,0	174,0
5	3	171,5	83,0	157,7
6	3	158,5	83,5	140,0
7	4	171,0	56,0	144,7
8	4	162,3	42,5	151,5
9	5	165,4	45,0	142,0
10	5	165,0	41,0	147,8

TABELA III. — Fusão e lingotagem das ligas Al-U obtidas pelo tratamento de placas combustíveis

operação n.º	elemento n.º	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> contido g	Al total contido g	massa de liga g	U na liga %	recuperação U %
11	1	124,6	217,6	361,0	23,9	97
12	2	124,6	200,6	350,0	25,1	98
13	3	124,6	205,4	295,0	29,1	96
14	4	118,5	214,8	292,5	26,9	93
15	5	124,8	205,6	287,5	30,2	97

placa do elemento combustível tratada (tabela I) e correspondente à massa total contida na liga obtida em cada uma das duas operações descritas. A massa de liga que figura na tabela III é um pouco menor do que a soma das massas das partes que lhe correspondem, indicadas na tabela III, em virtude de pequena perda havida na fusão (cêrca de 2%).

Os resultados obtidos mostraram que o tratamento direto efetuado das placas de elementos combustíveis pelo processo desenvolvido, assegura elevados rendimentos. De fato, os resultados da tabela II mostram coerência bastante grande das massas obtidas, quando a proporção de alumínio introduzido variou entre os limites de 51 a 25% da massa dos pedaços de placa carregados, a proporção de criolita tendo sido sempre de cêrca de 87% do pêso dos fragmentos. É provável que se possa diminuir a proporção de criolita, ou mesmo recircular a criolita utilizada em operações precedentes.

Os teores de urânio nas ligas alumínio-urânio corresponderam aos que foram previstos, e variaram de 23,9 a 30,2%. Maiores teores poderão ser conseguidos, complementando-se o teor por adição de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> correspondente à elevação desejada, conforme foi mostrado em outro trabalho (3).

Finalmente, a recuperação obtida foi elevada, variando de 93% na operação n.º 14 a 98% na de n.º 12, a média obtida no tratamento de cinco placas e compreendendo um total de cêrca de 1600 g de material, tendo sido de 95%.

O consumo de energia foi bastante limitado, de cêrca de 60 kWh/kg de placa tratada. O consumo de cadinho poderá ser grandemente diminuído se vier a ser inserido em tubo de vycor e com proteção de gás inerte.

#### 4. CONCLUSÕES

1. Foram descritos os principais detalhes do processo de tratamento direto piro-metalúrgico de elementos combustíveis em placas, constituídos de "cermet" U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> (natural)-alumínio e revestidos por alumínio, para a produção de ligas

alumínio-urânio. O processo utilizado consistiu essencialmente em reduzir o U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> contido pelo alumínio em pó do núcleo, e por alumínio líquido, ou por liga alumínio-urânio, sob proteção de banho líquido que inicialmente é constituído por criolita.

2. O trabalho foi precedido de extensa investigação experimental sôbre as condições de redução de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> por alumínio (3), em banho de criolita, ou de criolita com outros sais halogenados.

3. Descreveram-se os resultados obtidos no tratamento direto de cinco placas tipo "Argonauta", contendo núcleo de "cermet" de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> (natural)-alumínio em pó, com núcleos contendo 51,0 e 54,36% U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>.

4. Os resultados obtidos mostraram que podem ser produzidas diretamente ligas, as quais apresentaram teores de 23,9% a 30,2% U, e as recuperações de urânio contido variaram entre os limites de 93 a 98%, com valor médio de 95%.

5. O consumo de energia, mesmo nas condições em que foram realizadas as experiências, em pequena unidade de laboratório, foi bastante reduzido, de cêrca de 60 kWh/kg de placa. Em unidade de maior capacidade é de se prever que os rendimentos possam ser um pouco aumentados e que diminua o consumo de energia.

#### AGRADECIMENTOS

O autor manifesta o agradecimento pelo auxílio que lhe foi prestado no desenvolvimento de tôdas as experiências realizadas pelo Sr. Arioswaldo Azevedo, assessor técnico da Divisão de Metalurgia Nuclear, e pelo Sr. Rubens Cima Pezzo, que executou as bobinas utilizadas na unidade de alta frequência. Agradece igualmente a colaboração recebida do Sr. José Ferreira, Chefe da Oficina Mecânica do Instituto de Energia Atômica na execução dos cadinhos, e ao Lic. Alcídio Abrão, Chefe da Divisão de Engenharia Química, pelas análises químicas, proficientemente executadas pela Sra. Ludmilla Federgrun.

## BIBLIOGRAFIA

1. KNIGHTON, J. B. & STEUNENBERG, R. K. — *Preparation of Metals by Magnesium-Zinc Reduction — Part I — Reduction of Uranium Oxides*. ANL — 7057, 1965.
2. HARIHARAN, V.; KNIGHTON, J. B. & STEUNENBERG, R. K. — *Preparation of Metals by Magnesium-Zinc Reduction — Part II — Reduction of Thorium Dioxide*. ANL — 7058, 1965.
3. STEUNENBERG, R. K.; PIERCE, R. D. & BURRIS, L. — *Pyrometallurgical and Pyrochemical Fuel Processing Methods*. ANL, 1968.
4. BURRIS, L.; FEDER, H. M.; LAWROSKI, S.; RODGER, W. A. & VOGEL, R. C. — *The Melt Refining of Irradiated Uranium: Application to EBR-II Fast Reactor Fuel — I — Introduction*. Nuclear Science and Engineering, v. 6, n.º 6, p. 493, 1959.
5. HAMPSON, D. C.; BENNETT, G. A. & CHELLEW, N. R. — Id. III — *Preparation of Experimental Alloys*, p. 501-503.
6. BERNSTEIN, G. J.; BENNETT, G. A.; CHELLEW, N. R. & TRICE Jr., V. G. — Id. II — *Experimental Furnaces*, p. 496-500.
7. WILKINSON, W. D. — *Uranium Metallurgy, vol. I Uranium Process Metallurgy* p. 546-620. Interscience, New York, 1962.
8. SOUZA SANTOS, T. D. — *Redução de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> em pó por alumínio líquido*. (Trabalho apresentado ao XXIV Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais, julho de 1969).
9. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. & FREITAS, C. T. — *Development Studies for Argonaut Fuel Plates Fabrication*. Transactions, Study Group Meeting on the Utilization of Research Reactors, São Paulo, 1963, v. 1, p. 279-297, AIEA, Viena, 1965.
10. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. & FREITAS, C. T. — *Fabricação de elementos combustíveis para o reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear*. METALURGIA, Rev. Ass. Bras. Met. v. 21, n.º 90, p. 369-376, 1965.
11. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. & FREITAS, C. T. — *Principais características metalúrgicas dos elementos combustíveis produzidos para o reator "Argonauta" do Instituto de Engenharia Nuclear*. METALURGIA — Rev. Ass. Bras. Met. v. 21, n.º 97, p. 909-921, 1965.

RESUMEN

El autor describe el tratamiento pirometalúrgico directo de elementos combustibles constituidos por placas de núcleos de ceramental U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Al revestidas por aluminio, visando el aprovechamiento del uranio contenido, en la forma de aleación aluminio-uranio. El tratamiento consistió esencialmente en promover la fusión reductora de las placas cortadas en pedazos, en crisoles abiertos de grafito, por aluminio líquido y recubierto por baño de criolita fundida. El crisol es calentado por corriente de alta frecuencia, de 1 MHz, suministrada por una unidad de 25 kW de potencia máxima.

Una vez concluida cada una de las operaciones, fue hecho el derrame del contenido del crisol en lingoteras de forma prismática, separándose después de la solidificación, la masa de aleación obtenida de la escoria residual envolvente.

Los resultados obtenidos, mostraron que las placas de elementos combustibles pueden ser tratados directamente, suministrando aleaciones aluminio-uranio con 23,9% a 30,2% U, variando la recuperación del uranio entre 93 y 98%.

RÉSUMÉ

L'auteur décrit le traitement pyro-métallurgique direct des éléments combustibles qui sont constitués de plaques revêtues par aluminium avec un noyau de "cermet" U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Al. Ce traitement envisage profiter le contenu en uranium, sous la forme d'un alliage Al-U. La méthode s'agissait essentiellement en provoquer la fusion réductrice par Al liquide des plaques, coupées en morceaux dans un creuset ouvert de graphite et le tout recouvert par un bain de criolite fondue.

Le creuset est chauffé par un courant de haute fréquence, de 1MHz, fournie par une unité de puissance maximale 25 kW.

Une fois à la fin de chaque une des opérations, on a fait le coulage du contenu du creuset, dans une lingotière de forme prismatique, en séparant après la solidification, la masse d'alliage obtenue de la scorie résiduelle enveloppante.

Les résultats obtenus ont montré que les plaques des éléments combustibles peuvent être traités directement, et fournir d'alliages aluminium-uranium contenant de ... 23,9 à 30,2 % en uranium, et la récupération del uranium est comprise entre 93 et 98%.