



REDUÇÃO DE U_3O_8 EM PÓ POR ALUMÍNIO LÍQUIDO

THARCÍSIO DAMY DE SOUZA SANTOS

PUBLICAÇÃO IEA N.º 226
Dezembro — 1970

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

REDUÇÃO DE U_3O_8 EM PÓ POR ALUMÍNIO LÍQUIDO*

Tharcísio Damy de Souza Santos

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

Publicação IEA Nº 226
Dezembro - 1970

* Separata de "METALURGIA - REVISTA DA ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE METAIS", vol. 26, nº 149, abril, p. 283-288, 1970.

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof.Dr. Hervásio Guimarães de Carvalho

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof.Dr. Miguel Reale

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. Theodoretto H.I. de Arruda Souto		

Divisões Didático-Científicas

Divisão de Física Nuclear -
Chefe: Prof.Dr. José Goldenberg

Divisão de Radioquímica -
Chefe: Prof.Dr. Fausto Walter de Lima

Divisão de Radiobiologia -
Chefe: Prof.Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni

Divisão de Metalurgia Nuclear -
Chefe: Prof.Dr. Tharcísio D.S. Santos

Divisão de Engenharia Química -
Chefe: Lic. Alcídio Abrão

Divisão de Engenharia Nuclear -
Chefe: Engº Pedro Bento de Camargo

Divisão de Operação e Manutenção de Reatores -
Chefe: Engº Azor Camargo Penteado Filho

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

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

Divisão de Física do Estado Sólido -
Chefe: Prof.Dr. Shigueo Watanabe

REDUÇÃO DE U_3O_8 EM PÓ POR ALUMÍNIO LÍQUIDO ⁽¹⁾

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS ⁽²⁾

RESUMO

Descreve o autor o estudo experimental realizado na Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica, de redução de U_3O_8 , na forma de pó solto, por alumínio líquido e por ligas líquidas alumínio-urânio, sob proteção de sistema fundido constituído inicialmente por criolita. O estudo visou a obtenção dos dados principais sobre a influência das principais variáveis de operação que afetam o teor de urânio na liga e sua recuperação. Foi realizado em conjunto montado pelo autor, e que consiste essencialmente em cadinho de grafita aquecido por alta frequência (um MHz), o cadinho sendo aberto à atmosfera e podendo ser facilmente retirado para vasamento de seu conteúdo. Os resultados obtidos no decurso de sete séries de experiências, compreendendo 36 operações, mostraram que, em operação com duração total da ordem de 15 minutos, podem ser obtidas ligas de alto teor, até 57,7% U, com recuperações entre 90 e 98%.

1. INTRODUÇÃO

Nesta contribuição, descreve o Autor os estudos experimentais realizados nos laboratórios da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Nuclear do Instituto de Energia Atômica, sobre a redução de U_3O_8 em pó por alumínio líquido.

O projeto de pesquisa desenvolvido visou a obtenção dos principais dados de operação, tendo em vista outro programa, de tratamento de elementos combustíveis para reatores de pesquisa, de tipo placa, e constituídos por núcleo de dispersão U_3O_8 em alumínio, revestido por liga de alumínio. Esse tópico faz parte de programa maior, para desenvolvimento futuro no Instituto de Energia Atômica, objetivando o estudo de reprocessamento pirometalúrgico de elementos combustíveis, inclusive de combustíveis irradiados, para assegurar a separação e recuperação dos produtos de fissão e a recuperação do urânio residual.

Além do interesse que representa o reprocessamento pirometalúrgico de elementos combustíveis, mesmo no caso de elementos de reatores de pesquisa, o trabalho desenvolvido permite ainda a recuperação direta de urânio, contido na forma de U_3O_8 , em resíduos e em materiais experimentais, resultantes dos estudos de desenvolvimento de fabricação dos elementos combustíveis para o reator Argonauta. Esses estudos de desenvolvimento foram realizados com U_3O_8 natural, pro-

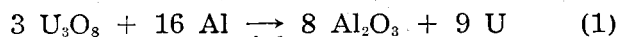
duzido na própria Divisão de Metalurgia Nuclear, e foram objeto de diversas publicações anteriores ^(1, 2, 3).

Para definir as condições de redução de U_3O_8 pulverulento e para estudar a influência de algumas das principais variáveis, foi organizado um extenso programa de estudos experimentais, os quais foram realizados de julho de 1968 a abril de 1969, com alguns períodos de interrupção mais longos. Em alguns casos, visando elevar o teor de urânio na liga obtida, foi feita redução complementar de UF_4 por alumínio líquido. Essa pode constituir uma das formas a serem utilizadas para aquele objetivo, principalmente quando for desejável teor de urânio maior do que o correspondente à da carga de U_3O_8 e alumínio, contidos na placa elemento combustível.

Outra contribuição técnica condensa os principais resultados obtidos no tratamento direto de placas elementos combustíveis contendo núcleo de dispersão U_3O_8 -Al.

2. PROCESSO ADOTADO

O processo adotado nos estudos experimentais adiante relatados, baseia-se essencialmente na reação:



Visto como a alumina produto da reação estaria no estado sólido à temperatura em que se realiza o processo, é necessário dissolvê-la em líquido que deve não reagir com os demais constituintes do sistema. O solvente que satisfaz a essas condições é a criolita, fluoreto duplo de alumínio e sódio, cujo ponto de fusão é de 1000°C. O emprêgo de criolita para esse objetivo é conhe-

(1) Contribuição Técnica n.º 865. Apresentada ao XXIV Congresso Anual da ABM; 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, São Paulo, SP.

cido⁽⁴⁾. A solubilidade da alumina na criolita foi estudada por numerosos autores, em trabalhos clássicos^(5, 6).

Nessas condições constituem-se dois líquidos em equilíbrio: inferiormente, solução metálica de urânio e alumínio, e, superiormente, solução de Al_2O_3 em criolita líquida (ou em sistema constituído por AlF_3 e NaF ou outros fluoretos, como se verá mais adiante). A solução metálica fica assim protegida pelo líquido criolítico superior, êste podendo ficar exposto ao ar.

Como se disse, em alguns casos pode ser desejável aumentar o teor de urânio na liga, à custa de UF_4 (ou de UF_6 , inclusive no caso de urânio enriquecido). Nêsses casos deve ser considerada a seguinte equação:



As reações (1) e (2) desenvolvem-se no sentido indicado, conforme pode ser previsto com base nos valores da energia livre.

No caso da reação (2), com a elevação do conteúdo de AlF_3 no sistema líquido superior, diminua a solubilidade da alumina, como sabido. Para aumentar a solubilidade, poder-se-á promover a recomposição da composição original do banho, o que pode ser feito por meio de adição de fluoreto de sódio.

O processo adotado permite realizar a reação de redução de forno aberto à atmosfera, uma vez que a reação de redução dar-se-á na interface metal-banho líquido superior, êste constituído essencialmente por criolita fundida. Nessas condições fica a liga metálica resultante, protegida da ação oxidante da atmosfera pelo banho fundido superior.

3. APARELHAMENTO EMPREGADO

O forno utilizado consiste essencialmente em um cadinho de grafita, obtido por usinagem de eletrodo de grafita Acheson, colocado no espaço interior da bobina percorrida por corrente de 1.000.000 ciclos/s (1 MHz) fornecida por um gerador de alta frequência, de 25 kW de potência máxima. O gerador utilizado é de fabricação de Hochfrequenzwarme Schmidt & Co, Alemanha, tipo DS 1025. A tensão no anodo das válvulas é de 12,5 kV e a corrente máxima de anodo é de 3,45A. No sentido de não forçar as válvulas, em todos os trabalhos realizados a potência máxima foi de 12 kW, para o que corresponde tensão no anodo de 6,8 kW para o cadinho de maiores dimensões.

A tabela I reúne os principais dados referentes às bobinas utilizadas e aos cadinhos correspondentes a essas bobinas.

TABELA I — Principais características das bobinas e cadinhos.

Característico	Conjunto menor	Conjunto maior
Número de espiras	6	6
Altura total das espiras, mm	96	105
Diâmetro interno do tubo das espiras, mm	9	9
Diâmetro interno das espiras, mm	90	117
Diâmetro externo cadinho, mm	77	102
Diâmetro interno cadinho, mm	54	74
Altura total cadinho, mm	130	134
Profundidade útil cadinho, mm	120	124

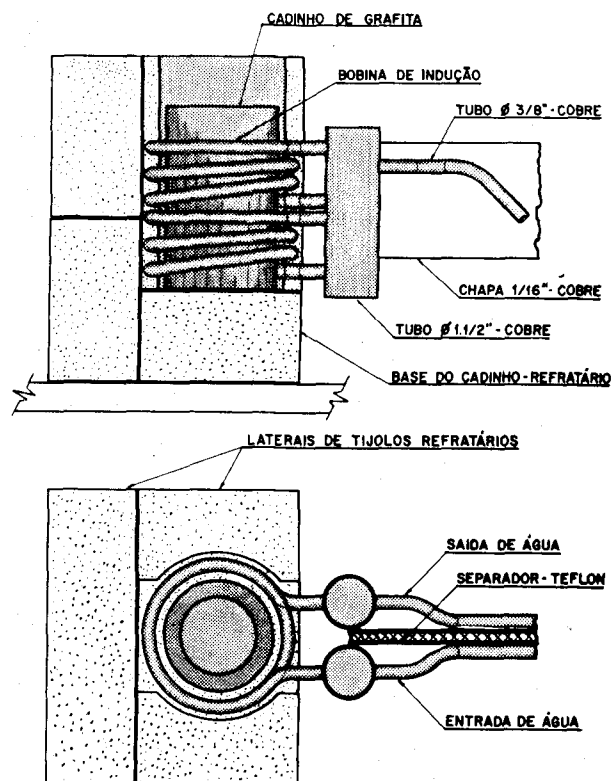


Fig. 1 — Esquema do equipamento empregado para as experiências.

A figura 1 mostra os principais detalhes referentes ao arranjo do cadinho dentro do espaço da bobina; ilustra, igualmente, a disposição adotada para proteção térmica parcial, e que consiste em peças refratárias usinadas, as quais eram justapostas à bobina na ocasião da operação. Para a retirada da carga, afastam-se essas peças refratárias e retira-se o cadinho com auxílio de uma pequena tenaz apropriada, sendo seu conteúdo vasado em seguida em lingoteiras metálicas, previamente préquecidas e que tiveram sua parede interna revestida por película protetora adequada, geralmente de suspensão de farinha de ossos calcinados, em água.

Com êsse arranjo é muito fácil o acesso ao cadinho durante o funcionamento, podendo ser feitas facilmente as adições pela sua abertura superior, mesmo sem desligar o forno.

4. DESCRIÇÃO DAS OPERAÇÕES DE REDUÇÃO

Os constituintes da carga eram cuidadosamente pesados e conservados em recipientes apropriados. O cadinho era previamente préaquecido, a cerca de 1000°C, colocando-o em vazio no espaço interior à bobina do forno. Uma vez concluído o préaquecimento, era feito o carregamento de criolita, ou criolita com agentes de adição indicados, por meio de uma calha. Ligado o forno geralmente a potência era limitada a 5 ou 6 kW até que se verificasse a fusão o que exigia de 6 a 10 minutos, dependendo da carga e do cadinho empregado (maior tempo para o cadinho de 102 mm de diâmetro externo). Uma vez fundida a carga de criolita, era geralmente feito de uma só vez o carregamento de alumínio, em dois ou três fragmentos. O alumínio ficava recoberto pela criolita, e logo fundia. Após a fusão do alumínio é que era feito o carregamento do U_3O_8 pulverulento, por meio de uma pequena calha metálica. A adição era feita progressivamente, tomando 3 e 6 minutos, e, geralmente, sem agitação intercalada. Podia ser observado que o pó de U_3O_8 desaparecia em seguida no banho de criolita, só permanecendo na superfície uns poucos segundos, ou quando, por qualquer motivo, a massa caída de pó era um pouco maior.

Terminadas as adições, feitas da forma indicada e sempre com auxílio da calha, era em seguida feita agitação, com auxílio de uma haste de grafita montada em cabo apropriado. Com essa haste podia-se perceber, em alguns casos, a existência de material pastoso na base do cadinho, ou próximo da base. A agitação moderada nesses casos em geral permitia fazer desaparecer essas zonas mais pastosas. Ao ser retirada a haste do banho, muitas vezes trazia a ela aderente metal que se oxidava ao ar, provavelmente liga Al-U de alto teor de U, ou ainda misturas incompletamente reduzidas de U_3O_8 com alumínio, sem completa separação da alumina e incorporação na escória.

Concluída a operação de redução, era o forno desligado e retirado o cadinho com auxílio de uma tenaz e vasado seu conteúdo em lingoteira metálica, a qual fora previamente préaquecida. Habitualmente, a escória de criolita era bastante fluida e a superfície superior na lingoteira mantinha-se líquida durante alguns segundos antes de se solidificar; podia-se perceber no vasamento a passagem da liga Al-U, caracterizada por maior oxidação ao ar. As ligas de elevados teores de

urânio, até 57,7% são mais oxidáveis e a haste, quando retirada ao ar, emite fagulhas características da maior oxidação dessa liga rica.

Depois da abertura da lingoteira prismática, uma vez resfriada a escória, podia em geral ser perfeitamente separado o lingote metálico correspondente. Algumas vezes o coalescimento não era muito perfeito, e existia alguma escória aderida que era retirada por meio de leve percussão. Era o bloco metálico em seguida furado para a retirada dos cavacos para análise química. Tomou-se sempre a precaução de executar diversos furos de broca que atravessassem o lingote, de modo a evitar que a amostragem fôsse falseada pela posição do material retirado, o que é de se prever em face do grande intervalo de solidificação dessas ligas, que deve causar apreciável segregação de urânio.

5. DADOS DAS EXPERIÊNCIAS E RESULTADOS OBTIDOS

1.5 — *Primeira Série* — A primeira série de experiências foi realizada no cadinho de 77 mm de diâmetro externo e compreendeu inicialmente um conjunto de experiências para ajustar as condições de operação, e, ao mesmo tempo, fornecer a prática necessária para o desenvolvimento do programa.

A tabela II reúne os principais dados referentes a sete experiências realizadas, bem como os resultados obtidos. Todas essas operações mostraram valores bastante elevados para os teores de urânio na liga obtida e recuperações elevadas.

TABELA II — Dados e resultados da primeira série. Cadinho de 77 mm e cargas com 150 g criolita.

Operação	Al g	U_3O_8 g	Escória g	Liga Al-U g	U %	Recupe- ração U %
1	53,0	80,0		195,0	26,9	91 [Ⓞ]
2	52,0	60,0		65,7	48,5	73
3	53,0	60,0		75,5	39,9	70
4	52,8	52,8	160,0	69,5	49,6	90
5	56,4	56,4	161,6	80,0	35,6	87
6	80,0	80,0	164,7	115,3	47,6	83
7	42,3	52,3	174,8	72,2	43,8	84

Os valores das recuperações estão em algumas experiências afetados desfavoravelmente, seja por retenção de glóbulos metálicos no interior do cadinho, não chegando a ser vasado para dentro da lingoteira, seja pelo arrastamento do metal, principalmente se fôr elevado o teor de urânio, pela haste de grafita utilizada para agitação. A retirada da haste muitas vezes arrastava massas de liga, as quais se oxidavam ao ar, causando perdas e fazendo diminuir a massa de metal obtido,

falseando assim, para menor, o resultado da recuperação do urânio na liga.

2.5 — *Segunda Série* — No cadinho de 102 mm de diâmetro externo foram realizadas novas operações para verificar a influência de maior massa de criolita (200 g, em lugar de 150 g). Com essa maior massa procurou-se verificar o efeito de eventual insolubilidade residual da alumina, produto da reação. Os valores obtidos constam da tabela III.

TABELA III — Dados e resultados da segunda série. Cadinho de 102 mm e cargas com 200 g criolita.

Operação N.º	Al g	U_3O_8 g	Escória g	Liga Al-U g	U %	Recuperação U %
8	54,0	30,0	188,5	67,0	36,2	81
9	53,0	50,0	186,0	74,6	42,2	88
10	61,0	70,0	201,0	91,0	49,7	72

Os valores da recuperação foram elevados, salvo na última das experiências, onde o baixo valor obtido deve resultar de perda parcial de massa do metal, por arrastamento na haste ou por haver ficado retido no cadinho.

3.5 — *Terceira Série* — A terceira série foi realizada mais uma vez com cadinho menor, de 77 mm de diâmetro externo, e tomou-se sempre a precaução de vasar as cargas em temperaturas muito elevadas. Já se salientou que o cadinho menor, para as potências empregadas, de 10 kW no máximo, assegura temperaturas mais elevadas, o que podia ser verificado não só pela cor atingida, como também pela inexistência de glóbulos metálicos no interior do cadinho, imediatamente após o vasamento de seu conteúdo. A tabela IV reúne dados e resultados obtidos. Todos os valores da recuperação são bastante consistentes e elevados.

TABELA IV — Dados e resultados da terceira série. Cadinho de 77 mm e cargas com 150 g criolita.

Operação N.º	Al g	U_3O_8 g	Liga Al-U g	U g	Recuperação U %
11	76,0	76,0	111,0	42,7	86
12	77,8	77,8	110,0	42,5	83
13	80,0	80,0	164,0	30,6	87
14	159,0	70,0	183,0	24,6	89

4.5 — *Quarta Série* — Esta série de experiências, bem como as subsequentes, foram realizadas no cadinho de 102 mm de diâmetro externo, e com cargas maiores. Compreendeu 10 operações de redução, 8 com cargas de 150 g de crio-

lita e 2 com cargas de 200 g. Nessas operações, em 4 delas, utilizou-se exclusivamente UF_4 (reação 2.), duas com sal de origem canadense e duas com sal de origem alemã. Nas outras seis cargas, reduziram-se misturas de U_3O_8 e UF_4 , êste das duas origens apontadas (Tabela V).

TABELA V — Dados e resultados da quarta série. Cadinho de 102 mm, cargas de 150 g criolita e UF_4 .

Operação N.º	Al g	U_3O_8 g	UF_4 g	Escória g	Liga Al-U g	U %	Recuperação U %
15	80,0	—	80,0a	159,7	108,2	39,3	62
16	80,0	—	80,0c	166,1	104,3	42,5	64
17	80,0	40,0	40,0a	155,5	99,1	35,2	55
18	78,4	39,2	39,2c	175,6	93,0	36,7	55
19	75,2	52,6	52,6c	175,0	95,0	36,1	45
20	78,5	55,0	22,5a	151,2	94,5	35,8	57
21	75,0	22,5	52,5c	165,0	107,1	45,9	80
22	80,0	56,0	56,0c	131,5	109,3	41,0	52
23	106,4	—	106,4c	224,8	138,5	40,5	62
24	106,6	—	106,6a	203,1	119,2	34,5	45

De uma maneira geral, os rendimentos foram sempre baixos, provavelmente motivados por temperatura ou por tempo insuficiente. Igualmente, foi constatado sempre que a haste de grafita arrastava sempre parte da carga em reação, situada na base do cadinho ou na base no líquido superior. Esse arrastamento provoca naturalmente perdas, influenciando assim desfavoravelmente o rendimento obtido. O aumento da proporção de criolita não melhorou os resultados, quer quanto ao teor de urânio na liga, quer quanto à recuperação do urânio.

5.5 — *Quinta Série* — Esta série visou determinar a influência de teores crescentes de NaCl adicionado à criolita (e de LiF em uma das operações), sobre o teor de urânio na liga e sobre o rendimento de extração de urânio na liga Al-U. Mostram os resultados da tabela VI que teores de NaCl de 5, 10, 15 e 20% na criolita não causaram alterações coerentes, nem ao teor de urânio, nem ao valor da recuperação, sendo de se notar a faixa relativamente ampla de flutuação dos resultados.

TABELA VI — Dados e resultados da quinta série. Influências de NaCl e LiF. Cadinho de 102 mm e cargas de 150 g criolita.

Operação N.º	NaCl g	Al g	U_3O_8 g	Liga Al-U g	U g	Recuperação U %
25		72,4	72,4	89,3	33,1	57
26	7,5	78,6	78,6	114,8	38,3	77
27	15,0	77,6	77,6	93,8	28,4	47
28	22,5	75,4	75,4	94,2	29,6	51
29	30,0	76,6	76,6	113,4	41,5	76
30	15,0*	78,6	78,6	77,4	57,7	79

Nota: * LiF em lugar de NaCl

Já adição de LiF, na proporção de 15% em relação à criolita, permitiu obtenção de escória bastante fluida; a liga obtida passou a 44,7% U e a recuperação de urânio na liga atingiu 79%.

6.5 — *Sexta Série* — O resultado animador obtido com a adição de LiF à criolita indicou a conveniência de ser estudada a influência dessa adição sobre a redução. Para isso, foram realizadas três operações sucessivas de redução, com cargas que continham 200 g de criolita e que receberam adições para 5, 10 e 20% de LiF.

Os resultados obtidos (Tabela VII), foram muito animadores, pois teores de 48,1 e 44,0% U na liga foram obtidos com recuperações de 90 e de 92%, respectivamente, para adições de 5 e 10% LiF. Para 20% LiF o teor é algo mais baixo (41,3% U), e a recuperação caiu para apenas 64%. Pode entretanto esse resultado ser devido a separação imperfeita do metal obtido.

TABELA VII — Dados e resultados da sexta série. Influência de LiF. Cadinho de 102 mm e cargas de 200 g criolita.

Operação N.º	LiF g	Al g	U ₃ O ₈ g	Escória g	Liga Al-U g	U %	Recuperação U %
31	10	74,0	74,0	234,4	100,6	48,1	90
32	20	80,0	80,0	232,8	120,6	44,0	92
33	40	80,0	80,0	262,5	91,8	41,3	64

7.5 — *Sétima Série* — Havia sido constatado anteriormente pelo autor que a criolita fundida adquiria intensa coloração escura, quase preta, quando recebia a adição de U₃O₈ acima de 10%. Não dispõe o autor de elementos para esclarecer se o U₃O₈ está dissolvido na criolita nessas condições, e nesse caso não se sabendo até que proporção para cada temperatura dada, ou se trata de dispersão mecânica de pó de U₃O₈ no líquido solidificado de criolita, ou de criolita tendo Al₂O₃ em solução. Essa questão constituirá objeto de estudos posteriores do autor, que pretende assim estudar parte do sistema 3NaF·AlF₃-U₃O₈.

Procurou-se, por isso, nessa sétima série de experiências, constituir escórias homogêneas, formadas por criolita com teores crescentes de U₃O₈ adicionado. As cargas líquidas foram a seguir vazadas em lingoteira, de forma a assegurar resfriamento rápido. O exame da fratura mostrava corpo sólido relativamente homogêneo, e de cor escura para preta, dependendo do teor de U₃O₈ adicionado.

Posteriormente, foram essas escórias fundidas, e sobre elas, feito o carregamento de alumínio. Em seguida foram os dois líquidos em contacto agitados com auxílio da haste de grafita, e depois vasado o conteúdo do cadinho na lingoteira. Separada a escória, verificou-se haver adquirido a coloração clara de criolita. Os lingotes metálicos foram facilmente separados dessa escória.

Os resultados obtidos foram reunidos na tabela VIII, a qual contém também os dados principais referentes às cargas utilizadas.

Conforme se depreende desses resultados, os rendimentos obtidos foram muito elevados, e os teores de urânio nas ligas correspondem aos conteúdos de U₃O₈ nas escórias utilizadas.

6. CONCLUSÕES

1. O arranjo experimental adotado pelo Autor, e descrito nesta contribuição, permitiu a realização de extensa série de experiências de redução de cargas de U₃O₈ pulverulento por alumínio líquido, o carregamento do U₃O₈ sendo feito sobre líquido superior, constituído por criolita.

2. Nas condições precedentemente descritas, a redução assegura em geral elevados valores da recuperação e teores de urânio na liga obtida, os quais dependem da massa de U₃O₈ carregada em face da massa de redutor, alumínio ou liga alumínio-urânio.

3. Em diversas das experiências realizadas, principalmente com o cadinho de 107 mm de diâmetro externo, e quando a duração total da

TABELA VIII — Dados e resultados da sétima série. Redução de criolita com U₃O₈. Cadinho de 102 mm e cargas produzidas com 150 g criolita.

Operação	U ₃ O ₈ na criolita fundida %	Criolita com U ₃ O ₈ g	Al g	Escória g	Liga Al-U g	U %	Recuperação %
34	20,0	84,5	84,5	65,0	89,3	6,2	61
35	25,0	190,3	190,3	134,3	194,7	17,2	97
36	33,7	215,9	215,9	137,5	211,0	25,1	98

operação ficou adstrita a cerca de 14 minutos, as recuperações foram anormalmente baixas. Essa anomalia foi atribuída a insuficiência de temperatura, ou de tempo, as perdas sendo devidas a material retido no cadinho na forma de crostas pastosas, ou em material aderido à haste utilizada para a agitação da carga. A repetição dessas experiências em condições melhor definidas esclarecerá provavelmente a causa desse comportamento anômalo.

4. A adição de UF_4 à carga para redução, nas condições experimentais descritas, em geral não forneceu rendimentos elevados. Isso foi atribuído à variação da composição do banho superior, resultante da elevação do conteúdo de AlF_3 , diminuindo assim a solubilidade da alumina nesses banhos hipercriolíticos. Foram empregadas amostras de UF_4 de duas procedências distintas, uma de maior densidade aparente solta, e outra de menor; não foram, contudo, encontradas diferenças quanto à redutibilidade dessas amostras.

5. As cargas de criolita que receberam adições de U_3O_8 mostraram aspecto homogêneo na fratura, até teores de 20% U_3O_8 . Não dispõe entretanto o autor de elementos para esclarecer se se trata de solução de U_3O_8 na criolita ou de simples suspensão sólida.

6. As escórias de cor preta que continham 20, 25 e 33,7% U_3O_8 , foram submetidas à redução com alumínio líquido, tendo sido obtidas as ligas com teores correspondentes às adições feitas, e sendo bastante elevados os valores da recuperação correspondentes.

7. Nas melhores condições de operação descritas neste trabalho, foram reduzidas cargas de U_3O_8 pulverulento por alumínio líquido, protegido por meio de sistema líquido constituído essencialmente por criolita, ou criolita com 10% LiF. Os rendimentos podem atingir 92% e os teores de urânio nas ligas podem passar de 45% U. O processo de redução é rápido, econômico e direto, e dispensa quaisquer outras etapas ou tratamentos anteriores.

AGRADECIMENTOS

O autor deseja exprimir seu agradecimento pela colaboração constante que lhe foi dispensada pelo Sr. Arioswaldo Azevedo, assessor técnico da Divisão de Metalurgia Nuclear e que há mais de vinte e cinco anos vem exercendo profícua atividade em pesquisa metalúrgica com o autor. Agradece igualmente ao Sr. Rubens Cima Pezzo, da Divisão de Metalurgia Nuclear, pela execução dos conjuntos de bobinas para a unidade de alta-freqüência, e pela colaboração prestada no desenvolvimento do trabalho, principalmente na manutenção da parte elétrica da unidade de alta-freqüência. O programa de pesquisas exigiu a realização de extenso número de análises químicas das amostras extraídas, as quais foram proficientemente realizadas pela Sra. D. Ludmilla Federgrun da Divisão de Engenharia Química, chefiada pelo Lic. Alcídio Abrão. Pela valiosa colaboração recebida, deseja igualmente o autor manifestar seu agradecimento.

BIBLIOGRAFIA

1. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. & FREITAS, C. T. — "Developments in Fuel Fabrication for Research Reactors in Brazil". Proceedings, Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, v. 10, p. 26-29, Organização das Nações Unidas, New York, 1965.
2. 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. 309-376, 1965.
3. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. & FREITAS, C. T. — "Principais característicos metalúrgicos 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.
4. WILKINSON, W. D. — *Uranium Metallurgy*, v. 1, p. 167 Interscience, New York, 1962.
5. FEDOTIEFF, H. & ILJINSKY, Z. — *Zeit. Anorganische Chemie*, v. 129, p. 93, 1923, in EDWARDS, J. D., FRARY, F. C. e JEFFIRES, Z. *The Aluminum Industry*, v. 1. p. 289, McGraw Hill, New York, 1930.
6. VAN LANCKER, M. — *Metallurgy of Aluminium Alloys*, p. 24, Chapman and Hall Ltd, Londres, 1967.

ABSTRACT

The authors describes the experimental studies, carried out at the Divisão de Metalurgia Nuclear of the Instituto de Energia Atômica, concerning the reduction of U_3O_8 , as a loose powder, with molten aluminum or aluminum-uranium alloy, under the protection of a bath of cryolite.

The influence of the principal variables affecting the reduction was studied, in view of both high uranium contents in the alloy and high recoveries. The experiments were carried out in an assembly mounted by the author and consisting essentially of an induction heated graphite crucible which could be easily taken out from the coil to pour its molten contents. Power was supplied by a high frequency (1 MHz) generator.

The data obtained in seven series of experiences totalling 36 runs, show that with 15 minutes of total operating time, alloys up to 57,7% U were obtained, with recoveries between 90 and 98%.

RESUMÉ

L'auteur décrit l'étude expérimentale, réalisée dans la Divisão de Metalurgia Nuclear de Instituto de Energia Atômica, de la réduction de U_3O_8 sous forme de poudre libre, par de l'aluminium liquide et pour des alliages liquides aluminium-uranium, sous la protection d'un système fondu constitué initialement par de la criolite.

L'étude a pour but l'obtention des données sur l'influence des principales variables de l'opération qui effectent la teneur en U de l'alliage et sa récupération. Elle fut réalisée dans un ensemble monté par l'auteur qui consiste essentiellement en un creuset de graphite chauffé par induction dans un four haute fréquence (1 MHz), le creuset étant ouvert à l'atmosphère et pouvant être facilement retiré pour couler son contenu.

Les résultats obtenus au cours de sept séries d'expériences, comprenant 36 opérations, ont montré que avec une durée totale de l'ordre de 15 minutes on peut obtenir des alliages de haute teneur, jusqu'à 57,7% U, avec une récupération comprise entre 90 e 98%.

RESUMEN

Describe el autor el estudio experimental, realizado en la División de Metalurgia Nuclear del Instituto de Energia Atômica, de reducción de U_3O_8 , en la forma de polvo, por aluminio líquido y aleaciones aluminio-uranio, bajo la protección de sistema líquido constituido inicialmente por criolita. El estudio visualizó la obtención de los datos sobre la influencia de las principales variables de operación que effectan el tenor de U en la aleación y su recuperación.

Fue realizado en un conjunto montado por el autor, y que consiste esencialmente en crisol de grafito calentado por horno de alta frecuencia (1 MHz), el crisol siendo abierto a la atmósfera y pudiendo ser facilmente retirado para la extracción de su contenido.

Los resultados obtenidos en el decurso de siete series de experiencias, comprendiendo 36 operaciones, mostraron que en operaciones con duración total de 15 minutos, se pueden obtener aleaciones de alto tenor en U, hasta 57,7% U, con recuperaciones entre 90 e 98%.