



**ESTUDO EXPERIMENTAL DA PRODUÇÃO DE PASTILHAS
DE ThO_2 E DE $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$**

*THARCÍSIO D. DE SOUZA SANTOS, HELITON M. HAYDT, CLAUER
TRENCH DE FREITAS, JOSÉ DEODORO TRANI CAPOCCHI,
ERNESTO COUTINHO PUCCINI*

PUBLICAÇÃO IEA N.º 132

Dezembro — 1966



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

ESTUDO EXPERIMENTAL DA PRODUÇÃO DE PASTILHAS

DE ThO₂ E DE ThO₂-UO₂

Tharcísio D. de Souza Santos

Heliton M. Haydt

Clauer Trench de Freitas

José Deodoro Trani Capocchi

Ernesto Coutinho Puccini

Divisão de Metalurgia Nuclear

Instituto de Energia Atômica

São Paulo - Brasil

Publicação IEA nº 132

Dezembro - 1966

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: Eng^o Pedro Bento de Camargo

Divisão de Operação e Manutenção de Reatores -

Chefe: Eng^o Azor Camargo Penteadó Filho

Divisão de Física de Reatores -

Chefe: Prof. Dr. Paulo Saraiva de Toledo

Divisão de Ensino e Formação -

ESTUDO EXPERIMENTAL DA PRODUÇÃO DE PASTILHAS

DE ThO₂ E DE ThO₂-UO₂

Tharcísio D. de Souza Santos

Heliton M. Haydt

Clauer Trench de Freitas

José Deodoro Trani Capocchi

Ernesto Coutinho Puccini

RESUMEN

Los autores describen los estudios experimentales realizados en lo que se refiere a la producción de pastillas de ThO₂ y de soluciones sólidas de ThO₂ conteniendo 1, 2 y 5% de UO₂. Los polvos de ThO₂ y de U₃O₈ fueron preparados respectivamente, por disociación de Th(SO₄)₂.9H₂O y de diuranato de amonio con tenores variables de sulfato. En virtud de la baja capacidad de compactación intrínseca del ThO₂ obtenido, fue estudiada su pre-compactación. Las mejores condiciones correspondieron a 1 t/cm², no habiéndose verificado influencia de la granulometría del polvo usado. Las condiciones de compactación fueron estudiadas bajo presiones variables, así como las de sinterización realizadas en un horno de muflas tubulares a 1400°C, durante tiempos variables de 1, 3 y 9 horas. Los valores obtenidos mostraron que para 3 t/cm² no hay influencia sensible del tiempo y que para 1 t/cm² el aumento del índice de sinterización es bastante elevado. El ensayo comparativo de sinterización de pastillas de ThO₂ bajo vacío de 10⁻⁵ mm de Hg, mostró valores iguales a los obtenidos en atmósfera de argônio.

RÉSUMÉ

Les auteurs présentent les résultats des études expérimentales effectuées pour la production de pastilles de ThO₂ et de solutions solides ThO₂ contenant 1,2 et 5% de UO₂.

Les poudres de ThO₂ et de U₃O₈ ont été préparées respectivement, par dissociation

du $\text{Th}(\text{SO}_4)_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ et du diuranate d'ammonium contenant des quantités variables de sulfate.

En raison de la basse compacité intrinsèque du ThO_2 obtenu, la pré-compaction a été étudiée et, il a été vérifié que la meilleure condition est de 1 t/cm^2 et que la granulométrie de la poudre n'a aucune influence.

Les auteurs ont étudié les conditions de compactage pour différentes pressions ainsi que celles de frittage effectuées dans des fours tubulaires à 1400°C durant un temps variable de 1,3 et 9 heures.

Les valeurs obtenues ont montré que pour 3 t/cm^2 il n'existe pas d'influence sensible du temps et que pour 1 t/cm^2 l'augmentation de l'indice de frittage est assez grande. Un essai comparatif de frittage de pastilles de ThO_2 sous un vide de 10^{-5} mm de Hg a montré des valeurs égales à celles obtenues avec l'argon.

ABSTRACT

The authors describe experimental studies on the production of ThO_2 pellets as well as solid solutions of ThO_2 containing 1, 2 and 5% UO_2 . The ThO_2 and U_3O_8 powders were prepared, respectively, by dissociation of the $\text{Th}(\text{SO}_4)_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ and of ammonium diuranate, which contained variable percentages of sulfate. Due to the low intrinsic compactibility of obtained ThO_2 , its behavior in pre-pressing was studied, from which it was determined that the best conditions were 1 t/cm^2 , the grain size of the powder not being important. The pressing and sintering properties were studied at different pressures, in a tubular muffle furnace at 1400°C for 1,3 and 9 hours. Data obtained showed that at 3 t/cm^2 the time effect had no influence and that at 1 t/cm^2 the increase in sintering rate was reasonably high. Comparative sintering tests on ThO_2 pellets in a 10^{-5} mm of mercury vacuum showed results equal to those obtained in argon.

ESTUDO EXPERIMENTAL DA PRODUÇÃO DE PASTILHAS DE ThO_2 E DE $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$ ⁽¹⁾

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS ⁽²⁾
HELITON M. HAYDT ⁽³⁾
CLAUER TRENCH DE FREITAS ⁽⁴⁾
JOSÉ DEODORO TRANI CAPOCCHI ⁽⁵⁾
ERNESTO COUTINHO PUCCINI ⁽⁵⁾

RESUMO

Descrevem os autores os estudos experimentais realizados referentes à produção de pastilhas de ThO_2 e de soluções sólidas ThO_2 contendo 1, 2 e 5% de UO_2 . Os pós de ThO_2 e de U_3O_8 foram preparados, respectivamente, por dupla dissociação de $\text{Th}(\text{SO}_4)_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ e de diuranato de amônio, contendo, este, teores variáveis de sulfato. Em virtude da baixa compactabilidade intrínseca do ThO_2 obtido, foi estudada a sua pré-compactação, as melhores condições sendo sob 1 t/cm^2 , não havendo influência da granulometria do pó usado. As condições de compactação foram estudadas sob pressões variáveis, bem como as de sinterização, realizada em forno de muflas tubulares a 1400°C sob tempos variáveis de 1, 3 e 9 horas. Os valores obtidos mostraram que para 3 t/cm^2 não há influência sensível do tempo e que para 1 t/cm^2 o aumento do índice de sinterização é razoavelmente elevado. Ensaio comparativo de sinterização de pastilhas de ThO_2 sob vácuo de 10^{-3} mm Hg mostrou valores iguais aos obtidos sob argônio.

1. INTRODUÇÃO

Dado o interesse potencial futuro de utilização de tório como material fértil em reatores, continuou a Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica o programa de pesquisas referentes à produção de pastilhas de óxido de tório e de soluções sólidas de óxido de tório com dióxido de urânio. Em trabalho preliminar apresentado ao XVIII Congresso Anual da ABM ¹ foram apresentados os primeiros resultados dos estudos até então realizados; tais estudos foram prosseguidos e nesta contribuição são apresentados os seus resultados mais significativos. Outros aspectos da metalurgia do tório e sobre o interesse de utilização de reator com liga líquida de tório, foram objeto de outras contribuições ^{2, 3}.

Nesta contribuição examinam os autores, primeiramente, os fundamentos para a produção das soluções sólidas $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$ com base nos tra-

balhos de Handwerk e colaboradores ^{4, 5}; descrevem depois os processos adotados para a obtenção de óxido de tório de elevada pureza a partir de dissociação térmica do sulfato de tório; os recursos para a melhoria da compactabilidade do óxido produzido; o condicionamento das cargas de ThO_2 e U_3O_8 para ulterior obtenção das soluções sólidas; a compactação dessas cargas sob pressões variáveis em prensa hidráulica e, por fim, a sinterização das pastilhas, estudando a influência do tempo de sinterização e da atmosfera do forno sobre a densidade e sobre o índice de sinterização.

2. TRABALHOS ANTERIORES SOBRE AS SOLUÇÕES SÓLIDAS ThO_2UO_2

Pastilhas de $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$ apresentam grande interesse como material combustível principalmente nos casos em que devam ser muito elevadas as temperaturas no elemento combustível e em que venham a ser encontradas atmosferas muito corrosivas. Os dois óxidos formam uma série contínua de soluções sólidas com pontos de fusão variando de 3300°C (ThO_2) para 2870°C (UO_2). Os cristais de solução sólida que contenha até 56,5% UO_2 apresentam estrutura cúbica da fluorita, a qual é estável ao ar até cerca de 1200°C .

Convém lembrar que Handwerk ⁵ já havia mostrado anteriormente que as soluções sólidas podiam ser preparadas a partir de misturas $\text{ThO}_2\text{-U}_3\text{O}_8$, uma vez que já a 1150°C sob tempos relativamente longos o óxido U_3O_8 se dissocia parcialmente em UO_2 liberando oxigênio. Assim,

(1) Contribuição Técnica nº 651. Apresentada ao XXI Congresso da ABM; Volta Redonda, julho de 1966.

(2) Membro da ABM; Chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica; Professor Catedrático de Metalurgia dos Metais Não-Ferrosos e Diretor, Escola Politécnica da Universidade de São Paulo, São Paulo, SP.

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

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

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

podem as cargas ser preparadas por misturas de ThO_2 com U_3O_8 , este óxido sendo adicionado na proporção correspondente ao UO_2 desejado.

Muito embora possa a operação de sinterização e formação da solução sólida ser realizada ao ar, como aliás foi feito no trabalho preliminar citado¹, preferiram os autores realizá-la sob argônio, ou sob vácuo, para evitar a possibilidade de reoxidação a U_3O_8 de zonas não homogeneizadas de solução sólida no processo de resfriamento.

Mencionam Loch e Quirk⁶ que pastilhas de $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$ contendo até 25% UO_2 , praticamente não acusam aumento algum de massa quando aquecidas ao ar durante 96 horas a 1400°C ou durante 1 hora a 1750-1850°C.

3. ESTUDOS EXPERIMENTAIS REALIZADOS

3.1 — *Produção do U_3O_8* — O U_3O_8 utilizado nos estudos experimentais adiante descritos foi preparado a partir de diuranato de amônio de pureza nuclear, contendo contudo teor relativamente elevado de sulfato, provavelmente na forma de sulfato de uranilo. A fim de assegurar quase completa eliminação do enxofre, foi a calcinação realizada a 850-875°C em forno de mufla, durante 3 horas. Numerosas análises químicas de amostras extraídas no decurso de outro trabalho mostraram que o teor residual de SO_4 era inferior a 100 ppm (cerca de 30 ppm de S). O U_3O_8 obtido foi posteriormente peneirado em peneira de 325 malhas por polegada, só tendo sido utilizada a fração de granulometria menor.

3.2 — *Produção do ThO_2* — Utilizaram os autores sulfato de tório de pureza nuclear, contendo menos de 10 ppm de impurezas, processado pelos químicos da Divisão de Engenharia Química a partir do sulfato de pureza comercial (99,7%) produzido pela Orquima S.A. para a Comissão Nacional de Energia Nuclear. O sal utilizado, e cuja fórmula é $\text{Th}(\text{SO}_4)_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ é pó branco, de diâmetro de partícula inferior a 325 malhas por polegada e de muito baixa densidade solta, apenas 0,2 g/cm³.

A produção do ThO_2 para fins cerâmicos a partir do sulfato citado foi feita em duas etapas, ambas em forno elétrico de mufla, dotado de resistências de níquel-cromo, em cápsulas de porcelana, para evitar qualquer contaminação, durante 3 horas e sob velocidade de aquecimento de 300°C/hora. A temperatura de pré-calcinação foi de 850°C e a de calcinação 1000°C.

A tabela I reúne alguns dos dados obtidos nessas operações.

TABELA I — Teor de enxofre residual na dissociação

Operação	Temperatura (°C)	Tempo (h)	S final (%)
Pré-calcinação	850	3	5,4
Pré-calcinação	850	7	0,12
Pré-calcinação	850	15	0,10
Calcinação final ..	1000	3	0,025

O óxido de tório produzido pela calcinação a 1000°C subsequente à pré-calcinação, era pó branco de densidade solta de 0,5 g/cm³.

3.3 — *Condicionamento do pó de ThO_2* — Em virtude da baixa compactabilidade intrínseca do óxido de tório produzido, foi estudada a sua melhoria à custa de moagem e atrito das partículas umas sobre as outras, bem como a influência da adição de cânfora como aglomerante. A melhoria obtida foi bastante pequena, motivo pelo qual os autores resolveram estudar a pré-compactação como meio de permitir a obtenção de pastilhas de densidade adequada para o tratamento subsequente de sinterização.

3.4 — *Pré-compactação do pó de ThO_2* — Foi estudada a influência da granulometria do pó de ThO_2 e da pressão de pré-compactação sobre a densidade das pastilhas, as quais eram em seguida desintegradas em almofariz e o produto da desintegração passado em peneira de 20 malhas por polegada, para ulterior compactação. As frações da granulometria escolhidas foram as seguintes: +100, -100+200 e -325. A pré-compactação foi realizada em matriz flutuante de 40,15 mm de diâmetro e sob pressão de 1 t/cm². Reúne a tabela II os dados obtidos.

TABELA II — Influência da granulometria e da pressão de compactação sobre a densidade de pastilhas produzidas por pó pré-compactado sob 1 t/cm²

Pressão de compactação (t/cm ²)	Densidade no estado compactado (g/cm ³)		
	Pó ThO_2 + 100	Pó ThO_2 — 100 + 200	Pó ThO_2 — 325
1	4,43	4,44	4,41
1	4,43	4,39	4,43
1	4,41	4,40	4,42
1	4,43	4,47	4,42
1 média	4,43	4,43	4,43
2	4,69	4,65	4,70
2	4,68	4,67	4,70
2	4,71	4,68	4,71
2	4,71	4,71	4,71
2 média	4,70	4,68	4,70
3	4,90	4,86	4,89
3	4,91	4,89	4,91
3	4,92	4,89	4,89
3	4,91	4,87	4,91
3 média	4,91	4,88	4,90

Os resultados acima mostram que as granulometrias estudadas não influenciam os resultados dentro dos limites de erro das determinações e que pressões de compactação crescentes determinam crescentes valores da densidade. Outras determinações mostraram que é menor a influência, sobre a densidade das pastilhas, do emprego de pressões de pré-compactação mais elevadas. Como o desgaste da matriz aumenta rapidamente com o aumento da pressão de compactação, deixaram os autores de recorrer ao emprego de pressões de compactação mais elevadas.

3.5 — *Compactação de pastilhas* — Para os estudos desenvolvidos estabeleceram inicialmente os autores o programa de produzir pastilhas de 10,3 mm de diâmetro e cerca de 20 mm de altura, das seguintes composições: 1) ThO₂; 2) 99% ThO₂-1% UO₂; 3) 98% ThO₂-2% UO₂ e 4) 95% ThO₂-5% UO₂. As cargas seriam constituídas de ThO₂ em mistura com U₃O₈ na proporção equivalente ao UO₂ desejado, conforme já se disse anteriormente baseado no trabalho de Handwerk⁵. Para cálculo dos resultados ulteriores convém reproduzir os valores calculados para as densidades teóricas das pastilhas dessas composições, nos cálculos sendo adotados os valores mais recentes para as densidades de ThO₂ (10,03 g/cm³), U₃O₈ (8,30 g/cm³) e UO₂ (10,96 g/cm³). Os valores obtidos constam da tabela III.

TABELA III — Densidades calculadas de misturas ThO₂-U₃O₈ e de soluções sólidas ThO₂-UO₂

Composição	Densidade (g/cm ³)
ThO ₂ *	10,03
96,96 ThO ₂ -1,04 U ₃ O ₈	10,01
97,9 ThO ₂ -2,1 U ₃ O ₈	9,99
94,8 ThO ₂ -5,2 U ₃ O ₈	9,92
99,0 ThO ₂ -1,0 UO ₂	10,03
98,0 ThO ₂ -2,0 UO ₂	10,05
95,0 ThO ₂ -5,0 UO ₂	10,07

* Valor experimental

Na tabela IV foram grupados os resultados obtidos (médias de oito pastilhas) das densidades geométricas das pastilhas no estado compactado. Todas as cargas foram pré-compactadas sob 1 t/cm², pelas razões anteriormente expostas.

TABELA IV — Influências da composição e da pressão de compactação sobre a densidade no estado compactado de pastilhas (resultados médios de 8 pastilhas de 10,3 mm de diâmetro)

Composição da carga (%)	Pressão de compactação (t/cm ²)	Densidade no estado compactado (g/cm ³)	Porcentagem da densidade teórica (%)
100 ThO ₂	1	4,60	45,9
	3	5,03	50,1
98,96 ThO ₂ -1,04 U ₃ O ₈	1	4,47	44,7
	3	4,82	48,2
97,9 ThO ₂ -2,1 U ₃ O ₈	1	4,32	43,2
	3	4,66	46,6
94,8 ThO ₂ -5,2 U ₃ O ₈	1	4,50	45,4
	3	5,04	50,8

Os valores acima mostram influência sensível da composição sobre a densidade.

TABELA V — Influências da composição, da pressão de compactação e do tempo de sinterização a 1400°C sobre a densidade de pastilhas sinterizadas (resultados médios de 4 pastilhas)

Composição (%)	Pressão de compactação (t/cm ²)	Tempo de sinterização (h)	Densidade no estado sinterizado (g/cm ³)	Porcentagem da densidade teórica (%)
100 ThO ₂	1	1	7,5	75
	1	3	8,8	88
	1	9	9,1	91
	3	1	7,8	78
	3	3	9,2	92
	3	9	9,1	91
99 ThO ₂ -1 UO ₂	1	1	—	—
	1	3	8,3	82
	1	9	8,5	84
	3	1	—	—
	3	3	8,9	89
	3	9	8,7	86
98 ThO ₂ -2 UO ₂	1	1	—	—
	1	3	8,3	83
	1	9	8,9	90
	3	1	—	—
	3	3	8,6	85
	3	9	8,9	88
95 ThO ₂ -5 UO ₂	1	1	6,7	67
	1	3	9,1	90
	1	9	9,1	90
	3	1	7,3	72
	3	3	9,2	92
	3	9	9,3	92

3.6 — *Sinterização das pastilhas* — Duas séries distintas de ensaios de sinterização foram realizadas: uma, em forno dotado de quatro muflas tubulares aquecido por resistências radiantes de "global" e em atmosfera de argônio; e outra, no forno Wild-Barfield de resistência radiante de tungstênio metálico, sob vácuo de 10⁻⁵ mm de coluna de mercúrio. No forno de muflas tubulares o argônio passava por câmara de pré-aquecimento, com o objetivo de evitar possível causa de trincas nas pastilhas por choque térmico do gás frio nas manobras de ajustagem da descarga.

Foram realizadas três séries de operações de sinterização no forno de muflas sob argônio, mantida constante a temperatura em 1400°C (e constante também a velocidade de subida e de descida de temperatura), e variando os tempos de permanência da carga à temperatura máxima, em 1, 3 e 9 horas. Reúne a tabela V os resultados obtidos; os valores indicados sendo valores médios de quatro pastilhas.

Calcularam-se os valores dos "índices de sinterização" introduzidos em trabalho anterior⁷ como índice capaz de definir de forma mais apropriada a capacidade de fechamento dos poros no processo de sinterização. O índice de sinterização I_s é definido por

$$I_s = \frac{d_s - d_c}{d_t - d_c}$$

onde d_s, d_c e d_t são, respectivamente, as densidades nos estados sinterizado, compactado e a densidade teórica.

Na tabela VI reúnem-se os dados referentes aos "índices de sinterização", com base nos valores de d_t, d_c e de d_s extraídos das tabelas III, IV e V.

Os valores das densidades das pastilhas sinterizadas constantes da tabela V são os das densidades baseadas nas medidas de altura e de diâmetro médio. As determinações de densidade pelo método hidrostático e após 4 horas de imersão em água fervente, foram sempre maiores do que as de cálculo baseado na geometria; assim, para as pastilhas de ThO₂, o aumento sobre a densidade geométrica foi de 3%, para 99% ThO₂-1%UO₂ de 5,2%; para 98% ThO₂-2% UO₂ de 5% e, finalmente, para 95% ThO₂-5% UO₂ de 3,8%.

No forno Wild-Barfield foram realizadas algumas operações de sinterização, sendo de maior interesse as que compreenderam pastilhas de ThO₂ da mesma série das que foram sinterizadas no forno de muflas tubulares sob argônio. A média de resultados de sinterização durante 3 horas a 1400°C sob vácuo de 10⁻⁵ mm de mercúrio (os tempos para subida e descida de tem-

TABELA VI — Influências da composição, da pressão de compactação e do tempo de sinterização a 1400°C sobre o "índice de sinterização"

Composição (%)	Pressão de compactação (t/cm ²)	Tempo de sinterização (h)	Índice de sinterização "I _s "
100 ThO ₂	1	1	0,53
	1	3	0,78
	1	9	0,83
	3	1	0,55
	3	3	0,83
	3	9	0,81
99 ThO ₂ 1 UO ₂	1	1	—
	1	3	0,68
	1	9	0,72
	3	1	—
	3	3	0,78
	3	9	0,80
98 ThO ₂ -2 UO ₂	1	1	—
	1	3	0,70
	1	9	0,80
	3	1	—
	3	3	0,72
	3	9	0,78
95 ThO ₂ -5 UO ₂	1	1	0,40
	1	3	0,82
	1	9	0,82
	3	1	0,44
	3	3	0,83
	3	9	0,85

peratura sendo aproximadamente os mesmos dos do forno anteriormente citado) foi de 9,0 g/cm³ (9,1 g/cm³ no forno de muflas tubulares) correspondente a 90% da densidade teórica (91% no forno de muflas tubulares). Assim, nessas experiências de caráter preliminar, de sinterização sob vácuo, os resultados obtidos foram sensivelmente os mesmos obtidos na operação sob argônio no forno de quatro muflas, tendo sido as mesmas a temperatura e a duração da sinterização.

4. CONCLUSÕES

1. O óxido de tório foi produzido pelos autores por dissociação de Th(SO₄)₂ · 9H₂O nuclearmente puro, purificado no Instituto de Energia Atômica pela Divisão de Engenharia Química a partir de sal de pureza comercial, produzido pela Orquima S.A. para a Comissão Nacional de Energia Nuclear. A fim de baixar o teor de S a menos de 0,025%, foi feita uma pré-calcinação a 850°C, seguida de calcinação final a 1000°C, ambas durante 3 horas.

2. Para o preparo das pastilhas de soluções sólidas $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$, com 1, 2 e 5% UO_2 , partiu-se de cargas de ThO_2 e de U_3O_8 equivalente ao teor desejado, o U_3O_8 tendo sido também preparado pelos autores por calcinação de diuranato de amônio contendo sulfato, por dissociação a 850-875°C durante 3 horas.

3. Em virtude da baixa compactabilidade intrínseca do pó de ThO_2 e dos pós $\text{ThO}_2\text{-U}_3\text{O}_8$, estudaram os autores as condições de pré-compactação, tendo os resultados obtidos mostrado não existir influência da granulometria do ThO_2 e indicando a conveniência de a pressão de pré-compactação ser mantida em 1 t/cm² (tabela II).

4. Na tabela IV foram apresentados os resultados médios de 8 pastilhas para cada uma das composições estudadas e para as pressões de 1 e de 3 t/cm². É sensível o incremento das densidades no estado compactado das pastilhas obtidas sob 3 t/cm² em comparação às produzidas sob 1 t/cm². ○

5. Foram apresentados nas tabelas V e VI os resultados das densidades, das porcentagens das densidades teóricas e dos "índices de sinterização" das pastilhas sinterizadas a 1400°C em forno de muflas tubulares em atmosfera de argônio, para os tempos de sinterização de 1, de 3 e de 9 horas. Os resultados obtidos mostraram que praticamente não existe influência do tempo de sinterização além de 3 horas para pastilhas obtidas sob 3 t/cm²; entretanto, para as pastilhas obtidas sob a pressão de 1 t/cm² é sensível o aumento daqueles característicos com o tempo de sinterização.

6. Os valores obtidos na sinterização de pastilhas de ThO_2 em forno Wild-Barfield de vácuo de 10⁻⁵ mm de mercúrio, nas mesmas condições de temperatura e de tempo de sinterização, foram sensivelmente os mesmos obtidos à pressão atmosférica e sob atmosfera de argônio.

7. Os "índices de sinterização" obtidos (tabela VI) mostraram que as cargas produzidas asseguraram a obtenção de pastilhas de elevadas densidades (tabela V), mesmo quando sinterizadas por tempos bastante curtos e a temperaturas não muito elevadas, o que poderá ser de interesse para eventuais empregos em elementos combustíveis para reatores.

3. BIDWELL, R. M. — Considerações metalúrgicas sobre um reator de conversão com liga líquida de tório. ABM-BOLETIM, vol. 19, nº 77, págs. 557-570, 1963.
4. HANDWERK, J. H., HOENIG, C. L. e LIED, R. C. — Manufacture of the $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$ Ceramic Fuel Pellets for Borax-IV. ANL-5678, agosto, 1957.
5. HANDWERK, J. H., ABERNETHY, L. L. e BACH, R. A. — Thoria and Urania Bodies. Bull. Am. Cer. Soc., vol. 36, págs. 99-101, 1957.
6. LOCH, L. D. e QUIRK, J. F. — Ceramics. Reactor Handbook, vol. 1 — Materials, pág. 297, Interscience, 1960.
7. PEREIRA DA SILVA, P. S. C., SOUZA SANTOS, T. D. e FREITAS, C. T. — Contrôlo dimensional de pastilhas de urânio para o reator "RE-SUCO". ABM-BOLETIM, vol. 20, nº 85, pág. 760, 1964.

AGRADECIMENTO

Os autores agradecem ao Dr. K. J. Brill, anteriormente Chefe da Divisão de Engenharia Química, e ao Lic. Alcídio Abrão, atual Chefe da referida Divisão, e à Sra. Ludmilla Federgrün pela colaboração recebida, principalmente pela realização de numerosas análises químicas de controle na fabricação do óxido de tório.

DISCUSSÃO

MÁRIO RENNÓ GOMES (1) — Desejo encarecer a importância dos estudos sobre ThO_2 , uma vez que ainda parecem ser bastante limitadas as disponibilidades de urânio no Brasil. Dada a importância das reservas de minérios de tório, parece muito oportuna a pesquisa realizada.

WALDO ROLIM DE MORAES FILHO (2) — Não sendo especialista no setor, pergunto ao autor sobre os principais problemas tecnológicos ligados ao emprego de tório em reatores.

JOSÉ DEODORO TRANI CAPOCCHI (3) — A questão principal diz respeito aos reatores que possam utilizar tório, um assunto que ainda está em desenvolvimento no estrangeiro, não existindo, presentemente, reatores que funcionem apenas com tório.

HELITON MOTTA HAYDT (4) — Complementando as palavras do Eng.º Capocchi, posso ainda informar que parecem residir as maiores dificuldades no reprocessamento do combustível irradiado, para a recuperação do U-233.

BIBLIOGRAFIA

1. FREITAS, C. T., HAYDT, H. M. e SOUZA SANTOS, T. D. — Nota preliminar sobre a fabricação de pastilhas de berilla, de tória e de soluções sólidas tória-urânio. ABM-BOLETIM, vol. 20, nº 84, págs. 557-566, 1964.
2. HAYDT, H. M. — Estado atual da tecnologia de produção de tório metálico. ABM-BOLETIM, vol. 19, nº 77, págs. 571-573, 1963.

- (1) Membro da ABM; Engenheiro Metalurgista; Instrutor, Técnicos Industriais Consultores "TECNICON" Ltda.
- (2) Membro da ABM; Engenheiro Metalurgista; Diretor da Escola Politécnica da USP, SP.
- (3) Membro da ABM; Engenheiro Metalurgista e Nuclear; Auxiliar de Pesquisa na Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica; São Paulo, SP.
- (4) Membro da ABM; Oficial da Marinha de Guerra; Engenheiro Naval Metalurgista; Chefe de Pesquisa do Instituto de Energia Atômica; São Paulo, SP.

D. VASSALLO (*) — Poderia apresentar dados complementares quanto ao desgaste das matrizes e sobre a influência da pressão de compactação sobre o referido desgaste?

J. D. T. CAPOCCHI — Não dispomos de dados numéricos quanto ao desgaste da matriz com o uso. No caso das pastilhas produzidas, empregamos uma matriz já bastante usada. Para facilitar a compactação, usamos sempre estearato de zinco como lubrificante dos êmbolos e do corpo da matriz.

D. VASSALLO — Um dado que me chamou a atenção é o de que para 100% de ThO_2 se obtém o máximo de densidade, cerca de 91,5%. Ela depois baixa para 99% de ThO_2 e volta a subir a 95% de ThO_2 . Há alguma explicação para essa aparente anomalia?

(5) Membro da ABM. Da Divisão de Metalurgia, Comissão Nacional de Energia Atômica, Buenos Aires, Argentina.

J. D. T. CAPOCCHI — Talvez no caso de 100% de ThO_2 , quando temos uma única fase, a densidade decorra já da própria composição. No caso das pastilhas de ThO_2 e UO_2 , a densidade das mesmas é de fato crescente. A de 5% tem porcentagem de densidade teórica superior à de 2%, e esta à de 1%. Não tenho, entretanto, no momento, dados que permitam esclarecer a questão levantada pelo Eng.º Vassallo.

C. T. DE FREITAS (*) — Gostaria de complementar a resposta do Eng.º Capocchi, com uma observação, a qual me parece bastante importante. As densidades das pastilhas sinterizadas foram determinadas com erro de 1%. Assim, a incerteza é da ordem de 0,08 g/cm³, o que explica a aparente incongruência dos resultados tabelados.

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