AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**ESTUDO DO PROCESSO DE FABRICAÇÃO DE ALVOS DE FOLHAS
FINAS DE URÂNIO METÁLICO PARA PRODUÇÃO DE Mo-99**

JOSE ANTONIO BATISTA DE SOUZA

Tese apresentada como parte dos requisitos para a obtenção do Grau de Doutor em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear – Materiais.

Orientador:
Prof. Dr. Michelangelo Durazzo

São Paulo
2018

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**ESTUDO DO PROCESSO DE FABRICAÇÃO DE ALVOS DE FOLHAS
FINAS DE URÂNIO METÁLICO PARA PRODUÇÃO DE Mo-99**

JOSE ANTONIO BATISTA DE SOUZA

Tese apresentada como parte dos
requisitos para a obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área de Tecnologia
Nuclear – Materiais.

Orientador:
Prof. Dr. Michelangelo Durazzo

Versão Corrigida
Versão Original disponível no IPEN

São Paulo
2018

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho,
para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte

Como citar:

SOUZA, J. A. B. d. **ESTUDO DO PROCESSO DE FABRICAÇÃO DE ALVOS D
FOLHAS FINAS DE URÂNIO METÁLICO PARA PRODUÇÃO DE ⁹⁹Mo**. 2018. 159 p. Tese
(Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares,
IPEN-CNEN/SP, São Paulo. Disponível em: <www.teses.usp.br> (data de consulta no
formato: dd/mm/aaaa)

Ficha catalográfica elaborada pelo Sistema de geração automática da Biblioteca IPEN/USP,
com os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

Souza, José Antonio Batista de
ESTUDO DO PROCESSO DE FABRICAÇÃO DE ALVOS DE FOLHAS FINAS
DE URÂNIO METÁLICO PARA PRODUÇÃO DE ⁹⁹Mo / José Antonio
Batista de Souza; orientador Michelangelo Durazzo. -- São
Paulo, 2018.
159 p.

Tese (Doutorado) - Programa de Pós-Graduação em Tecnologia
Nuclear (Materiais) -- Instituto de Pesquisas Energéticas e
Nucleares, São Paulo, 2018.

1. alvos de folhas finas de urânio metálico. 2. tecnécio.
3. molibdênio. 4. LEU. 5. reator RMB. I. Durazzo,
Michelangelo, orient. II. Título.

FOLHA DE APROVAÇÃO

Autor: José Antonio Batista de Souza

Título: ESTUDO DO PROCESSO DE FABRICAÇÃO DE ALVOS DE FOLHAS FINAS DE URÂNIO METÁLICO PARA PRODUÇÃO DE Mo-99

Tese Apresentada ao Programa de Pós-Graduação
em Tecnologia Nuclear da Universidade de São
Paulo para obtenção do título de Doutor

Data: 05 / 10 / 2018

Banca Examinadora

Prof. Dr: Michelangelo Durazzo
Instituição: IPEN

Julgamento: Aprovado

Prof. Dra: Elita Fontenele Urano de Carvalho
Instituição: IPEN

Julgamento: Aprovado

Prof. Dr: Nelson Batista de Lima
Instituição: IPEN

Julgamento: Aprovado

Prof. Dr: João Manoel Losada Moreira
Instituição:UFABC

Julgamento: Aprovado

Prof. Dra: Claudia Terezinha Kniess
Instituição: UNINOVE

Julgamento: Aprovado

*Aos meus pais, Antônio e Patrocínia e a
minha esposa Stela, que muitas vezes se
doaram e renunciaram aos seus sonhos.*

AGRADECIMENTOS

Ao Dr. Michelangelo Durazzo pela orientação, incentivo e paciência durante a execução deste trabalho.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares-IPEN/CNEN-SP, pela possibilidade de realizar este trabalho.

Aos gerentes Dra Elita F. Urano Carvalho e Dr. Lauro Roberto do Santos, do Centro do Combustível Nuclear (CCN), pela oportunidade de pesquisa e pelas facilidades, sem as quais este trabalho não poderia ter sido realizado.

A FAPESP pelo apoio e oportunidade através do projeto (2015/08922-0) aprovado na pessoa do coordenador Michelangelo Durazzo.

Ao Programa de Capacitação Institucional – PCI/CNEN através do projeto “ Desenvolvimento de método de purificação de ^{99}Mo obtido pela fissão de ^{235}U via dissolução ácida de alvos de baixo enriquecimento (LEU) ”, coordenadora Elita F. Urano de Carvalho, pelo suporte técnico através da visita técnica do *expert* Jaime Ramon Lisboa Lineros –CCHEN (Chile).

Ao Empreendimento Reator Multipropósito Brasileiro – RMB e a FINEP pelo apoio e oportunidade através do projeto aprovado “Adequação das Instalações para fornecimento de combustível para o RMB – Convênio 01.13.0389.00 ” aos coordenadores Jose Augusto Perrotta / Elita F. Urano de Carvalho do IPEN/CNEN-SP.

Ao CNPq pelo apoio através dos projetos aprovados 304034/2015-0 e 402081/2016-1 na pessoa do coordenador Michelangelo Durazzo.

Aos amigos do CCN, Dr. Adonis Marcelo Saliba, Dr. Giovanni de Lima C. Conturbia, Dr. Reinaldo L. Caratin, MSc Edeval Vieira, MSc. Felipe B. J. Ferrufino, MSc. Ilson Carlos Martins, MSc. Rafael H.L. Garcia, Adriano Giardino, Ary P. Junior, Cristina O. Leandro, Enéas T. de Oliveira, Fernando Fornarolo, João Lopes de Araújo, Jose Maria Fidelis, Jose Ronaldo de O. Marques, Jose Vicente Pereira, Olair dos Santos, Paulo Alves da Costa, Raimundo R. da Silva, Sergio Rabello e Valdeci Ap. F. da Costa.

A Dra Teresinha de Moraes da Silva, Claudio Calixto de Almeida e Robson de Jesus Ferreira, pelo acompanhamento de proteção radiológica na realização deste trabalho.

Ao Dr. Reynaldo Plugliesi e Dr. Marco Antônio Stanojev Pereira, pela paciência e colaboração no desenvolvimento das análises de tomografia.

Ao gerente do reator IEA-R1, MSc. Alberto de J. Fernando e ao Sr. Geraldo, pela colaboração na fase do desenvolvimento do processo de soldagem dos alvos.

Aos colegas Celso V. Moraes e Dr. Glauson Aparecido F. Machado, pela colaboração nas análises realizadas por microscopia eletrônica de varredura.

Ao MSc. Gilberto H. Marcondes, MSc. Igor Colado P. Martins, Jorge C. dos Santos, pela colaboração no desenvolvimento das análises de folhas de urânio realizadas por microscopia óptica.

Ao Dr. Nelson Batista de Lima e Dr. Rene Ramos de Oliveira, pelas proveitosas discussões e pela disposição em realizar as análises de textura.

A empresa METALTEC, e aos Srs. Odair J. Nardi, Paulo M. Satudi e Ricardo P. Zerwas, que possibilitaram a realização da gamagrafia dos lingotes e tabletes de urânio utilizados neste trabalho.

Aos Alunos de mestrado Ricardo Ferreira Ianelli e Erik Takara, que ajudaram no desenvolvimento das etapas de laminação, montagem e organização dos dados. Em especial ao Ricardo “fiel escudeiro” que ajudou na etapa final deste trabalho com o apoio e incentivo que nos momentos de tristeza e desânimo sempre dizia “tudo vai dar certo”.

Ao Dr. Pedro Ernesto Umbehaun, por me incentivar no estudo quando as forças já estavam bem fracas para finalizar este trabalho.

Ao Dr. Lalgudi V. Ramanathan, Dra Marina F. Pillis e ao Olandir Vercino Correa, por ceder a infraestrutura do laboratório de corrosão para a realização de parte deste trabalho.

A todos que direta ou indiretamente colaboraram para a execução deste trabalho.

“O sucesso nasce do querer, da determinação e da persistência em se chegar a um objetivo. Mesmo não atingindo o alvo, quem busca e vence obstáculos, no mínimo fará coisas admiráveis.” (José de Alencar)

RESUMO

SOUZA, José Antonio B. *Estudo Do Processo De Fabricação De Alvos De Folhas Finas De Urânio Metálico Para Produção De Mo-99* 2018. p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas energéticas e Nucleares – IPEN – CNEN/SP. São Paulo

O Tecnécio-99m (^{99m}Tc), gerado a partir do decaimento do Molibdênio-99 (^{99}Mo), é o radionuclídeo mais conveniente para a execução de procedimentos de diagnósticos médicos, devido à sua emissão gama bem característica e de fácil detecção. O método utilizado para produzir ^{99}Mo é através da fissão do ^{235}U incorporado nos chamados alvos de irradiação. Duas rotas estão sendo desenvolvidas para a produção do ^{99}Mo por fissão para o Reator Multipropósito Brasileiro (RMB), ambas utilizando urânio de baixo enriquecimento (LEU): 1) A primeira a dissolução básica, que é baseada na tecnologia de alvos de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$. 2) A segunda emprega a dissolução ácida de alvos de folhas finas de urânio metálico. A principal vantagem dos alvos de folha fina de urânio metálico sobre os alvos de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$ é a alta densidade do urânio metálico. Com o intuito de compreender e otimizar o processo de fabricação de alvos de folhas finas foi realizado um estudo da fusão do urânio metálico, laminação de folhas finas, caracterização microestrutural e montagem dos alvos, definindo assim, os procedimentos específicos para a produção desse tipo de alvo com as características dos alvos fabricados internacionalmente. Os resultados obtidos mostraram que o processo de fabricação dos lingotes e de lâminas de urânio metálico por meio de laminação a quente possibilitaram a obtenção de lâminas com espessura entre 250 e 300 μm . O processo de laminação a frio possibilitou a obtenção de folhas finas com espessura de $\pm 125 \mu\text{m}$ que atende à especificação internacional. O uso de óxido de alumínio como material para prevenir caldeamento do tablete de urânio mostrou-se eficiente, substituindo com vantagens o uso de óxido de ítrio. A microestrutura após o tratamento térmico apresentou grãos equiaxiais pequenos, e a realização de um resfriamento rápido de 5 minutos após o tratamento térmico foi suficiente para se eliminar a textura da folha fina de urânio metálico. O processo de montagem das folhas finas no alvo tubular foi realizado por pré-conformação da folha fina, facilitando a montagem. O processo de consolidação do alvo foi realizado por expansão por tração e a folga após a consolidação (“gap de ar”) mostrou-satisfatória. As dimensões finais dos alvos tubulares atenderam à especificação internacional.

Palavras-chave: alvos de folhas finas de urânio, LEU, molibdênio, reator RMB

ABSTRACT

SOUZA, José Antonio B. *Study Of The Process Of Fine Metallic Uranium Sheet Targeting For Mo-99 Production* 2018. p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas energéticas e Nucleares – IPEN – CNEN/SP. São Paulo

Technetium-99m (^{99m}Tc) is generated from the decay of Molybdenum-99 (^{99}Mo). This element is the most convenient radionuclide for application in medical diagnostic procedures, once that its gamma emission is well known and of easily detected. The method used to produce ^{99}Mo is through fission of the ^{235}U embedded in so-called irradiation targets. Two routes are being developed for the production of ^{99}Mo per fission to the Brazilian Multipurpose Reactor (RMB), both using low enriched uranium (LEU): 1) The first basic dissolution, which is based on the technology of dispersion targets $\text{UAl}_x\text{-Al}$. 2) The second employs the acidic dissolution of thin sheet targets of metallic uranium. The main advantage of uranium metal foil targets on the $\text{UAl}_x\text{-Al}$ dispersion targets is the high density of metallic uranium. In order to understand and optimize the process of manufacturing thin sheet targets, about the fusion of metallic uranium, thin sheet lamination, microstructural characterization and assembly of the target was carried out. Therefore the specific procedures for the production of this type of target with the characteristics of the targets manufactured internationally could be defined. The results showed that the process of manufacturing ingots and sheets of metallic uranium by hot rolling allows obtaining sheets with thickness between 250 and 300 μm . The cold rolling process allows obtaining thin sheets with a thickness of $\pm 125 \mu\text{m}$ which are in accordance with the international specification. The use of aluminum oxide as a material to prevent uranium tablet firing proved to be efficient, replacing with advantage the use of yttrium oxide. The microstructure after the heat treatment showed small equiaxial grains. A fast cooling of 5 minutes after the heat treatment was enough to eliminate the texture of the thin sheet of metallic uranium. The process of assembling the thin sheets in the tubular target was performed by preforming the thin sheet, facilitating the assembly. The process of consolidating the target was performed by tensile expansion and the clearance after consolidation ("air gap") was satisfactory. The final dimensions of the tubular targets have met the international specification.

Key words: uranium thin sheet targets, LEU, molybdenum, RMB reactor

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 -	Características principais do equipamento para tomografia com nêutrons[44].	41
Tabela 2 -	Análise química do aço 1020.	42
Tabela 3 -	Análise química do urânio metálico	43
Tabela 4 -	Análise química do alumínio 6061	44
Tabela 5 -	Projeto típico de passes usado para a laminação a quente da lâmina urânio.	69
Tabela 6 -	Análise dimensional da lamina após o término do processo de laminação a quente	74
Tabela 7 -	Projeto típico de passes usado para a laminação a frio da folha fina de urânio.	81
Tabela 8 -	Dimensões das folhas finas de urânio metálico produzidas a partir de tabletes livres de defeitos	89
Tabela 9 -	Resultados obtidos por difração de raios x para as relações (111) / (113) das amostras de urânio	101
Tabela 10 -	Especificação dimensional dos tubos de alumínio que compõe o alvo [45].	104
Tabela 11 -	Análise dimensionais dos tubos de alumínio usados neste trabalho para a montagem de alvos.	108
Tabela 12 -	Folga entre as paredes dos tubos	109
Tabela 13 -	Composição dos alvos montados	110
Tabela 14 -	Dimensões dos diâmetros dos expansores de tração utilizados neste estudo.	130
Tabela 15 -	Definição do expansor de tração usado na consolidação dos alvos.	131
Tabela 16 -	Dimensões dos alvos fabricados neste estudo.	146

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 -	Fluxograma geral do processo de fabricação de alvos de folhas finas de urânio metálico.	33
Figura 2 -	Fluxograma de fabricação proposto	35
Figura 3 -	Caracterização Química e Física	36
Figura 4 -	Diagrama esquemático do equipamento para tomografia com nêutrons [44]	40
Figura 5 -	Alvo do Argonne National Laboratory com dimensões e tolerâncias [45].	46
Figura 6 -	Vistas do forno de indução usado para a fabricação dos lingotes de urânio metálico. 1 – Compartimento de fusão. 2 – Compartimento de lingotamento.	49
Figura 7 -	Vista do cadinho de zircônia posicionado na espira de indução no compartimento de fusão	50
Figura 8 -	Vistas da lingoteira de grafite utilizada.	51
Figura 9 -	Típico lingote de urânio metálico obtido.	51
Figura 10 -	Vistas da lingoteira de cobre inicialmente utilizada.	52
Figura 11 -	Típico lingote de urânio metálico obtido usando lingoteira de cobre.	52
Figura 12 -	Vazios observados por gamagrafia no lingote de urânio metálico obtido usando lingoteira de cobre	53
Figura 13 -	Vazios observados por gamagrafia no lingote de urânio metálico obtido usando lingoteira de grafite	54
Figura 14 -	Gamagrafia dos tabletes para laminação a quente. (A) Contendo vazios. (B) Sem vazios.	55
Figura 15 -	Tomografias ilustrando o tablete de urânio contendo vazios	56
Figura 16 -	Tomografias ilustrando o tablete de urânio sem vazios.	57
Figura 17 -	Esquema de montagem do sanduíche para a laminação a quente.	59
Figura 18 -	Operação típica de soldagem do conjunto para a laminação a quente (A), antes (B), soldagem TIG e (C) depois.	60

Figura 19 -	Defeitos tipo dobradura observados na lâmina de urânio no teste preliminar de laminação.	61
Figura 20 -	Quebra da solda observada na laminação a quente no início do estudo.	61
Figura 21 -	Materiais testados para prevenir caldeamento dos tabletes de urânio metálico nas placas de aço 1020 usadas como revestimento. (A) Al_2O_3 , (B) TiO_2 , (C) Dextrina e (D) Gel de poliacrilamida	63
Figura 22 -	Novo esquema de aplicação da camada anti-caldeamento no sanduíche para a laminação a quente.	64
Figura 23 -	Ilustração do defeito típico de laminação denominado “flecha”.	66
Figura 24 -	Ilustração do esquema de rotação dos conjuntos na laminação a quente.	66
Figura 25 -	Ilustração da identificação dos conjuntos na laminação a quente.	67
Figura 26 -	Ilustração do esquema completo de rotação dos conjuntos na laminação a quente.	68
Figura 27 -	Placa obtida após a laminação a quente.	71
Figura 28 -	Sequência de fotografias ilustrando a operação de laminação a quente.	72
Figura 29 -	Ilustração da operação de corte da placa laminada a quente para retirada da lâmina de urânio	73
Figura 30 -	Ilustração da abertura da placa laminada para retirada da lâmina de urânio.	73
Figura 31 -	Ilustração da radiografia da lâmina de urânio para inspeção e traçagem para o corte final. (A) Lâmina produzida a partir de tablete com vazios; (B) Lâmina produzida a partir de tablete sem vazios com vinco de laminação; (C) Lâmina produzida a partir de tablete sem vazios; (D) Imagem radiográfica para traçagem e corte na lâmina e (E) Scanner radiográfico	75
Figura 32 -	(A) Efeito de vazios no tablete na lâmina de urânio após a laminação (B) Lâmina de urânio oriunda de tablete sem vazios.	77
Figura 33 -	Fotografias ilustrando o procedimento de laminação a frio adotado pelo ANL e inicialmente testado neste trabalho.	79

Figura 34 -	Fotografia do laminador utilizado na laminação a frio.	80
Figura 35 -	(A) antes do tratamento químico; (B) após tratamento químico e (C) após 20 dias.	82
Figura 36 -	Esquema de inspeção dimensional das folhas finas laminadas a frio. E = espessura L = largura C = comprimento.	83
Figura 37 -	Ilustração da medição da espessura de uma folha fina de urânio metálico.	84
Figura 38 -	(A) Ilustração do efeito de vazios no tablete na folha fina de urânio após a laminação a frio e (B) Folha fina de urânio oriunda de tablete sem vazios.	85
Figura 39 -	Esquema de corte para análise micrográfica de defeitos típicos de folha fina de urânio metálico (A) com defeitos (B) sem defeitos.	86
Figura 40 -	Defeitos típicos observados em folhas finas acabadas de urânio metálico.	86
Figura 41 -	Corte transversal de uma folha fina de urânio metálico sem defeitos.	87
Figuras 42 -	Radiografias de folhas finas (A) e (B) apresentando trincas laterais nas bordas e defeitos na superfície; (C) folha fina sem defeitos.	88
Figura 43 -	Microestrutura de folhas finas a frio segundo o processo do ANL [63]. (A) sem tratamento térmico e (B) após têmpera β .	91
Figura 44 -	Esquema e ilustração do sistema utilizado para a realização do tratamento térmico na folha fina de urânio laminada a frio.	92
Figura 45 -	Ciclo de temperatura do forno para tratamento térmico de folhas finas de urânio metálico.	93
Figura 46 -	Microestrutura do urânio metálico. (A) Antes do tratamento térmico e (B) Após tratamento térmico.	94
Figura 47 -	Delineamento dos contornos de grão (A) Antes do tratamento térmico (B) Após o tratamento térmico.	95
Figura 48 -	Comparação entre as estruturas de grãos obtidas neste trabalho (A) e no processo desenvolvido pelo ANL [62,63] (B), após o tratamento térmico.	95

Figura 49 -	Comparação entre as estruturas de grãos obtidas neste trabalho (A) e no processo desenvolvido pelo ANL [62,63] (B), após a deformação a frio.	96
Figura 50 -	Distribuição do tamanho de grãos.	96
Figura 51 -	Distribuição da razão entre a maior e menor dimensão do grão (aspect ratio).	97
Figura 52 -	Estruturas de grãos obtidas no processo desenvolvido pelo ANL [62,63] com deformação a frio de 60% de redução em espessura. (A) deformada a frio. (B) após o tratamento térmico.	98
Figura 53 -	Distribuição do ângulo na qual está direcionada a maior dimensão do grão.	99
Figura 54 -	Difratogramas das amostras Lamfrio, Lftêmpera1e Lftêmpera2, TT5minutos e TTlongo Os picos de UO_2 são marcados na figura. Também estão marcados os picos referentes aos planos (111) e (113) da fase urânio alfa. Todos os picos não marcados são da fase urânio alfa e não foram marcados para não carregar a figura.	102
Figura 55 -	Sequência ilustrando o envelopamento da folha de urânio com a folha de níquel (cobre é usado como simulador). (A) corte da folha de níquel. (B) posicionamento da folha de cobre. (C) dobra do envelope. (D) fechamento do envelope.	105
Figura 56 -	Sequência ilustrando o envelopamento da folha de urânio com a folha de níquel. (A) corte da folha de níquel. (B) dobra do envelope. (C) fechamento do envelope.	106
Figura 57 -	Desenho esquemático dos tubos internos e externos.	109
Figura 58 -	Linha de referência para orientação na desmontagem do alvo após irradiação.	111
Figura 59 -	Ilustração da montagem manual de um alvo de folha fina de urânio [32].	112
Figura 60 -	Ilustração da montagem manual de um alvo de folha fina de urânio [36].	112
Figura 61 -	Ilustração da montagem manual de um alvo de folha fina de urânio [62].	113

Figura 62 -	Defeitos observados neste trabalho durante montagem manual de alvos de folha fina de urânio metálico. (A) Rasgo na folha fina de níquel e (B) Dobra na ponta da folha fina de urânio e níquel.	114
Figura 63 -	Ilustração da pré-conformação da folha fina envelopada na preparação para a montagem do alvo.	116
Figura 64 -	Ilustração da sequência para posicionamento da folha fina pré-conformada no rebaixo do tubo interno do alvo.	117
Figura 65 -	Sequência de operações ilustrando a montagem do alvo com a folha fina pré-conformada fixa no rebaixo do tubo interno do alvo. Note que não é necessária a pressão dos dedos do operador para fixar a folha fina no momento da inserção do tubo interno no tubo externo.	118
Figura 66 -	Vistas esquemáticas do dispositivo usado para a pré-conformação das folhas finas de urânio metálico.	120
Figura 67 -	Sequência de operações ilustrando a pré-conformação da folha fina envelopada, conferindo-lhe a forma circular.	121
Figura 68 -	Radiografias típicas de um alvo após a montagem. (A) cobre e (B) urânio metálico.	122
Figura 69 -	Fotografia ilustrando a folga, “gap de ar”, existente antes da etapa de consolidação do alvo.	123
Figura 70 -	Princípio da consolidação por expansor por tração [62].	126
Figura 71 -	Dispositivo de expansão construído para a consolidação de alvos por expansor por tração.	127
Figura 72 -	Fotografias ilustrando as etapas do processo de consolidação dos alvos.	129
Figura 73 -	Fotografia ilustrando o expansor de tração utilizado neste estudo.	130
Figura 74 -	Fotografia ilustrando a folga, “gap de ar”, inexistente após a etapa de consolidação do alvo	132
Figura 75 -	Radiografias típicas de um alvo após a consolidação. (A) cobre (B) urânio metálico.	133
Figura 76 -	(A), (B), e (C) Micrografia ilustrando um alvo de folha fina de urânio metálico após a consolidação.	134

Figura 77 -	Micrografias ilustrando um alvo, após a consolidação, usando cobre como simulador da folha fina de urânio metálico.	136
Figura 78 -	Micrografias ilustrando um alvo consolidado usando uma folha fina de urânio metálico defeituosa.	137
Figura 79 -	Micrografias de alvos consolidados fabricados pelo ANL [36].	138
Figura 80 -	Micrografias (A) e (B) de alvo fabricado pela técnica da hidroconsolidação [62], obtido da IAEA [71]	138
Figura 81 -	Dispositivo de selagem do alvo de folha fina de urânio metálico utilizado pelo ANL [23,62].	140
Figura 82 -	Dispositivo de selagem do alvo de folha fina de urânio metálico.	141
Figura 83 -	Etapas da preparação para a selagem do alvo de folha fina de urânio metálico.	142
Figura 84 -	Fotografias ilustrando a melhoria da qualidade da solda TIG durante o desenvolvimento da selagem dos alvos.	143
Figura 85 -	Fotografia ilustrando a qualidade da solda TIG obtida pelo ANL [23].	143
Figura 86 -	Fotografias ilustrando a qualidade da solda TIG obtida pelo Y-12 National Security Complex [72]. À esquerda uma solda de selagem considerada adequada. À direita uma solda de selagem insatisfatória.	144
Figura 87 -	Fotografia ilustrando a qualidade da solda obtida por feixe de elétrons [62].	144
Figura 88 -	(A) tubo soldado com solda tipo TIG; (B) tubo finalizado após usinagem.	145
Figura 89 -	Micrografias ilustrando a solda de selagem do alvo. A – Micrografia obtida neste estudo. B – Micrografia do ANL [62].	145
Figura 90 -	Container de teflon para transporte do alvo	147

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	18
2	OBJETIVO	22
3	REVISÃO DA LITERATURA	23
3.1	Processo de Fabricação de Alvos de Folhas Finas de Urânio Metálico	30
4	METODOLOGIA	35
4.1	Caracterização Química e Física	36
4.1.1	Caracterização Química	37
4.1.1.1	Espectrometria de Fluorescência de Raios x	37
4.1.1.2	Espectrometria de Emissão Óptica com Plasma de Argônio (ICP-OES)	37
4.1.1.3	Espectroscopia de infravermelho -LECO	37
4.1.2	Caracterização Física	38
4.1.2.1	Microscopia Óptica	38
4.1.2.2	Difração de Raios x	38
4.1.2.3	Gamagrafia	38
4.1.2.4	Tomografia	39
5	RESULTADOS E DISCUSSÃO	42
5.1	Caracterização Química	42
5.2	Especificação	44
5.3	Produção de UF₄	47
5.4	Produção de Lingotes de Urânio Metálico	48
5.5	Laminação a Quente dos Tabletes de Urânio	57
5.5.1	Teste Preliminar de Laminação a Quente	58
5.5.2	Definição do Procedimento de Laminação a Quente	62
5.6	Laminação a Frio das Lâminas de Urânio Metálico	76
5.7	Tratamento Térmico das Folhas Finas de Urânio	89
5.8	Montagem do Alvo	103
5.9	Consolidação do Alvo	123
5.10	Selagem do Alvo	139

6	CONCLUSÕES	148
7	SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS	150
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRAFICAS	151

1 INTRODUÇÃO

O radioisótopo mais utilizado em procedimentos diagnósticos em Medicina Nuclear é o ^{99m}Tc . A ampla utilização de radiofármacos com ^{99m}Tc está relacionada a diversos fatores. O mais importante deles é seu favorável modo de decaimento que inclui a emissão- γ , de energia monocromática de 140 keV, ideal para aquisição de imagens cintilográficas, uso na tomografia computadorizada por fóton único (SPECT – Single Photon Emission Computed Tomography) [1-6]. A esta característica ideal somam-se o curto tempo de meia vida de 6,01 horas, acompanhado por um, relativamente baixo, nível de radiação não penetrante. Atualmente, existem aproximadamente 30 desses compostos sendo utilizados em Medicina Nuclear, gerando um volume de exames correspondente a 80% da rotina clínica nas radiofarmácias hospitalares [1-6].

A medicina nuclear é uma especialidade médica que hoje possibilita as maiores chances de diagnóstico preciso e o tratamento de doenças relevantes, como o câncer; e também possui importantes aplicações em problemas cardíacos, avaliação das atividades cerebrais, entre outras. O mercado global de medicamentos nucleares foi estimado em US\$ 9,6 bilhões em 2016, com radioisótopos médicos respondendo por cerca de 80% e pronto para atingir US\$ 17 bilhões até 2021[1-6].

Mais de 40 milhões de procedimentos de medicina nuclear são realizados a cada ano no mundo e a demanda por radioisótopos está aumentando. Nos países desenvolvidos, um quarto da população mundial, cerca de 01 pessoa em cada 50 faz uso da medicina nuclear de diagnóstico a cada ano, e a frequência de terapia com radioisótopos é de cerca de um décimo disso. Mais de 10.000 hospitais em todo o mundo usam radioisótopos na medicina, e cerca de 90% dos procedimentos são para diagnóstico[1-6].

Nos EUA existem mais de 20 milhões de procedimentos de medicina nuclear por ano e na Europa cerca de 10 milhões. Na Austrália existem cerca de 560.000 por ano, dos quais 470.000 usando isótopos proveniente de reatores. O uso de radiofármacos no diagnóstico está crescendo a mais de 10% ao ano [1-6].

O Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) – Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) é o responsável por atender à demanda de 95% dos radiofármacos no Brasil. O início da produção foi em 1959, quando pela primeira vez se produziu ^{131}I no Brasil (diagnósticos da função tireoidiana), distribuído a clínicas médicas em São Paulo e no Rio de Janeiro. De 1960 a 1965 foram produzidos no IPEN radioisótopos para agricultura e para medicina, tais como ^{32}P , ^{51}Cr , ^{24}Na , ^{42}K e substâncias

marcadas com ^{131}I e ^{51}Cr . Atendendo demandas da classe médica, também foram produzidos ^{198}Au coloidal e ^{35}S [1-6].

O IPEN-CNEN/SP produz e distribui geradores de ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ desde 1981 com tecnologia própria, importando o ^{99}Mo . Desde 2009, o Brasil tem dificuldade no abastecimento de radioisótopos, utilizado em cerca de 80% dos procedimentos adotados pela medicina nuclear. Isso se deve a paralisação do reator canadense que abastecia todo o mercado brasileiro e 40% do mundo. Desde então, o país busca outros fornecedores, já que cerca de 2 milhões de procedimentos médicos utilizam os radiofármacos, sendo que 30% contam com cobertura do Sistema Único de Saúde (SUS). A situação, porém, criou a expectativa de se garantir ao Brasil independência na produção dos radioisótopos utilizados. O Reator Multipropósito Brasileiro (RMB) empreendimento da Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), tornará isto possível e que será desenvolvido na cidade de Iperó (SP) e deverá entrar em funcionamento em 2024. Ao todo, o RMB ocupará dois milhões de metros quadrados, onde além do reator terá a construção de laboratórios, aceleradores de partículas e lasers de alta potência. Também constará no local, laboratórios para o desenvolvimento e produção de radiofármacos. O Brasil está a caminho de se tornar autossuficiente na produção de radioisótopos e radiofármacos, substâncias essenciais na Medicina Nuclear [1-6].

Atualmente neste mercado, os principais riscos associados são decorrentes do fato de que alguns insumos serem importados, em especial o molibdênio-99 (^{99}Mo). Neste caso, a CNEN é dependente da capacidade de fornecimento do mercado mundial, dos preços praticados nesse mercado, bem como da variação cambial. A solução definitiva para esta dependência externa só virá quando for concluída a implantação do Reator Multipropósito Brasileiro (RMB), prevista para 2024 [1-7].

O RMB é a solução para garantir segurança no suprimento de radioisótopos para a produção de radiofármacos, através da nacionalização da produção do radioisótopo ^{99}Mo , garantindo segurança no fornecimento do gerador de tecnécio $^{99\text{m}}\text{Tc}$, com o pleno atendimento da demanda da população brasileira, e de todos os outros radioisótopos produzidos em reatores de pesquisa, que hoje são importados pelo Brasil, para aplicação médica em diagnóstico e terapia [1-7].

O grande desafio brasileiro é produzir o par de radionuclídeos ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ fazendo uso de alvos de urânio com baixo enriquecimento (LEU <20% ^{235}U). Isso não é simples, pois há necessidade de se aumentar a massa de urânio nos alvos em aproximadamente 5 vezes [1-7].

No Brasil, a demanda atual é de 320 geradores $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ por semana, representado 4 % da demanda mundial. Outros radioisótopos usados em terapia e em procedimentos de radiodiagnóstico são o ^{201}Tl , ^{123}I , ^{131}I , ^{111}I , $^{81\text{m}}\text{Kr}$, ^{18}F e ^{68}Ga . No caso de escassez de ^{99}Mo tais radioisótopos alternativos são utilizados, porém com algumas desvantagens importantes, como o ^{201}Tl , que produz imagens de pior qualidade e expõe o paciente a maiores doses de radiação, devido à sua meia-vida de 73 horas [1-7].

No Brasil os geradores têm sido importados. Atualmente, o suprimento mundial de ^{99}Mo está centralizado na operação de apenas cinco reatores de pesquisas, os quais estão com idade ao redor de 40 anos e, por esse motivo, não estão em condições confiáveis de operação. Recentemente, o desligamento do reator NRU canadense (National Research Universal Reactor) desencadeou uma escassez global de radioisótopos medicinais, gerando uma situação particularmente problemática sob o ponto de vista médico. Essa recente crise no fornecimento de ^{99}Mo afetou profundamente a distribuição de geradores $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ no Brasil e incentivou o lançamento do projeto RMB – Reator Multipropósito Brasileiro, ocorrido em 03 de setembro de 2008, o qual foi recentemente aprovado pela Comissão de Monitoramento e Avaliação (CMA) do Plano Plurianual do Governo, conforme publicação no Diário Oficial da União de 1 de março de 2011, no valor de R\$ 850 milhões. O Reator Multipropósito Brasileiro, tem o objetivo de tornar o país independente na produção de isótopos radioativos para medicina. O reator, de potência 30 megawatts, terá potência seis vezes maior do que a potência do principal reator de pesquisas produtor de radioisótopos em operação no Brasil, o reator IEA-R1 do IPEN. Para garantir o sucesso do Projeto RMB, será necessário o desenvolvimento da tecnologia de fabricação de alvos de irradiação para produção do ^{99}Mo por fissão [1-7].

O ^{99}Mo pode ser produzido por meio de reatores nucleares ou por aceleradores de partículas, porém a produção comercial é feita apenas em reatores. No caso de reatores, o ^{99}Mo pode ser obtido por dois métodos: pela ativação neutrônica de ^{98}Mo (natural ou enriquecido) ou através da fissão do ^{235}U . O principal método de produção de ^{99}Mo é a fissão de urânio-235 (^{235}U) em reatores de pesquisa. Esses processos podem ser subdivididos em dois grupos:

- Processo $^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$
- Processo $^{235}\text{U} (n, f) ^{99}\text{Mo}$

Para o empreendimento RMB foi definido a reação nuclear, que proverá ^{99}Mo com a qualidade e atividade específica necessárias para o preparo dos geradores de $^{99}\text{Mo}-^{99\text{m}}\text{Tc}$, a fissão nuclear de ^{235}U . A separação e purificação do ^{99}Mo produzido por fissão do ^{235}U

tem duas rotas principais. A primeira fazendo uso da dissolução alcalina e outra usando o processo de dissolução ácida. Usualmente os alvos usados na rota alcalina são fabricados na forma de pequenas placas que contém um núcleo de dispersão UAl_x-Al . Para a rota ácida os alvos são a base de folhas finas de urânio metálico[1,2,8].

O alvo a base da dispersão UAl_x-Al é produzido por meio da consagrada técnica de montagem núcleo-moldura-revestimentos (*“picture-frame technique”*), onde um núcleo fabricado pela técnica de metalurgia do pó, contendo pós de UAl_x e de Al metálico, é encapsulado por alumínio, sendo isolado do ambiente do reator por todos os lados. O IPEN desenvolveu o processo de fabricação desse tipo de alvo, com apoio da Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP) por meio do Projeto 2011/13849-9. Esse é o alvo com baixo enriquecimento isotópico - LEU usado na rota alcalina, e está limitado a uma massa de 1,4 g de ^{235}U por alvo [1-8].

Tendo em vista o potencial tecnológico para futura utilização comercial do alvo tubular a base de folha fina de urânio metálico para produção de ^{99}Mo e a escassa informação disponível na literatura sobre a tecnologia de fabricação desse tipo de alvo, o presente estudo tem como objetivo o conhecimento e o domínio da tecnologia de fabricação dos alvos de folhas finas de urânio metálico.

Nos capítulos seguintes apresentaremos o objetivo deste projeto de pesquisa, uma breve revisão da literatura, o procedimento experimental, a discussão dos resultados e as conclusões.

2 OBJETIVO

O objetivo deste trabalho é desenvolver e disponibilizar ao Brasil a tecnologia de fabricação de alvos tubulares de folhas finas de urânio metálico para produzir ^{99}Mo , identificando as dificuldades tecnológicas inerentes a esse processo de fabricação, viabilizando com isso o aumento da capacidade de produção em relação à produtividade obtida com a irradiação de alvos a base da dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$. Os parâmetros de fabricação específicos para a produção desse tipo de alvo não estão publicados na literatura aberta, caracterizando-se, portanto, como uma contribuição tecnológica inédita.

3 REVISÃO DA LITERATURA

Um dos radioisótopos mais utilizados no estudo de diversas funções do organismo humano é o ^{99m}Tc , produto do decaimento do ^{99}Mo . Este radioisótopo pode ser combinado quimicamente com diversos complexos orgânicos, os quais avaliam disfunções cardíacas, hepáticas, ósseas e cerebrais, entre outras [1-6].

O ^{99}Mo é caracterizado pela sua meia-vida de 66 horas, o que o torna muito conveniente em termos de distribuição via geradores $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$. Depois de uma irradiação de cerca de 7 dias e um resfriamento por um período de 12 horas, os alvos irradiados são acondicionados em recipientes especiais para proteção contra radiação e são enviados às instalações de processamento para fabricação dos geradores $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ [1-6].

O método utilizado para produzir ^{99}Mo em larga escala é através da fissão do ^{235}U incorporado nos chamados alvos de irradiação. Esses alvos são irradiados em reatores de pesquisa tipo Materials Testing Reactor (MTR) e depois são processados radio quimicamente para se extrair e purificar o ^{99}Mo do restante dos produtos de fissão [1-2].

Existem apenas cinco reatores de pesquisas envolvidos na produção de ^{99}Mo em escala industrial. O reator canadense National Research Universal Reactor (NRU - 135 MW, Chalk River, 1957), o reator holandês High Flux Reactor (HFR - 45 MW, Petten, 1961), o reator belga Belgian Reactor 2 (BR2 - 125 MW, Mol, 1961), o reator francês OSIRIS (70 MW, Saclay, 1966) e o reator sul africano South Africa Fundamental Atomic Research Installation (Safari-1 - 20 MW, Pelindaba, 1965) [2-3].

O ^{99}Mo deve ser extraído do alvo irradiado, operação que é realizada por quatro instalações de processamento principais. No Canadá, a Atomic Energy of Canada Limited (AECL) separa o ^{99}Mo dos alvos irradiados em Chalk River e a NORDION executa a purificação em Kanata. Na Holanda, todo o processamento é realizado pela COVIDIEN em Petten. Na Bélgica, o National Institute for Radioelements (IRE) é o responsável pela produção, em Fleurus. Na África do Sul, o processamento é realizado pela South African Nuclear Energy Corporation (NECSA), em Pelindaba. O ^{99}Mo é então processado para a produção dos geradores $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$, o que é realizado por diversas companhias, das quais destacam-se a COVIDIEN holandesa, antiga Mallinckrodt, a Lantheus Medical Imaging americana, a GE Healthcare inglesa e a IBA Molecular francesa. Os geradores são fornecidos a hospitais ou centros de radiofarmácia e podem ser usados por apenas uma semana, devido à perda de atividade de 1% por hora. Em circunstâncias normais, essa cadeia de produção e fornecimento garante a disponibilidade mundial de ^{99m}Tc diariamente

nos 365 dias do ano, numa base de entrega semanal de geradores. Nessa cadeia, cada parceiro deve atuar eficientemente para assegurar o fornecimento ininterrupto e pontual do produto sob sua responsabilidade. Contudo, essa cadeia tem se mostrado vulnerável, resultando em graves crises no fornecimento, principalmente no seu ponto central, os reatores de pesquisas produtores de ^{99}Mo [2,3].

Todos os cinco principais reatores de pesquisas produtores de ^{99}Mo são antigos, com mais de 40 anos de uso, além de não serem dedicados exclusivamente à produção de ^{99}Mo . Alguns poucos reatores atendem a demandas regionais, como o reator australiano Open Pool Australian Light-water Reactor (OPAL – 20 MW), funcionando também como “backups” em caso de crise de fornecimento de ^{99}Mo . Devido à antiguidade dos principais reatores produtores de ^{99}Mo , eles estão sujeitos a cada vez mais frequentes e longas paradas para manutenção, impactando de forma cada vez mais aguda o fornecimento desse importante radioisótopo [4].

Em 2008 ocorreu uma grave crise no fornecimento de ^{99}Mo devido à parada simultânea de 4 dos principais reatores produtores. Além disso, na mesma época ocorreu um incidente no IRE, um dos responsáveis pelo processamento dos alvos irradiados, no qual houve vazamento de ^{131}I , o que paralisou a operação da instalação. Repentinamente, só um dos principais reatores, o Safari-1 da África do Sul, manteve-se disponível [3-6].

Devido a esta crise, centenas de milhares de pacientes não puderam realizar procedimentos de diagnóstico por imagem com base no $^{99\text{m}}\text{Tc}$. A maioria dos pacientes teve seus procedimentos adiados ou cancelados. Esse foi o início da crise do ^{99}Mo [3-6].

Nova crise ocorreu em 2010, quando três dos cinco reatores produtores de ^{99}Mo (NRU, HFR e OSIRIS) ficaram fora de operação para manutenção. Espera-se, ainda, uma nova crise no fornecimento mundial de ^{99}Mo , baseando-se nas informações sobre as paradas desses reatores para manutenção, já programadas [3-6].

Da análise da crise, conclui-se que a comunidade médica mundial está atualmente enfrentando uma “crise de radioisótopos médicos”, gerada pela fragilidade da cadeia produtiva do ^{99}Mo , fundamentada principalmente na idade avançada dos atuais reatores de pesquisa produtores de ^{99}Mo . A coincidência de problemas técnicos que afetaram (ainda afetam e continuarão a afetar) simultaneamente vários reatores mostra a fragilidade da estrutura mundial para a produção de isótopos médicos. Os reatores de pesquisa no mundo estão envelhecendo, e a construção de novos reatores não compensa economicamente o encerramento da atividade dos velhos reatores em operação, o que torna a crise difícil de ser resolvida, acenando para seu agravamento, principalmente quando se considera o

aumento da demanda. As tendências demográficas e médicas sugerem que, pelo menos no futuro próximo, a demanda global por ^{99m}Tc crescerá a uma taxa anual em torno de 10% à medida que esses procedimentos de diagnóstico por imagem expandirem para novos mercados, como os da Ásia [1,3-6].

O Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Autarquia da Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) Associada à Universidade de São Paulo (USP), é quase que isoladamente o responsável para atender à demanda de radiofármacos no Brasil. Quase a totalidade dos radiofármacos utilizados em medicina nuclear é proveniente do Instituto. O Centro de Radiofarmácia do Instituto é o responsável pela produção dos radiofármacos.

Em 1981 o IPEN anunciou a produção de ^{99m}Tc com tecnologia própria. A demanda brasileira para esse radiofármaco tem crescido significativamente no Brasil, alcançando hoje mais de 320 geradores por semana (450 Ci), o que corresponde a 4 % do consumo de ^{99}Mo , com um custo de importação de US\$ 20 milhões por ano, situação esta correspondente ao ano de 2009 [5-7]. A maioria da matéria prima (^{99}Mo) vem do Canadá, devido à baixa potência do reator IEA-R1, insuficiente para produzir as quantidades necessárias do radioisótopo primário ^{99}Mo .

A estratégia brasileira para superar a crise do ^{99}Mo baseia-se em ações de curto, médio e longo prazo [5-7]. A ação em curto prazo foi a compra de ^{99}Mo da Argentina e da África do Sul (Safari-1), além de distribuir geradores produzidos pela Bélgica e Israel. O projeto em médio prazo consiste na produção de ^{99}Mo por ativação com nêutrons (reação n,γ) e distribuição do ^{99m}Tc para clínicas de São Paulo. A proposta é separar o ^{99}Mo por meio da técnica de extração por solventes. As perspectivas em 2011 dessa estratégia a médio prazo dependiam do aumento da potência do reator IEA-R1m de 4 para 5 MW. O projeto de longo prazo prevê a produção de ^{99}Mo por meio de fissão nuclear do ^{235}U usando alvos de irradiação. Essa estratégia depende da construção do novo reator nuclear, o RMB, e da disponibilidade da tecnologia de fabricação dos alvos. Duas rotas diferentes estão sendo estudadas, a rota convencional de dissolução básica de alvos a base de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$, e o método Cintchem modificado, que emprega a dissolução ácida de alvos de folha fina de urânio metálico [9].

No passado, o IPEN desenvolveu a rota para produção de ^{99}Mo por meio da ativação por nêutrons de alvos de Mo natural no reator IEA-R1 através da reação nuclear $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$. Contudo, essa tecnologia é limitada, principalmente devido à baixa atividade específica do ^{99}Mo produzido por essa rota, na qual apenas uma pequena fração

do isótopo ^{98}Mo (ocorre 24,13% na natureza) é convertida a ^{99}Mo . Esse fato inviabiliza o atendimento da demanda brasileira com a produção doméstica por essa via, tornando o Brasil dependente da importação de ^{99}Mo produzido por fissão [7,10].

Com a crise mundial de 2008 no fornecimento desse importante radioisótopo, o IPEN decidiu produzir o ^{99}Mo pela rota de fissão nuclear e a CNEN realizou em 3 de setembro de 2008 a reunião de abertura para o Projeto RMB. O RMB será um reator tipo piscina aberta com potência prevista de 30 MW, com circuito de refrigeração forçada no primário. O núcleo será refrigerado e moderado com água leve, utilizando berílio e água pesada como refletores. O núcleo será compacto para atingir um fluxo de nêutrons superior a $2 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \times \text{s}$. Será construído em Iperó, cidade próxima à cidade de São Paulo [10].

O projeto inclui o desenvolvimento de alvos de irradiação, já que a decisão é produzir ^{99}Mo por fissão, que é o processo mais eficiente, adotado ao redor do mundo. O Projeto RMB prevê a produção de 1000 Ci de ^{99}Mo por semana, suficiente para atender à atual demanda brasileira, de 450 Ci semanais, e suficiente para enfrentar o crescimento contínuo da demanda por muitos anos [10].

Para a produção de ^{99}Mo por meio de fissão do ^{235}U é necessário que o ^{235}U esteja acondicionado de forma hermética num alvo de irradiação, de forma que o ambiente do reator não seja contaminado. O alvo, por sua vez, é inserido no caroço do reator por meio de um dispositivo de irradiação. Após a irradiação, o alvo é retirado do reator e é processado quimicamente para a retirada do ^{99}Mo produzido na fissão nuclear. Esse processamento depende de uma etapa inicial de dissolução do alvo e, depois, da separação e purificação do ^{99}Mo [10].

Existem, basicamente, duas rotas de processamento químico, uma delas usando dissolução alcalina e outra usando dissolução ácida. Usualmente os alvos usados na rota alcalina são fabricados na forma de pequenas placas que contém um núcleo de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$. Os alvos usuais adotados na rota ácida são a base de UO_2 . Em ambos os casos o urânio altamente enriquecido (High Enriched Uranium - HEU 93% em ^{235}U) é utilizado, para maximização do rendimento na produção de ^{99}Mo [10].

Visando a minimização do uso do urânio altamente enriquecido, o qual possibilita a fabricação de bombas, foi criado pelos Estados Unidos o Programa Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR) [11], reeditado recentemente com o nome de Programa Global Threat Reduction Initiative-Reactor Conversion Program (GTRI) [12]. Este programa tem o objetivo de converter reatores de pesquisas americanos e internacionais que usam urânio altamente enriquecido HEU, e também fábricas de

radioisótopos, para usar urânio de baixo enriquecimento (Low Enriched Uranium -LEU), com menos do que 20% em ^{235}U , o qual não pode ser usado para a fabricação de artefatos explosivos [11,12].

Iniciou-se, então, esforços, liderados pelos Estados Unidos, no sentido de substituir o urânio HEU por urânio LEU na fabricação dos alvos de irradiação usados para a produção de ^{99}Mo [1]. A filosofia é não prejudicar o rendimento do processo normalmente adotado quando o urânio altamente enriquecido é usado, assim como a qualidade do produto final. A única forma de obter isso é não diminuir o teor total de ^{235}U presente no alvo, o que implica em aumentar 5 vezes a quantidade de urânio de baixo enriquecimento presente [12,13].

O alvo a base da dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$ é produzido por meio da consagrada técnica de montagem núcleo-moldura-revestimentos (“picture-frame technique”) [13-15], na qual um núcleo fabricado por metalurgia do pó, contendo pós de UAl_x e de Al metálico, é encapsulado por alumínio, sendo isolado do ambiente do reator por todos os lados. A forma final dos alvos de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$ são pequenas placas de alumínio contendo, em seu interior, um núcleo de dispersão, onde partículas de UAl_x que sofrerão fissão estão “envolvidas” por uma matriz contínua de alumínio. Os alvos de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$ fabricados com urânio de baixo enriquecimento LEU possuem uma densidade de $2,9 \text{ g U/cm}^3$ e contém tipicamente uma massa de 1,4 g de ^{235}U . A Argentina iniciou o desenvolvimento desse tipo de alvo em 2000 [16,17] e iniciou a produção de ^{99}Mo com alvos de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$ em 2002. A Australian Nuclear Science and Technology Organisation (ANSTO) da Austrália também utiliza alvos LEU de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$, irradiados no seu reator OPAL, de projeto Argentino. Esse é o alvo LEU usado na rota alcalina, e está limitado a uma massa de 1,4 g de ^{235}U por alvo. Recentemente o Brasil também desenvolveu essa tecnologia [8].

Na rota ácida, a estratégia é substituir o UO_2 altamente enriquecido, normalmente usado como material fissil (filmes de UO_2) depositado nas paredes internas de cilindros de aço inoxidável [18], por folhas finas de urânio metálico com baixo enriquecimento. Esse tipo de alvo tem sido desenvolvido pelo Argonne National Laboratory (ANL) em cooperação com, principalmente, a Indonésia [19]. Os alvos de folhas finas consistem de uma folha fina de urânio metálico, com $125 \text{ }\mu\text{m}$ de espessura, a qual é embrulhada com folhas de níquel e encapsulada entre tubos concêntricos de alumínio [20,21].

Os alvos de folha fina de urânio metálico apresentam diversas vantagens importantes em comparação com os alvos a base da dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$ comumente usados para a fabricação de ^{99}Mo por fissão nuclear, enumeradas abaixo [22]:

- 1) A alta densidade do urânio metálico, de cerca de 19 g/cm^3 , possibilita a incorporação por alvo de cerca de $4 \text{ g } ^{235}\text{U}$, muito superior à capacidade de incorporação de ^{235}U do alvo tipo dispersão. Essa carga de ^{235}U possibilita, portanto, quase triplicar a produtividade de ^{99}Mo numa mesma operação de irradiação;
- 2) A densidade de um alvo de dispersão de UAl_x é no máximo $2,9 \text{ g U/cm}^3$. A densidade de uma folha de urânio metálica é aproximadamente 19 g U/cm^3 . Como consequência, um alvo de folha fina de urânio metálico pode ser mais compacto, economizando o espaço disponível no reator para irradiação;
- 3) Assumindo-se um alvo de folha fina com a mesma massa de urânio de um alvo de dispersão, o tempo necessário para a dissolução do alvo a base de folha fina é significativamente menor. Como a folha fina é removida do alvo antes da dissolução, apenas ela deve ser dissolvida no primeiro estágio do processo de produção de ^{99}Mo ;
- 4) Assumindo-se um alvo de folha fina com a mesma massa de urânio de um alvo de dispersão, o volume de rejeito líquido de alta atividade gerado na dissolução do alvo de folha fina é cerca de 15 vezes menor, devido ao fato de que apenas a folha fina é dissolvida. Como o alvo é desmontado antes da dissolução, toda a parte de alumínio do alvo de folha fina não precisa ser dissolvida e é descartada como rejeito sólido de baixa atividade;
- 5) O custo específico (R\$/g) do alvo de folha fina é menor do que o custo específico do alvo a base da dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$;

Desde 1995, o ANL vem cooperando com a Indonésia, Indonesia's National Atomic Energy Agency – Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN) para desenvolver a produção de ^{99}Mo usando alvos de folhas finas de urânio LEU, visando a substituição da produção usando UO_2 altamente enriquecido. As atividades desenvolveram-se com o Nuclear Fuel Technology Center (PTBN) para estudar o projeto e a fabricação dos alvos, com o Research Reactor Technology Center para estudar os aspectos da irradiação, e com o Radioisotope and Radiopharmaceutical Development Centre para estudar a produção do ^{99}Mo por meio da rota de dissolução ácida. Portanto, um programa abrangente. O reator usado para a irradiação é o reator Reaktor Serba Guna-Gerrit Augustinus Siwabessy (RSG GAS) de Serpong, com uma potência instalada de 15 MW. Depois da irradiação, o alvo de

folha fina é desmontado numa célula-quente e é dissolvido em ácido nítrico [23,24]. Os alvos de folhas finas de urânio LEU já estão sendo produzidos comercialmente pela Indonésia com autorização do DOE americano, e BATAN tem produzido 7 Ci por semana para consumo interno, 5 a 10 Ci por semana para a Malásia, 20 Ci por semana para o Japão, 5 Ci por semana para Bangladeshi e 5 Ci por semana para o Vietnã [25,26].

A International Atomic Energy Agency (IAEA) da Organização das Nações Unidas (ONU) apoiou o desenvolvimento desse tipo de alvo criando em 2005 o Projeto “Coordinated Research Project (CRP) on Developing Techniques for Small-Scale Indigenous Production of Mo-99 using LEU or Neutron Activation”, com participação do Chile, Egito, Indonésia, Paquistão, Polônia e Romênia. A experiência adquirida pelo ANL e BATAN na fabricação dos alvos de folhas finas, na sua irradiação e no seu posterior processamento químico foi transferida aos países participantes [27].

Os Estados Unidos é o maior mercado mundial de ^{99}Mo (~50%) mas não possui produção, apesar dos diversos acordos de cooperação técnica firmados com várias instituições externas. Preocupados com as crises mundiais de fornecimento de ^{99}Mo , os americanos iniciaram atividades objetivando o desenvolvimento da produção em pequena escala de ^{99}Mo , as quais estão em fase final [28]. Em Junho/2014, o grupo de engenharia química do ANL apresentou resultados demonstrando a tecnologia de dissolução de alvos de folhas finas irradiados, com recuperação de mais de 98% do ^{99}Mo produzido. Além disso, um grande projeto da NNSA/OGTR (National Nuclear Security Administration/Office of Global Threat Reduction), envolvendo o ANL, o Oak Ridge National Laboratory (ORNL), o Y-12 (National Security Complex), e a Universidade de Missouri, está finalizando o processo de qualificação dos alvos de folhas finas fabricados no Y-12 por meio de irradiação nos reatores americanos High Flux Isotope Reactor (HFIR) e Missouri University Research Reactor (MURR) [28].

Observa-se que uma grande experiência acumulada sobre irradiação dos alvos de folha fina de urânio, com irradiações nos reatores da Australian Nuclear Science and Technology Organization (ANSTO), BATAN, Comissão de Energia Atômica da Argentina (CNEA) e reatores de pesquisas americanos (HFIR e MURR) [28].

Todo esse histórico demonstra que a tecnologia dos alvos de folhas finas de urânio metálico deverá dominar o mercado da produção de ^{99}Mo por fissão nuclear no futuro, tendo em vista a demonstração da viabilidade tecnológica e as importantes vantagens técnicas e econômicas apresentadas [28].

3.1 Processo de Fabricação de Alvos de Folhas Finas de Urânio Metálico

Até 1989, a Cintichem, em Tuxedo, NY, produziu cerca de metade do fornecimento mundial de ^{99}Mo usando alvos constituídos por UO_2 altamente enriquecido depositado no interior de tubos de aço inoxidável. O alvo padrão "Cintichem" contém até 25 g de UO_2 , ou até 20 g de ^{235}U . Devido às preocupações de que a espessura da camada depositada de UO_2 não poderia ser aumentada o suficiente para produzir um alvo LEU com um conteúdo equivalente de ^{235}U , iniciou-se o desenvolvimento de urânio metálico eletrodepositado [29]. No entanto, uma vez que o objetivo era o desenvolvimento de um alvo que poderia ser fabricado usando métodos "de baixa tecnologia", iniciou-se o desenvolvimento de um conceito usando folhas de urânio metálico [21,30].

Nos primeiros desenvolvimentos, uma folha fina ($\sim 130\text{ }\mu\text{m}$ de espessura) de urânio metálico era intercalada entre tubos internos e externos ligeiramente cônicos (com uma conicidade de cinco milésimo). O tubo interno era fabricado com um material de maior coeficiente de expansão térmica do que o material do tubo externo. Esta expansão térmica diferencial ajudava a manter um bom contato térmico entre a folha e os tubos. O zircônio era usado para o tubo externo, e foram testados o alumínio, o magnésio e o aço inoxidável como material do tubo interno no projeto de expansão térmica diferencial [31].

A montagem do alvo era realizada laminando a folha de urânio e colocando-a sobre o tubo interno, inserindo-se, em seguida, o tubo interno e a folha no tubo externo. Uma prensa era usada para encaixar firmemente a folha entre os tubos cônicos interno e externo. Em seguida, o tubo era fechado por solda nas extremidades e o conjunto era preenchido com gás de hélio e selado. A maior contração do tubo interno no resfriamento após a irradiação facilitava a desmontagem, que era realizada cortando-se as duas extremidades e usando uma prensa para empurrar o tubo interno e a folha de urânio para fora do tubo externo [31].

Um critério básico de projeto era permitir a separação da folha irradiada dos tubos, de modo que apenas a folha poderia ser dissolvida para recuperar o molibdênio, minimizando assim o volume de efluentes de alta atividade [31].

Um desses primeiros alvos, composto um tubo externo de zircônio e um tubo interno de alumínio, foi irradiado e examinado em 1995 no reator RSG-GAS de BATAN-Indonésia, operando a 22,5 MW. Os exames de pós-irradiação foram realizados na instalação de células quentes de BATAN, numa pesquisa cooperativa entre BATAN e o ANL [31].

Portanto, desde essa época, o ciclo do alvo de folha fina de urânio metálico começa na fabricação da folha fina e termina na desmontagem do alvo após a irradiação, quando se iniciam os processos químicos de extração do ^{99}Mo produzido na fissão nuclear. O processo de fabricação do alvo não foi basicamente alterado desde essa época, incorporando-se algumas simplificações [31].

O processo básico para produzir as folhas finas de urânio metálico usadas neste tipo de alvo é baseado em laminação a quente e a frio [32,33] ou em lingotamento contínuo [34,35]. O processo de produção de folhas finas de urânio metálico por lingotamento contínuo, desenvolvido pela Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) [34,35], é economicamente atraente, mas produz folhas finas com irregularidades superficiais e variações de espessura. Tais imperfeições têm impedido a qualificação desse tipo de folhas finas para uso comercial.

Estão envolvidos no desenvolvimento da tecnologia de fabricação de alvos de folhas finas de urânio, em cooperação com o ANL/Estados Unidos [36], principalmente a Indonésia [32], o Chile [33], o Paquistão [37], os Estados Unidos [38] e a Coréia do Sul [34,35,39].

Não existem publicados na literatura aberta os procedimentos detalhados adotados na fabricação desse tipo de alvo. O processo de fabricação é descrito de forma geral, consistindo o alvo numa folha fina de urânio metálico enriquecido a 20% em ^{235}U , com espessura tipicamente de 125 μm , embrulhada com uma folha de níquel com espessura de 15 μm , a qual atua como barreira para os produtos de fissão. O conjunto é montado entre dois tubos de alumínio (atualmente não cônicos) que funcionam como revestimento durante a irradiação. Após a irradiação, o alvo é desmontado por meio de seu corte na direção longitudinal, separando-se a folha fina de urânio metálico para sua dissolução e recuperação do ^{99}Mo produzido na fissão nuclear do ^{235}U . O alumínio usado como revestimento é descartado como rejeito de baixa atividade. A separação da folha fina de urânio metálico do revestimento antes do processamento químico reduz o tempo de processamento e o volume de rejeito líquido, quando comparado com o processo adotado no processamento do alvo de dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$.

A Figura 1 apresenta um fluxograma geral do processo de fabricação do alvo de folha fina de urânio metálico [23,24,32,38]. O processo de fabricação envolve a laminação de um tablete de urânio metálico, o qual é encapsulado em uma estrutura de aço 1020 para evitar oxidação. Evita-se o caldeamento entre o urânio e o aço 1020 por meio de uma solução de óxido de ítrio em álcool. O conjunto é laminado a quente em temperatura de

625 °C e é desmontado, retirando-se a folha de urânio após o resfriamento e desmontagem da estrutura de aço [23,32]. A folha obtida é montada em outra estrutura, desta vez de aço inoxidável, e é laminada a frio até a obtenção de uma espessura de 125 µm [38]. Na literatura não são informados detalhes do esquema de passes de laminação.

A folha fina obtida é embrulhada numa folha de níquel, a qual funciona como barreira de produtos de fissão e proteção contra caldeamento com o alumínio, e é inserida manualmente entre dois tubos de alumínio concêntricos. No tubo interno é usinado um rebaixo para acomodação da folha de urânio, e este é inserido no interior do tubo externo [23,32].

Para garantir um contato térmico suficiente entre a folha fina e o alumínio, necessário para garantir a extração do calor gerado na fissão pela refrigeração no dispositivo de irradiação, o tubo interno é deformado plasticamente na direção radial, por meio de um dispositivo especial, denominado “drawing press machine” e traduzido para o português como “expansor mecânico” [23,32].

A operação final de fabricação é a soldagem das extremidades do alvo para garantir o isolamento da folha fina de urânio do ambiente do reator. Isso é realizado por meio de soldagem Tungsten Inert Gas (TIG) com corrente alternada. Um dispositivo especial de soldagem é necessário para girar o alvo tubular no arco de solda para a realização da delicada solda circular. A estanqueidade é verificada e o alvo montado é decapado para limpeza final [23,32].

O alvo tubular de folha fina de urânio metálico é posicionado no dispositivo de irradiação e irradiado no reator. Após a irradiação o alvo é transferido para as células quentes e processado para extração do ^{99}Mo produzido na fissão nuclear. As etapas pós-irradiação são a desmontagem do alvo, a qual é realizada por uma máquina de corte que corta na seção longitudinal e nas seções das extremidades do alvo, o que possibilita a extração da folha fina de urânio embrulhada na folha de níquel. A folha fina é dissolvida juntamente com o níquel em ácido nítrico e sucessivas operações químicas são realizadas nos centros de radiofarmácia até a obtenção do gerador de tecnécio-99m, que é transferido aos hospitais e clínicas especializadas para uso pela população.

Figura 1 – Fluxograma geral do processo de fabricação de alvos de folhas finas de urânio metálico.

Fonte: autor da tese

O uso desse tipo de alvo está atualmente em fase de desenvolvimento, não sendo, ainda, produzido industrialmente. Está em andamento um trabalho realizado pela Universidade do Missouri, pelo ANL e pelo Y-12 objetivando o desenvolvimento de especificações e de um método de fabricação e de controle de qualidade para a produção de alvos circulares de folha fina de urânio metálico em larga escala [40,41].

Também está em andamento trabalhos objetivando o desenvolvimento da tecnologia de fabricação de um alvo plano a base de folhas finas [42,43]. As atividades em andamento sobre alvos de irradiação para produção de ^{99}Mo por fissão nuclear indicam uma forte tendência para a substituição da tecnologia de alvos a base de dispersão pela tecnologia da folha fina de urânio metálico.

4 METODOLOGIA

Com base nas informações obtidas da literatura sobre o processo de fabricação de alvos de folhas finas de urânio metálico, apresentadas no item 3, foi proposto o fluxograma de processo de fabricação apresentado na Figura 2.

Figura 2 – Fluxograma de fabricação proposto

Cada uma das etapas do processo proposto foi estudada, sendo que alguns detalhamentos experimentais, os resultados obtidos e sua discussão estão apresentados no item 4, intitulado metodologia, no item 5 é fornecido um panorama geral dos resultados obtidos, apontando-se as dificuldades encontradas e as atividades ainda necessárias para tornar o processo desenvolvido neste trabalho inteiramente operacional e aplicável.

4.1 Caracterização Química e Física

A figura 3 apresenta o fluxograma das etapas de caracterização química e física que foram utilizadas no desenvolvimento deste projeto de pesquisa.

Figura 3: Fluxograma de Caraterização Química e Física

Fonte: autor da tese

4.1.1. Caracterização Química

4.1.1.1 Espectrometria de Fluorescência de Raios x

É uma técnica analítica instrumental que permite identificar e quantificar os elementos químicos a partir do boro (5 B) ao urânio (92 U) em uma amostra.

Os espectros dos elementos químicos analisados, foram obtidos no espectrômetro de fluorescência de raios x por dispersão de comprimento de onda (WDXRF), modelo RIX-3000 da RIGAKU, no Laboratório de Fluorescência de Raios X do Centro de Química e Meio Ambiente (COMA) do IPEN/CNEN-SP.

4.1.1.2 Espectrometria de Emissão Óptica com Plasma de Argônio (ICP-OES)

Essa técnica foi utilizada para a determinação de impurezas nos materiais. Para a análise utilizou-se o espectrômetro ICP-OES equipamento da marca SPECTRO modelo ARCOS do Centro de Química e Meio Ambiente (COMA) do IPEN/CNEN-SP.

4.1.1.3 Espectroscopia de infravermelho - LECO

A determinação de Teor de carbono residual foi realizada pela técnica de espectroscopia de infravermelho (CS400, LECO) do Centro de Química e Meio Ambiente (COMA) do IPEN/CNEN-SP.

Este tipo de equipamento, acoplado a um forno de radiofrequência, faz uso de radiação infravermelho para determinar, por absorção de radiação, a presença de carbono e enxofre nos gases liberados durante a combustão direta da amostra analisada

4.1.2. Caracterização Física

4.1.2.1 Microscopia Óptica

As amostras da folha fina de urânio metálico foram analisadas por meio de microscopia óptica. Para a análise metalográfica, as amostras foram embutidas em resina epóxi e lixadas consecutivamente com lixas de gramatura 320, 600, 1200 e 2400. Em seguida, as amostras foram polidas com pasta de diamante com gramatura de 1 μm , seguido de polimento em sílica coloidal de 0,06 μm por 8 horas. As amostras foram observadas, em microscópio óptico marca Zeiss, modelo Axio Imager M2m, utilizando contraste de interferência diferencial (DIC - differential interference contrast), no Centro de Combustível Nuclear (CCN) do IPEN/CNEN-SP.

4.1.2.2 Difração de Raios x

As amostras laminadas de folhas finas de urânio metálico foram caracterizadas por difração de raios x. As medidas foram realizadas utilizando a radiação Cu-K α , com faixa angular de 20° a 90°, passo de 0,02° e tempo de contagem de 3 segundos por passo, equipamento fabricado pela Rigaku, modelo Multiflex operando a 40 kV e 20 mA e equipado com monocromador de grafite. A identificação das fases foi feita utilizando o software Crystallographica Search-Match®, onde os dados obtidos eram comparados às fichas do banco de dados ICSD (Inorganic Crystal Structure Database). A caracterização das amostras foi realizada no Centro de Ciência e Tecnologia de Materiais (CCTM) do IPEN/CNEN-SP.

4.1.2.3 Gamagrafia

Os ensaios de gamagrafia foram realizados na empresa METALTEC, onde utilizou-se o equipamento QSA GLOBAL (AEA TECHNOLOGY) Modelo 880 SIGMA.

A Gamagrafia é uma modalidade de radiografia industrial. Neste caso, utiliza-se especificamente uma fonte radioativa emissora de radiação ionizante, do tipo gama, por isso o nome gamagrafia.

A Gamagrafia é um ensaio não-destrutivo que permite avaliar diversos tipos de defeitos nos materiais. Na inspeção é produzido um filme radiográfico que permite ao inspetor de radiografia avaliar a qualidade do material e detectar os possíveis defeitos possíveis. Entre os defeitos mais comuns estão: trincas, porosidade, falta ou excesso de penetração na solda, falta de fusão, vazios na solidificação, sobreposição, inclusão de escória, mordedura, etc.

Na Gamagrafia as fontes tradicionalmente utilizadas são dos seguintes isótopos radioativos (radioisótopos): Irídio-192, Selênio-75 e Cobalto-60, entre outros. Devido à diferença de energia da radiação emitida por estes radioisótopos, e, portanto, ao diferente poder de penetração de cada um, cada uma destas fontes é escolhida de acordo com a espessura do material que será inspecionado. As faixas de espessura para cada fonte são especificadas no procedimento de execução da empresa, mas normalmente o Selênio-75 é utilizado para espessuras mais baixas de material, o Irídio-192 para espessuras intermediárias, e o Cobalto-60 para espessuras maiores.

Neste trabalho foi realizada gamagrafia tanto nos lingotes como nos tabletes e a fonte utilizada foi o Irídio-192. Para a realização dos ensaios de gamagrafia, os lingotes de urânio metálico fabricados foram cortados em cortadeira de disco de carbetto de silício em duas etapas. Na primeira, após a fusão, cortou-se o massalote do lingote, o qual foi decapado com ácido nítrico por 5 minutos e em seguida, foi caracterizado para verificação de defeitos de fusão. Com base nessa inspeção foi escolhida a melhor região para retirada dos tabletes. Após a escolha os tabletes foram identificados, desengraxados com acetona e acondicionados em sacos de polipropileno para posterior análise.

4.1.2.4 Tomografia

As técnicas convencionais de radiografia, como de raios x e radiação gama, apresentam algumas limitações que impossibilitam visualizar com maior nível de detalhe a estrutura interna de materiais. Um sistema digital para tomografia com nêutrons permite visualizar em duas e três dimensões a estrutura interna destes materiais. A inspeção da estrutura interna de materiais utilizando a técnica é realizada irradiando a amostra do material em um feixe uniforme de nêutrons.

As imagens tomográficas apresentadas neste trabalho foram obtidas no equipamento para tomografia com nêutrons, operacional desde 2011, e que está instalado no canal de

irradiação (BH) nº 14 do Reator Nuclear de Pesquisas IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP, que opera à potência de 5MW. A Figura 4 e a Tabela 1 mostram um diagrama esquemático deste equipamento e algumas de suas principais características, respectivamente [44].

Uma tomografia com nêutrons é obtida da seguinte forma: a amostra de urânio metálico é posicionada na mesa rotatória motorizada para ser irradiada; a intensidade dos nêutrons transmitida pela amostra incide na tela cintiladora formando uma imagem bidimensional de sua estrutura interna; um espelho reflete esta imagem para a câmera de vídeo, onde é capturada e, em seguida, armazenada no computador; devido à baixa intensidade da luz gerada pela tela, o cintilador, o espelho e a câmera são instalados no interior de uma caixa vedada contra luz externa; uma interface eletromecânica conecta a mesa rotatória e a câmera, de modo que, após a imagem ser capturada, a mesa gira a amostra $0,9^\circ$ e outra imagem é capturada, até completar 360° ; o arquivo das imagens armazenadas é o dado de entrada para o software Octopus gerar o arquivo de imagens reconstruídas (tomografias), que é o dado de entrada para outro software VG Studio gerar imagens em 3D da estrutura interna da amostra. Ambos os softwares são instalados em um computador tipo estação de trabalho [44]. A caracterização das amostras foi realizada no Centro de Reatores de Pesquisa (CRPQ) do IPEN/CNEN-SP.

Figura 4 - Diagrama esquemático do equipamento para tomografia com nêutrons [44]

Fonte: SCHOVERI, et al., 2014.

Tabela 1 - Características principais do equipamento para tomografia com nêutrons [44]

Canal de irradiação	14
Fluxo na posição de irradiação ($\text{n.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$)	8×10^6
Tempo de irradiação por imagem (s)	1
Diâmetro máximo do feixe (cm)	16
Resolução espacial máxima (μm)	205 ± 24
Tempo/tomografia (s)	400

Fonte: SCHOVERI, et al., 2014.

Para os ensaios de tomografia, os lingotes de urânio metálico foram cortados nas dimensões 55,0 mm x 25,0 mm x 4,0 mm, identificados, e a preparação seguiu o mesmo processo da gamagrafia.

5 RESULTADOS E DISCUSSÃO

5.1 Caracterização Química

A tabela 2 apresenta a análise química do aço 1020 obtida pela técnica de espectrometria de fluorescência de raios x.

Tabela 2: Análise química do aço 1020

Elemento	Resultado (%)
C	0,22
Mn	0,35
Al	0,047
P	0,019
S	0,009
Si	0,12
Nb	0,001
Ti	0,001
V	0,001
Co	0,002
Fe	bal.

Fonte: autor da tese

A tabela 3 apresenta a análise do urânio metálico onde utilizou-se diferentes técnicas. Para a determinação de urânio total foi utilizada a espectrometria de fluorescência de raios x. As impurezas metálicas foram determinadas por espectrometria de emissão óptica com plasma de argônio ICP-OES. Para a determinação dos teores de carbono e enxofre foi utilizada a técnica espectroscopia de infravermelho (LECO).

Tabela 3: Análise química do urânio metálico

Urânio total (%)	$98,8 \pm 0,5$
Impurezas metálicas ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	
Al	55 ± 1
B	$5,7 \pm 0,4$
Ca	$2,9 \pm 0,3$
Cd	$1,3 \pm 0,1$
Co	$4,7 \pm 0,3$
Cr	$17,6 \pm 0,5$
Cu	$< 0,50$
Fe	89 ± 4
Li	$< 0,10$
Mg	$3,8 \pm 0,2$
Mn	$15,6 \pm 0,1$
Mo	$< 3,0$
Ni	$12,2 \pm 0,5$
Pb	31 ± 1
Sn	107 ± 30
V	$1,6 \pm 0,8$
Zn	$< 1,0$
Ba	$< 0,20$
Si	$< 3,0$
Carbono ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	Max 600
Enxofre ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	Max 70

Fonte: autor da tese

A tabela 4 apresenta a análise química do alumínio 6061 realizada pelas técnicas de Espectrometria de fluorescência de raios x.

Tabela 4: Análise química do alumínio 6061

Elemento	Resultado (%)
Si	0,70
Fe	0,50
Cu	0,25
Mn	0,40
Mg	0,95
Cr	0,05
Zn	0,02
Ti	0,06
Al	bal.
outros	0,20

Fonte: autor da tese

5.2 Especificação

Cada reator de pesquisas possui diferentes e específicos requisitos para operação e especificação do alvo. Esses requisitos levam a projetos do alvo que são diferentes para operarem em diferentes reatores. Contudo, muitos atributos são comuns a todos os alvos de folhas finas de urânio metálico. Todos consistem de dois tubos de alumínio circulares concêntricos, projetados para receber entre eles uma folha fina de urânio envelopada em uma barreira de difusão e posicionada dentro de um rebaixo na superfície externa do tubo interno [45].

A função do alvo é conter produtos de fissão durante a irradiação e durante o transporte para uma instalação de processamento (célula quente). Como requisito de projeto, é necessário assegurar que exista baixa resistência térmica entre a folha de urânio geradora de calor e o material de revestimento. O desafio é manter uma estrutura do alvo que permita que a folha de urânio seja removida do alvo para processamento após a irradiação, e ainda tenha bom contato mecânico e baixa resistência de contato térmico. Além disso, para tornar o alvo mais fácil de montar, as dimensões e tolerâncias do tubo

devem permitir que os tubos deslizem facilmente uns sobre os outros, mantendo a folha de urânio adequadamente posicionada. Deve também ser realizada uma vedação final.

A barreira de difusão é fornecida por uma folha de níquel que é posicionada sobre as superfícies da folha fina de urânio metálico, formando um envelope. É possível também aplicar a barreira de difusão diretamente na folha de urânio por eletrodeposição ou qualquer outro processo de revestimento apropriado. Na montagem, após a barreira de difusão ter sido aplicada à folha de urânio, a folha preparada é envolvida em torno do tubo interno num rebaixo previamente usinado na superfície externa do tubo interno. O tubo interno contendo a folha fina (urânio e níquel) é inserido no tubo externo. É preciso garantir que a barreira de difusão não se rasgue durante a montagem. Depois dos tubos terem deslizado um para o interior do outro com a folha fina de urânio e barreira de difusão devidamente posicionada, a localização da folga entre as extremidades da folha fina é marcada no tubo externo como referência para a desmontagem futura. As próximas etapas são a consolidação mecânica do alvo e o seu fechamento final.

Em resumo, o projeto do alvo deve satisfazer aos principais requisitos:

- 1 - ser adequadamente dimensionado para ser posicionado no irradiador que será inserido na região de irradiação dentro do reator,
- 2 - conter uma quantidade suficiente de ^{235}U para produzir a quantidade necessária de ^{99}Mo durante a irradiação,
- 3 - ter boas propriedades de transferência de calor para evitar o superaquecimento que poderia resultar em falha do alvo,
- 4 - fornecer uma barreira à liberação de produtos radioativos, especialmente gases de fissão, durante e após a irradiação,
- 5 - os materiais do alvo devem ser compatíveis com as etapas de processamento químico que serão usadas para recuperar e purificar o ^{99}Mo após o alvo ser irradiado [4].

Não está ainda disponível uma especificação para o alvo tubular de folha fina de urânio metálico para ser usado no Reator Multipropósito Brasileiro-RMB. Sendo assim, neste trabalho foi utilizado o desenho do alvo desenvolvido pelo Argonne National Laboratory-ANL, em cooperação com BATAN [45], apresentado na Figura 5.

Figura 5 – Alvo do Argonne National Laboratory com dimensões e tolerâncias [45].

Fonte: HOYER, A., 2013.

O ANL desenvolveu dois tipos de alvos, um contendo massa de 16 g e outro contendo massa de 8 g. Neste trabalho foi estudado o alvo contendo 8 g. Esse alvo é composto por uma folha fina de urânio metálico retangular com dimensões de $44,0 \pm 2,0$ mm por $76,0 \pm 2,0$ mm, e espessura de 125 ± 13 μ m. O material usado como barreira de difusão é o níquel, na forma de uma folha com espessura de 15 μ m [45]. Os resultados obtidos com o estudo do alvo de 8 g são também aplicáveis aos alvos de 16 g ou de outro tamanho que porventura seja especificado para operação no RMB. As dimensões dos tubos de alumínio externo e interno seguiram as especificações do projeto do ANL, mas podem ser ajustadas às especificações de um futuro alvo para operação no reator RMB.

5.3 Produção de UF₄

A produção de urânio metálico é necessária para a fabricação de alvos de irradiação para produzir ⁹⁹Mo por fissão nuclear [31], tanto nos alvos de dispersão UAl_x-Al, como nos alvos de folhas finas de urânio metálico [8,46-48].

Existem várias possibilidades para a produção de urânio metálico [49,50]. Na década de 1930-40, o urânio foi produzido a partir de metalotermia com Na e Ca a partir de cloreto de urânio (UCl₄). Na década de 1950, no contexto do interesse mundial pela tecnologia nuclear, várias tecnologias foram desenvolvidas para a obtenção de metal de urânio: eletrólise a partir do sal de pentafluoreto de urânio-potássio (KUF₅), metalotermia do óxido de urânio (UO₂) com Ca e Mg e metalotermia de tetrafluoreto de urânio (UF₄) com Ca e Mg. A redução magnesiotérmica do UF₄ é um processo conhecido desde o início dos anos 1940 [51,52].

Normalmente, a redução calciotérmica de UF₄ é preferida em todo o mundo, uma vez que o calor exotérmico é de -109,7 kcal/mol, comparado a menor quantidade de -49,85 kcal/mol produzida usando magnésio como redutor [53]. No entanto, o IPEN/CNEN-SP, no processo de nacionalização para produzir seu próprio combustível nuclear para reatores de pesquisa e fabricação de alvos [7,10], decidiu pelo processo magnesiotérmico do (UF₄) mais fácil de ser realizado, evitando o manuseio de cálcio tóxico e pirofórico. Além disso, o processo magnesiotérmico é mais barato, já que o magnésio é mais barato do que o cálcio metálico. Assim, existe uma compensação econômica apesar da termoquímica desfavorável de redução com magnésio quando comparada com a redução com cálcio.

A redução magnesiotérmica emprega magnésio metálico como redutor químico de urânio. O magnésio é misturado com excesso estequiométrico ao (UF_4), que é produzido a partir do hexafluoreto de urânio (UF_6) hidrolisado em solução de ácido fluorídrico (HF). A solução hidrolisada é então reduzida por cloreto estanoso (SnCl_2) a UF_4 . A produção de UF_4 via cloreto estanoso tem sido adotada pelo IPEN/CNEN-SP desde o final da década de 1990, cujo processo está descrito na literatura [54,55].

5.4 Produção de Lingotes de Urânio Metálico

Para a produção de urânio metálico, o UF_4 é misturado com magnésio, cuja mistura pode ser reduzida a urânio metálico em condições térmicas adequadas. Esta reação é intensamente exotérmica. A reação é:

Os produtos da reação utilizam o calor exotérmico resultante da reação e fundem para formar o lingote de urânio metálico no fundo do cadinho. A escória sobrenadante, que é formada essencialmente por (fluoreto de magnésio) MgF_2 , solidifica no topo do lingote.

O IPEN/CNEN-SP decidiu usar essa rota em 1970-80 para produzir 100 kg de lingotes de urânio natural. No entanto, para a produção em U de baixo enriquecimento (LEU), é necessário manusear uma massa segura (menos de 2,2 kg U) para evitar possíveis riscos de criticalidade. No final dos anos 90, iniciou-se o estudo da redução magnesiotérmica para produzir pequenas quantidades de urânio enriquecido (lingotes com cerca de 1000 g de LEU) [56,57]. Esta faixa de massa de urânio metálico LEU é bastante pequena se comparada as grandes produções de urânio natural. O urânio metálico é produzido com 94% de rendimento metálico quando maiores quantidades de matéria-prima são utilizadas [58]. O processo magnesiotérmico para produzir LEU em pequenas quantidades tem pouca possibilidade de alcançar este nível de rendimento metálico. Isso se deve ao projeto de cadinhos, com uma proporção relativamente alta da área circundante, que é mais propensa a retirar o calor desenvolvido pela reação exotérmica durante a redução do urânio. A reação de redução inicia-se por meio de ignição espontânea. Como a termodinâmica do magnésio é menos favorável termicamente do que a do cálcio, o reator deve ser aquecido a uma temperatura em torno de 620°C . A rotina mostra que esta ignição normalmente acontece alguns graus abaixo desta temperatura [58]. Por esse motivo, o

IPEN/CNEN-SP tem produzido rotineiramente pequenas quantidades de urânio metálico com rendimento típico entre 80 e 90% [59]. O urânio contido na escória de MgF_2 , em concentrações entre 10 e 20% em peso de urânio, é recuperado com rendimento de 96% [59].

O urânio metálico obtido da redução magnesiotérmica é fundido utilizando um forno a indução de potência 15 kW, marca Indutherm, modelo VTC 200V Ti, e lingotado em lingoteira de grafite para obter-se um lingote de dimensões 140 mm x 230 mm x 4 mm de espessura e massa de 840 g. O cadinho utilizado na fusão é fabricado com zircônia estabilizada com magnésia. A Figura 6 ilustra o forno de indução utilizado na fusão do urânio metálico. A Figura 7 ilustra o cadinho de zircônia posicionado na espira de indução.

Figura 6 – Vistas do forno de indução usado para a fabricação dos lingotes de urânio metálico. 1 – Compartimento de fusão. 2 – Compartimento de lingotamento.

Fonte: autor da tese

Figura 7 – Vista do cadinho de zircônia posicionado na espira de indução no compartimento de fusão.

Fonte: autor da tese

Para a fusão e lingotamento, o urânio metálico oriundo da redução é aquecido até a temperatura de 1800 °C e vertido para a lingoteira de grafite. O tempo de vazamento utilizada foi de 3,5 segundos e pode ser controlada automaticamente. A fusão e lingotamento foram realizados sob atmosfera inerte de argônio. Para isso, o forno (ambos os compartimentos) foi evacuado até 10^{-2} mbar e preenchido com argônio ultrapuro. Essa operação foi repetida por três vezes. A Figura 8 ilustra a lingoteira de grafite utilizada e a Figura 9 apresenta a fotografia de um lingote típico obtido.

Lingoteiras de grafite não são recomendadas para o processo de lingotamento do urânio metálico [60, 61]. Além da possibilidade de contaminação com carbono, elas também resultam em lingotes com baixa qualidade no acabamento superficial. Lingoteiras de cobre refrigeradas a água apresentam muitas vantagens e são recomendadas para o processo. Essas lingoteiras têm longa vida útil e produzem um lingote com dimensões uniformes e bom acabamento superficial. Ambas as características são muito importantes para a produção de folhas de urânio com espessura uniforme e livre de furos [60, 61].

Neste trabalho não foi possível a utilização de lingoteira de cobre refrigerada devido a limitações experimentais. O forno de indução disponível não possibilita o uso de refrigeração no compartimento de lingotamento. Foram realizados testes usando uma lingoteira de cobre, porém não refrigerada, ilustrada na Figura 10. A Figura 11 ilustra o lingote típico obtido. Apesar do acabamento superficial ter se mostrado ligeiramente

melhor do que o obtido com lingoteira de grafite (Figura 9), inúmeros e grandes vazios internos foram observados por meio de gamagrafia, como ilustra a Figura 12.

Figura 8 – Vistas da lingoteira de grafite utilizada.

Fonte: autor da tese

Figura 9 – Típico lingote de urânio metálico obtido.

Fonte: autor da tese

Figura 10 – Vistas da lingoteira de cobre inicialmente utilizada.

Fonte: autor da tese

Figura 11 – Típico lingote de urânio metálico obtido usando lingoteira de cobre.

Fonte: autor da tese

Figura 12 - Vazios observados por gamagrafia no lingote de urânio metálico obtido usando lingoteira de cobre.

Fonte: autor da tese

Os lingotes obtidos usando a lingoteira de grafite também mostraram defeitos internos, porém em menor tamanho e quantidade, como ilustra a Figura 13.

Dos lingotes obtidos foram retirados tabletes de dimensões 55 mm x 25 mm x 4 mm de espessura e massa ao redor de 96 g. Os tabletes foram cortados a partir dos lingotes usando uma cortadeira com disco de carbeto de silício. Com o objetivo de se avaliar o comportamento dos vazios observados nos lingotes, tabletes contendo vazios e tabletes sem vazios foram processados. Os tabletes sem vazios foram retirados das regiões do lingote onde não foram observados vazios na gamagrafia. A Figura 14 ilustra gamagrafias de um tablete contendo vazios e de um tablete sem vazios. Seis tabletes, dois contendo vazios e quatro sem vazios, foram processados, sendo laminados a quente. A Figura 15 apresenta tomografias ilustrando vazios contidos em um dos tabletes que foram laminados a quente. A Figura 16 apresenta tomografias de um típico tablete sem vazios.

Figura 13 – Vazios observados por gamagrafia no lingote de urânio metálico obtido usando lingoteira de grafite.

Fonte: autor da tese

Figura 14 – Gamagrafia dos tabletes para laminação a quente. (A) Contendo vazios. (B) Sem vazios.

(A)

(B)

Fonte: autor da tese

Figura 15 – Tomografias ilustrando o tablete de urânio contendo vazios.

Fonte: autor da tese

Figura 16 – Tomografias ilustrando o tablete de urânio sem vazios.

Fonte: autor da tese

5.5 Laminação a Quente dos Tabletes de Urânio

O ANL vem estudando a fabricação de folhas de urânio metálico LEU para alvos de alta densidade desde 1993 [60]. Em um artigo de 1994, Wiencek descreveu o processo do ANL para fabricação de alvos de folhas de urânio metálico [21].

Um tamanho de lote típico no ANL é um lingote entre 250-300 g (50 mm x 50 mm x 6,3 mm) produzido por fusão a arco. Após a aplicação de um revestimento com Y_2O_3 como agente protetor de caldeamento, o lingote é encaixado em uma moldura de aço

carbono 1020 com dimensões de 150 mm x 150 mm x 6,3 mm, com uma cavidade no centro correspondente às dimensões do lingote. Duas placas de 150 mm x 150 mm x 6,3 mm de aço carbono 1020 são usados como revestimento para a moldura, que contém o tablete. As três placas são então soldadas nas bordas, selando totalmente o conjunto, e laminadas a quente a 625 °C, reduzindo-se a espessura de 18,9 mm a 0,8 mm [62].

Após laminação a quente e remoção do revestimento, a lamina de urânio tem cerca de 250 µm de espessura [62]. A lamina é então laminada a frio para a espessura final de 125 µm e é cortada no tamanho final. No processo do ANL, o rendimento em termos de folhas aceitáveis é tipicamente entre 50 e 70% após o corte [62].

Antes da laminação a quente, o ANL retira defeitos da superfície do lingote, tais como vincos e depressões, usando retificação [61]. Isso não foi possível ser realizado neste trabalho devido a limitações experimentais.

5.5.1 Teste Preliminar de Laminação a Quente

Para ganhar experiência na etapa de laminação a quente dos tabletes de urânio, um tablete foi processado tendo como base os procedimentos gerais de fabricação adotados pelo ANL [62]. A laminação a quente do tablete de urânio metálico deve ser realizada isolada do ar para prevenção contra oxidação. Por esse motivo, o tablete foi laminado no interior de um conjunto de aço 1020 usando a técnica de montagem núcleo-moldura-revestimento, a mesma técnica usada na fabricação de placas combustíveis para reatores de pesquisas [13-15]. As bordas foram inteiramente seladas por meio de soldagem TIG para evitar contato com o ar. Neste estudo as placas de aço 1020 utilizadas, foram adquiridas do mercado nacional e possuem espessura de 4 mm. Elas foram cortadas nas dimensões 230 mm x 120 mm. No centro das placas de moldura foi aberta uma cavidade para encaixe do tablete, com dimensões ligeiramente superiores para permitir um encaixe deslizante a frio.

Antes da montagem, as placas de aço foram lixadas com lixa grana 600 até que a superfície ficasse brilhante. Deve ser usada uma cobertura de um material para evitar o caldeamento entre o tablete de urânio metálico e as placas de aço de revestimento. O ANL usa uma suspensão de óxido de ítrio em álcool [62]. A superfície do tablete e as superfícies das bordas da moldura, assim como as superfícies internas das placas de revestimento, foram recobertas com essa suspensão. A Figura 17 ilustra o esquema de montagem do conjunto tablete-moldura-revestimentos, na forma de um “sanduíche”.

Figura 17 – Esquema de montagem do sanduíche para a laminação a quente.

Fonte: autor da tese

Para a laminação a quente, o tablete de urânio é inserido na cavidade da moldura de aço 1020 e encapsulado pelas duas placas de revestimento de aço 1020, formando o sanduíche.

Os componentes do conjunto a ser laminado são montados e o conjunto é soldado com solda TIG. Dissipadores de calor de cobre são utilizados para minimizar o aquecimento do tablete de urânio metálico no interior do conjunto, prevenindo sua oxidação. A Figura 18 ilustra o típico esquema de soldagem.

O conjunto soldado foi laminado a 650 °C em 22 passes com deformação por passe variando entre 15% no início da laminação a quente até 5% nos passes finais. Entre passes, o conjunto foi reaquecido na temperatura de laminação por 10 minutos. O procedimento de laminação usado internacionalmente adota o corte das extremidades da placa após certo número de passes, e sua soldagem ao pedaço central que contém o urânio metálico, de forma a aumentar a espessura total do conjunto e permitir que seja atingida a espessura pretendida da lâmina de urânio após a laminação a quente, de cerca de 300 µm. Esse procedimento foi adotado no teste preliminar de laminação a quente. Contudo, os resultados não foram satisfatórios devido a defeitos observados na placa de aço laminada,

ilustrados na Figura 19, os quais se refletem na lâmina final de urânio obtida após a laminação a quente. Tais defeitos são provenientes da deformação desigual nas três placas soldadas, o que causa dobraduras na forma de “vincos” que inutilizam as lâminas de urânio metálico obtidas. Observa-se que após a soldagem dos três pedaços da placa original, durante a laminação subsequente a solda se quebra causando os defeitos, como ilustra a Figura 20.

Figura 18 – Operação típica de soldagem do conjunto para a laminação a quente. (A) antes, (B) soldagem TIG e (C) depois.

Fonte: autor da tese

Figura 19 – Defeitos tipo dobradura observados na lâmina de urânio no teste preliminar de laminação.

Fonte: autor da tese

Figura 20 – Quebra da solda observada na laminação a quente no início do estudo.

Fonte: autor da tese

O teste de laminação a quente preliminar revelou três problemas principais.

- (a) Quebra da solda entre as três placas durante a laminação a quente, causando as “dobraduras” ou “vincos” ilustradas na Figura 20. Para resolver este problema decidiu-se executar a operação de laminação a quente numa única etapa, apenas cortando-se as extremidades da placa de aço para que a mesma pudesse ser acomodada no forno de aquecimento, ajustando-se o seu comprimento. Isso foi possível devido às características do laminador disponível no IPEN, que permite a laminação mesmo em pequenas espessuras, possibilitando a laminação direta.
- (b) Grande esforço do laminador nos passes iniciais com redução de 15% em espessura. Para resolver esse problema decidiu-se manter uma redução em espessura ao redor de 10% em todos os passes de laminação a quente. Isso ampliou o número total de 22 para 54 passes.
- (c) Deslocamento do ar residual existente na região central do conjunto, onde foi aplicada a camada anti-caldeamento. Isso causou o deslocamento da bolha de ar por todo o conjunto durante as operações de rotação do mesmo. Isso impediu o caldeamento das regiões ao redor do tablete, culminando na quebra da solda nas extremidades do conjunto, exigindo a interrupção da operação para refazer o cordão de solda. Para resolver esse problema, a aplicação da camada anti-caldeamento foi modificada, como será descrito no próximo item.
- (d) Não existe na literatura informações que expliquem o uso do óxido de ítrio como material anti-caldeamento. Como se trata de um material de alto custo e de difícil disponibilidade, outros possíveis materiais anti-caldeamento foram testados, como será descrito no próximo item.

5.5.2 Definição do Procedimento de Laminação a Quente

Tendo em vista os problemas (c) e (d) observados no teste preliminar, diversos materiais foram testados para serem usados em substituição ao óxido de ítrio, que é caro e difícil de ser obtido. Foram testados óxidos de alumínio e titânio, e géis de dextrina e poliacrilamida. Também a forma de aplicar a camada anti-caldeamento foi modificada. Testes de laminação a quente realizados em vazio, sem a presença do tablete, demonstraram que ambos os óxidos preveniram caldeamento com eficiência. Os

compostos orgânicos não mostraram ser eficientes, pois em alguns locais ocorreu o caldeamento, o que impossibilitaria a retirada da folha de urânio após a laminação a quente. O óxido de alumínio, com granulometria abaixo de 3 μm , foi escolhido como material anti-caldeamento neste trabalho, em substituição ao óxido de ítrio usado pelo ANL. Esse material é disponível e barato. Além disso, foram deixados “caminhos” para que o ar retido na região do tablete de urânio possa preencher a região delimitada pela camada e romper a solda para alívio da pressão nas regiões das extremidades do conjunto, facilitando a operação de re-soldagem quando necessária. A Figura 21 ilustra a aplicação dos materiais anti-caldeamento sobre os revestimentos para a realização dos testes.

Figura 21 – Materiais testados para prevenir caldeamento dos tabletes de urânio metálico nas placas de aço 1020 usadas como revestimento. (A) Al_2O_3 , (B) TiO_2 , (C) Dextrina e (D) Gel de poliacrilamida.

(A)

(B)

(C)

(D)

Fonte: autor da tese

O novo procedimento de aplicação do produto anti-caldeamento mostrou-se eficiente. No teste preliminar de laminação a quente não existiam os “caminhos” para extração do ar nos primeiros passes de laminação, como ilustra a Figura 17. Isso impedia a extração do ar e, portanto, impedia o caldeamento dos componentes do conjunto de aço 1020 na laminação a quente, dificultando a laminação quando a espessura diminuía abaixo de 2 mm. O novo procedimento permitiu o caldeamento das regiões do conjunto não protegidas (sem aplicação da camada anti-caldeamento) configurando maior rigidez ao conjunto quando a espessura atingia valores menores do que 2 mm. A Figura 22 ilustra o novo esquema de montagem adotado, sendo adotado como procedimento padrão na fabricação de lâminas de urânio metálico por laminação a quente.

Figura 22 – Novo esquema de aplicação da camada anti-caldeamento no sanduíche para a laminação a quente.

Fonte: autor da tese

Como mencionado anteriormente, foram produzidas 6 lâminas de urânio metálico partindo-se de dois tabletes contendo vazios e quatro tabletes livres desse tipo de defeito. A laminação a quente do conjunto foi realizada em uma única etapa, sem corte e a soldagem das extremidades, prevenindo-se, assim, o principal defeito observado no teste preliminar, ou seja, o aparecimento de “dobras” ou “vincos” ilustrados na Figura 19 e 20.

Foi adotado um esquema de rotação dos conjuntos após cada passe de laminação. O objetivo foi distribuir os defeitos terminais, os quais são característicos de processos de co-laminação, com relação a variação da espessura da lâmina nas suas extremidades, assim como garantir o máximo de homogeneidade na espessura da lâmina de urânio obtida na laminação a quente e minimizar o efeito da “flecha” (ver Figura 23). A Figura 24 ilustra o esquema de rotação adotado na laminação a quente.

O esquema de rotação das placas entre os passes de laminação consiste em girar a placa, após cada passe de laminação, em 180° no sentido da largura e 180° no sentido do comprimento. Esse movimento é feito simultaneamente no intervalo de cada passe de laminação.

Os conjuntos a serem laminados são identificados com um número e com a letra X na sua superfície superior e com o mesmo número na sua superfície inferior. Como superfície superior entende-se a superfície do conjunto que estará em contato com o cilindro de laminação superior, e vice-versa. Isso é realizado para o controle do esquema de rotação. Dessa forma, o primeiro conjunto recebe a marca 1X na sua superfície superior e a marca 1 na sua superfície inferior. O segundo conjunto a ser laminado recebe a marca 2X na sua superfície superior e a marca 2 na sua superfície inferior, e assim por diante, dependendo da quantidade de conjunto laminados por lote de laminação. Esse tipo de identificação permite ao operador o controle de rotações na laminação, desde o primeiro até o último passe.

Figura 23 – Ilustração do defeito típico de laminação denominado “flecha”

Fonte: autor da tese

No primeiro passe, a marca 1X (primeiro conjunto a ser laminado) deve estar na superfície superior do conjunto, na extremidade inversa da “mordida” (entrada da laminação). Na superfície inferior, o número (sem o X) estará na extremidade da mordida, como ilustra a Figura 25.

Figura 24 – Ilustração do esquema de rotação dos conjuntos na laminação a quente.

Fonte: autor da tese

Figura 25 – Ilustração da identificação dos conjuntos na laminação a quente

Fonte: autor da tese

Para o segundo passe dá-se um giro de 180° no sentido longitudinal e 180° no sentido transversal. Essas rotações são realizadas simultaneamente na saída do conjunto do passe de laminação, sendo reinserido no forno já na posição de entrada para o segundo passe. Após a rotação, a marca 1X para o segundo passe fica na superfície inferior, à direita da placa, próxima à “mordida”, e a marca 1 fica na superfície superior, à esquerda da placa, na extremidade oposta à “mordida”.

Para o terceiro passe segue-se o mesmo procedimento, girando-se o conjunto 180° na direção do comprimento e 180° na direção da largura, obtendo-se novamente a posição de entrada no primeiro passe. No quarto passe, a posição de entrada é a mesma do segundo, e assim sucessivamente. Passes ímpares terão a mesma posição de entrada do primeiro passe e passes pares terão a mesma posição de entrada do segundo passe.

Por meio desse esquema de rotação da placa durante a laminação, consegue-se uniformizar a espessura e controlar a flecha. A Figura 26 ilustra o esquema completo de rotações que são efetuadas nas placas durante a laminação.

Figura 26 – Ilustração do esquema completo de rotação dos conjuntos na laminação a quente.

Fonte: autor da tese

A Tabela 5 apresenta o típico projeto de passes adotado na laminação a quente da lâmina de urânio metálico. O processo de laminação a quente é realizado em duas etapas. Na primeira etapa da laminação a quente o conjunto é laminado em 24 passes com redução média ao redor de 7% em espessura, até a espessura aproximada 1,93 mm, quando a placa é resfriada até a temperatura ambiente e suas extremidades são cortadas para que a placa tenha o seu comprimento diminuído para que possa ser alojada no forno de aquecimento até o final da segunda etapa de laminação. As extremidades cortadas são novamente seladas por solda TIG. Na segunda etapa da laminação a quente o conjunto é laminado em 30 passes, com redução média ao redor de 3,5% em espessura, até a espessura de 0,59 mm. A redução total a quente em espessura foi de aproximadamente 95%, realizada em 54 passes de laminação.

A temperatura de laminação foi de 650 °C, com reaquecimento de 10 minutos após cada passe de laminação. Antes do primeiro passe, o conjunto foi aquecido por 30 minutos.

Tabela 5 – Projeto típico de passes usado para a laminação a quente da lâmina urânio.

Tabela de Laminação a quente				
Passe	Projetado	Medida	%Redução	Comprimento
1a fase	Início	11,98	---	230
1	12,40	11,98	---	230
2	11,16	11,71	2,25%	231
3	10,00	11,02	5,89%	245
4	9,00	10,22	7,26%	265
5	8,10	9,39	8,12%	290
6	7,30	8,65	7,88%	320
7	6,60	7,85	9,25%	350
8	5,90	7,24	7,77%	385
9	5,30	6,64	8,29%	415
10	4,70	6,01	9,49%	450
11	4,25	5,45	9,32%	490
12	3,82	4,95	9,17%	535
13	3,44	4,55	8,08%	595
14	3,09	4,09	10,11%	655
15	2,78	3,72	9,05%	715
16	2,50	3,48	6,45%	785
17	2,25	3,20	8,05%	840
18	2,02	2,97	7,19%	915

19	1,82	2,74	7,74%	875
20	1,63	2,53	7,66%	1050
21	1,46	2,39	5,53%	1130
22	1,31	2,24	6,28%	1210
23	1,17	2,03	9,38%	1250
24	1,05	1,93	4,93%	1330
2ª fase	Início	1,93	---	340
25	0,94	1,83	5,18%	365
26	0,85	1,74	4,92%	380
27	0,76	1,64	5,75%	400
28	0,68	1,56	4,88%	425
29	0,61	1,51	3,21%	445
30	0,55	1,40	7,28%	460
31	0,50	1,32	5,71%	480
32	0,45	1,27	3,79%	500
33	0,40	1,21	4,72%	525
34	0,36	1,17	3,31%	540
35	0,32	1,11	5,13%	560
36	0,29	1,07	3,60%	580
37	0,26	1,01	5,61%	600
38	0,23	1,00	0,99%	620
39	0,19	0,94	6,00%	640
40	0,16	0,93	1,06%	655
41	0,14	0,88	5,38%	675
42	0,12	0,86	2,27%	695
43	0,11	0,82	4,65%	710
44	0,10	0,81	1,22%	735
45	0,09	0,79	2,47%	755
46	0,08	0,77	2,53%	775
47	0,07	0,75	2,60%	795
48	0,06	0,74	1,33%	805
49	0,05	0,71	4,05%	825
50	0,04	0,71	0,00%	840
51	0,03	0,66	7,04%	865
52	0,01	0,66	0,00%	880
53	-0,29	0,64	3,03%	910
54	-0,29	0,59	7,81%	955
		Redução total (%)	95,07	

Fonte: autor da tese

Com esse procedimento, obteve-se uma lâmina de urânio com espessura de 290 a 300 μm e comprimento total em torno de 340 mm desprezando-se as extremidades, que normalmente apresentam heterogeneidades na espessura, trincas e contorno irregular, obtém-se uma lâmina com comprimento útil de aproximadamente 300 mm. Dessa lâmina podem ser retiradas de 4 a 5 lâminas para a laminação a frio, cada uma com dimensões típicas de 60 mm de comprimento x 50 mm de largura x 0,30 mm de espessura. Geralmente um comprimento típico de 20 mm de cada extremidade da lâmina de urânio obtida após a laminação a quente deve ser desprezado por apresentar os defeitos terminais citados acima. A Figura 27 ilustra uma placa obtida. A Figura 28 apresenta a sequência de operações da laminação a quente. Acima, as fotografias ilustram a entrada do conjunto no laminador. Ao centro está ilustrado o conjunto no interior do forno. Abaixo, as fotografias mostram a sequência de uma placa na saída do laminador.

Figura 27 – Placa obtida após a laminação a quente.

Fonte: autor da tese

A placa obtida, contendo em seu interior a lâmina de urânio, é cortada em guilhotina para retirada das suas laterais e abertura, possibilitando a retirada da lâmina de urânio metálico, como ilustrado nas Figuras 29 e 30. A Tabela 6 apresenta a análise dimensional da lâmina de urânio retirada após o término do processo de laminação a quente.

Figura 28 – Sequência de fotografias ilustrando a operação de laminação a quente.

Fonte: autor da tese

Figura 29 – Ilustração da operação de corte da placa laminada a quente para retirada da lâmina de urânio.

Fonte: autor da tese

Figura 30 – Ilustração da abertura da placa laminada para retirada da lâmina de urânio.

Fonte: autor da tese

Tabela 6 – Análise dimensional da lâmina após o término do processo de laminação a quente.

Espessura	(μm)
E1	285
E2	299
E3	299
E4	255
E5	260
E6	254
E7	248
E8	251
E9	260
E10	260
E11	258
E12	259
E13	260
E14	258
E15	252
E16	269
E17	287
E18	260

Comprimento (mm)	
C1	338
Largura (mm)	
L1	67
L2	67
L3	66

Fonte: autor da tese

As lâminas de urânio obtidas são desengraxadas com acetona e lavadas com álcool etílico absoluto.

As lâminas de urânio são, então, radiografadas para inspeção quanto a defeitos, como ilustra a Figura 31 (A), (B) e (C), e localizadas as imagens para a traçagem que orientará o corte das amostras individuais que serão laminadas a frio. Para isso é utilizado um escâner radiográfico que possibilita obter a imagem radiográfica e traçar a posição onde as amostras serão cortadas. As Figuras 31(D) ilustra a imagem radiográfica típica das lâminas de urânio obtidas após a laminação a quente e a 31(E) o escâner utilizado.

Figura 31 – Ilustração da radiografia das lâminas de urânio para inspeção e traçagem para o corte final. (A) Lâmina produzida a partir de tablete com vazios; (B) Lâmina produzida a partir de tablete sem vazios com vinco de laminação; (C) Lâmina produzida a partir de tablete sem vazios; (D) Imagem radiográfica para traçagem e corte na lâmina e (E) Scanner radiográfico.

Fonte: autor da tese

A imagem é obtida na tela do sistema de escaneamento e as linhas de corte são traçadas. As extremidades superior e inferior da lâmina urânio, com aproximadamente 20 mm, são desprezadas, evitando-se assim possíveis defeitos, oriundos da laminação a quente. São traçadas as linhas de corte e a lâmina é dividida em 5 amostras, cada uma com 60 mm de comprimento totalizando 5 amostras.

Mesmo com a espessura da lâmina ainda elevada, na radiografia realizada nessa etapa já é possível identificar defeitos. A radiografia da lâmina obtida a partir do tablete contendo vazios, cuja gamagrafia está apresentada na Figura 14A, mostra o defeito originado pelo grande vazio existente no tablete. A Figura 32A apresenta imagens do tablete defeituoso antes e após a laminação a quente, mostrando o efeito do defeito originalmente presente no tablete. A figura 32B apresenta imagens de um tablete livre de defeitos, cuja gamagrafia está apresentada na Figura 14B, antes e após laminação a quente nesse caso a radiografia não apresentou defeitos perceptíveis após etapa de processamento de laminação quente.

5.6 Laminação a Frio das Lâminas de Urânio Metálico

Após o corte das lâminas obtidas na laminação a quente em amostras individuais, as mesmas foram analisadas e laminadas a frio. A espessura média inicial das lâminas fabricadas variou entre 260 e 300 μm . As dimensões das mesmas antes da laminação a frio foram 60 mm x 50 mm. A laminação a frio tem como objetivo promover a redução e homogeneização da espessura para se atingir com precisão a espessura especificada, de $125 \pm 13 \mu\text{m}$ no caso do ANL e também objetivo deste trabalho.

O ANL realiza a laminação a frio inserindo-se a lâmina de urânio entre uma chapa fina de aço inoxidável 304 com espessura de 0,75 mm. A largura da chapa de aço inoxidável é 60 mm maior do que a da lâmina de urânio metálico e o comprimento da mesma é duas vezes o comprimento da lâmina, deixando-se 60 mm de sobra. A chapa de aço inoxidável é dobrada na linha de centro de seu comprimento e a lâmina de urânio metálico é inserida no seu interior [62]. O conjunto é laminado a frio até que seja atingida a espessura especificada para a folha fina de urânio metálico.

Essa técnica foi inicialmente adotada neste trabalho. Seis folhas finas de urânio metálico foram laminadas a frio no interior de chapas finas de aço inoxidável dobradas. A laminação a frio foi realizada em 8 passes consecutivos com redução em espessura ao

redor de 10%. A Figura 33 ilustra as etapas da laminação a frio. Contudo, o controle da laminação a frio mostrou-se muito difícil devido à dificuldade para se medir a espessura do conjunto, o qual não sofre solda e permanece aberto. O controle é realizado por meio do controle do posicionamento dos cilindros do laminador, controlando-se a distância entre eles (luz).

Figura 32 – (A) Efeito de vazios no tablete na lâmina de urânio após a laminação e (B) Lâmina de urânio oriunda de tablete sem vazios.

(A)

(B)

Fonte: autor da tese

Figura 33 – Fotografias ilustrando o procedimento de laminação a frio adotado pelo ANL e inicialmente testado neste trabalho.

Fonte: autor da tese

Aplicando-se esse procedimento foi possível se obter folhas finas íntegras e com boa homogeneidade na espessura. Contudo, o controle preciso da espessura da folha fina mostrou-se impraticável. A única maneira de se realizar uma medição precisa foi retirar a folha fina do revestimento de aço inoxidável para efetuar a medição. Contudo, para continuar a laminação a frio, o revestimento de aço inoxidável deve ser substituído por um novo, o que, além de ser um processo caro e moroso, causa o descontrole do acompanhamento da espessura da folha fina durante a laminação a frio.

Por esse motivo, esse procedimento inicial foi abandonado e optou-se por laminar a lâmina de urânio oriunda da laminação a quente diretamente entre os cilindros de um laminador com capacidade para laminar folhas finas. A Figura 34 ilustra o laminador utilizado.

O esquema de passes variou dependendo da espessura inicial da lâmina obtida na laminação a quente. Devido à pequena espessura, o controle da redução por passe também

se mostrou difícil. Em geral, a redução em espessura por passes de laminação a frio ficou com média ao redor de 5%.

O esquema de rotação utilizado na laminação a quente, descrito no item 5.5.2, também foi adotado no processo de laminação a frio. As Tabelas 7 apresenta o projeto de passes típico adotado neste processo.

Figura 34 – Fotografia do laminador utilizado na laminação a frio.

Fonte: autor da tese

Tabela 7 – Projeto típico de passes usado para a laminação a frio da folha fina de urânio.

Passe	Espessura (μm)	Comprimento (mm)	Largura (mm)	Redução (%)
Início	271	64,82	29,44	---
1	270	64,84	29,45	0,37
2	257	64,90	29,45	4,81
3	227	64,93	29,46	11,67
4	207	66,62	30,24	8,81
5	199	67,93	30,60	3,86
6	193	69,00	31,12	3,02
7	185	70,04	32,48	4,15
8	175	71,81	33,32	5,41
9	168	72,98	34,03	4,00
10	156	73,93	34,70	7,14
11	150	74,88	35,75	3,85
12	146	76,15	36,60	2,67
13	144	77,07	37,53	1,37
14	138	78,50	38,65	4,17
15	132	80,39	39,89	4,35
16	128	82,39	40,88	3,03
17	124	84,18	42,25	3,13
Redução total (%)				54,24

Fonte: autor da tese

Após o processo de laminação a frio, as folhas finas de urânio foram radiografadas para detecção de defeitos internos e cortadas nas dimensões corretas conforme a figura 35A. Após o corte, elas foram desengraxadas em acetona e tratadas quimicamente, tendo sido imersas em ácido nítrico 65% durante 5 minutos, lavadas em água deionizada, após submetida a um banho do ultrassom em álcool etílico absoluto por 5 minutos e secagem, sendo preparadas para a montagem final do alvo. Após a limpeza da superfície, a folha fina adquire um brilho metálico cinza claro, conforme mostra a figura 35B. Quando exposta ao ar, após o tratamento, a folha fina rapidamente perde o brilho e começa a escurecer. Após 24 horas a amostra adquire uma tonalidade azul, conforme mostra a figura 35C, e assim permanece, sem alteração, mesmo após 478 horas exposta ao ar (20 dias). A análise da variação de massa mostra que após 24 horas a amostra aumenta sua massa por oxidação em 2,36% e que após 478 horas o aumento é de 2,65%. Isso demonstra que após a limpeza química uma camada de óxido rapidamente se forma na superfície da folha fina, protegendo-a da oxidação subsequente. A formação dessa camada de óxido protetora

permite que a folha fina seja manipulada sem problemas mesmo sem qualquer proteção contra oxidação (atmosfera inerte).

Figura 35 – (A) antes do tratamento químico; (B) após tratamento químico e (C) após 20 dias

Fonte: autor da tese

Foram realizadas 9 medidas de espessura nas folhas finas laminadas a frio segundo o esquema típico de passes apresentado na Tabela 8. Quatro medições de largura e quatro de comprimento são realizadas. Essa metodologia de medição é a mesma adotada pelo Y12 National Security Complex [62], ilustrado na Figura 36.

Figura 36 – Esquema de inspeção dimensional das folhas finas laminadas a frio.
E=espessura L=largura C=comprimento

Fonte: autor da tese

As medições de espessura foram realizadas utilizando-se um micrômetro digital com precisão de 1 μm . As medições de largura e comprimento foram realizadas utilizando-se um paquímetro digital com precisão de 0,02 mm. A Figura 37 ilustra uma medição de espessura, comprimento e largura.

Um total de 14 folhas finas foi obtido a partir de tabletes sem defeitos e 10 folhas finas a partir de tabletes com defeitos. As folhas finas oriundas de tabletes com defeitos confirmaram os defeitos detectados já na lâmina de urânio laminada a quente, como apresentado na Figura 32A. Tais defeitos ficaram mais visíveis após a laminação a frio, como ilustra a Figura 38A.

Com o objetivo de caracterizar os defeitos ilustrados na Figura 38A, a seção transversal de uma das folhas finas com defeito foi analisada por meio de microscópio óptico. As seções analisadas estão indicadas na Figura 39A. A Figura 40 apresenta micrografias obtidas nessas seções.

Observaram-se variações na espessura da folha fina nas regiões de defeitos. Na região dos defeitos observou-se que a espessura variou entre 128 μm e 81 μm (seção A-A), e entre 128 μm e 85 μm (seção B-B). A especificação do ANL permite uma variação de $125 \pm 13 \mu\text{m}$, colocando, portanto, a faixa de espessura aceitável entre 112 μm e 138 μm [64]. Conclui-se, portanto, que a variação observada não atende à especificação do ANL mesmo no caso dos defeitos menos intensos, com base na imagem da radiografia. Na região onde o defeito aparece mais intenso na radiografia (seção C-C), a espessura é drasticamente diminuída, com uma trinca interna aparente. Nesse caso a espessura

diminuiu para valores muito baixos, de até 39 μm , como ilustra a Figura 40. Próximo ao defeito se observou também que a espessura da folha fina diminuiu de 128 μm para 115 μm . Isso indica que o defeito foi causado por um vazio inicialmente existente no tablete de urânio metálico, causando a diminuição localizada da espessura da folha fina após a laminação a frio. Esse tipo de defeito não tem sido reportado na literatura aberta. De qualquer forma, sua presença causa uma variação localizada na espessura da folha fina, considerando-se a especificação do ANL, impossibilitando seu uso como alvo. Como mencionado anteriormente no item 5.5, o ANL menciona uma perda entre 30 e 50% das folhas finas de urânio metálico fabricadas segundo seu processo [62]. Possivelmente, esse é um dos motivos da alta rejeição.

A figura 39 (B) apresenta o local da seção transversal (seção D-D) de uma folha feita a partir de tabletes sem vazios como mostrada na Figura 38 (B). A imagem apresentada na Figura 41 mostra que, nesta seção a folha apresenta uma uniformidade em sua espessura.

Figura 37 – Ilustração da medição da espessura de uma folha fina de urânio metálico.

Fonte: autor da tese

Figura 38 – (A) Ilustração do efeito de vazios no tablete na folha fina de urânio após a laminação a frio e (B) Folha fina de urânio oriunda de tablete sem vazios.

Fonte: autor da tese

Figura 39 – Esquema de corte para análise micrografia de defeitos típicos de folha fina de urânio metálico (A) com defeitos (B) sem defeitos.

Fonte: autor da tese

Figura 40 – Defeitos típicos observados em folhas finas acabadas de urânio metálico.

Fonte: autor da tese

Figura 41 – Corte transversal de uma folha fina de urânio metálico sem defeitos

Fonte: autor da tese

As folhas finas produzidas a partir de tabletes livres de defeitos apresentaram radiografias homogêneas, nas quais não se observa defeitos internos. Em algumas folhas finas observou-se o aparecimento de trincas laterais, como ilustra a Figura 42A e 42B. Por esse motivo, as lâminas de urânio possuem largura superior à largura especificada para as folhas finas acabadas, ao redor de 50 mm. Isso disponibiliza um sobremetal de 4,0 mm nas laterais da folha, suficiente para eliminar essas trincas no corte final da folha fina, se existirem.

Figura 42 – Radiografias de folhas finas (A) e (B) apresentando trincas laterais nas bordas e defeitos na superfície; (C) folha fina sem defeitos.

Fonte: autor da tese

A Tabela 8 apresenta as dimensões das folhas finas produzidas a partir de tabletes livres de defeitos. Observou-se que todas as folhas finas fabricadas atenderam às especificações dimensionais do ANL, de $125 \pm 13 \mu\text{m}$ [62]. Além disso, nenhuma folha fina foi perdida devido as trincas observáveis nas radiografias.

Uma observação importante nesta fase do trabalho é que vazios inicialmente presentes nos tabletes a serem laminados a quente são inadmissíveis no processo, pois causam os defeitos ilustrados na Figura 40 que são considerados motivo de rejeição da folha fina. O aparecimento de trincas nas bordas da folha fina, transversais à direção de laminação, mostrou-se aceitável e não são causas de rejeição. Trabalhos futuros com o objetivo de se eliminar a presença de vazios no lingote primário de urânio metálico são necessários. A mudança das dimensões do lingote primário e/ou na sua geometria são possibilidades a serem estudadas. A fusão e lingotamento a vácuo e o uso de uma lingoteira de cobre refrigerada também são possibilidades a serem estudadas. A Figura 42C mostra uma folha fina sem defeitos.

Tabela 8 – Dimensões das folhas finas de urânio metálico produzidas a partir de tabletes livres de defeitos.

Folha	Espessura (µm)									L (mm)				C (mm)			
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	1	2	3	4	1	2	3	4
8B-D	124	130	124	126	131	127	122	128	125	42,01	42,07	42,03	42,05	77,80	77,50	77,30	77,32
8C-0	124	126	126	123	126	120	138	138	137	43,94	44,25	44,25	43,85	76,56	76,72	76,62	76,61
8C-B	123	131	123	128	133	121	117	126	124	43,90	44,14	43,97	44,01	75,86	76,25	76,45	76,86
8C-C	134	134	134	126	130	128	120	123	119	44,36	44,39	44,12	43,97	76,21	76,43	76,49	76,20
8C-D	132	134	134	135	134	134	129	130	134	43,67	44,31	44,23	44,24	76,16	76,06	76,15	76,01
10-A	124	131	124	128	138	133	132	137	133	44,94	44,80	44,61	44,25	75,78	75,82	76,21	76,28
10-D	128	130	127	134	131	127	135	132	128	43,91	43,95	44,28	44,00	75,61	75,78	75,64	75,63
10-E	118	124	120	127	127	124	115	120	114	44,87	44,89	44,78	44,33	76,26	76,54	76,80	76,57
11-B	124	130	122	122	123	116	120	124	122	42,77	42,93	42,59	42,04	74,98	75,54	75,61	75,29
11-C	128	126	121	126	122	122	118	118	118	43,96	44,02	44,23	44,01	75,80	75,71	75,66	75,75
11-D	133	136	135	127	126	128	115	118	118	44,69	44,95	44,88	44,87	76,48	76,32	75,94	75,37
11-E	126	127	125	122	123	124	121	124	126	44,16	44,19	44,12	44,20	75,89	75,95	75,95	75,19
18C-D	122	127	123	125	132	128	122	130	124	43,14	43,22	42,71	43,90	76,14	75,93	75,86	75,74
18C-E	121	133	119	126	131	120	117	117	113	43,71	43,69	44,00	44,43	75,19	75,08	75,06	74,99

Fonte: autor da tese

5.7 Tratamento Térmico das Folhas Finas de Urânio

Um possível problema no projeto dos alvos circulares de folhas finas de urânio, observado já no início do desenvolvimento, está relacionado ao crescimento anisotrópico da folha de urânio. Esse crescimento pode romper a barreira dos fragmentos de fissão durante a irradiação, o que poderia permitir que a folha fina de urânio se caldeasse aos tubos de alumínio do alvo, impossibilitando a retirada da mesma durante a desmontagem para a dissolução e recuperação do ^{99}Mo produzido na fissão.

A deformação a frio de urânio metálico tende a produzir uma orientação de grão preferencial texturizada com o plano (100) paralelo ao plano de laminação [14]. Também foi demonstrado que o urânio puro altamente texturizado exibe um severo crescimento anisotrópico quando irradiado [14]. Na pior das hipóteses, o crescimento anisotrópico pode causar falha no revestimento do alvo durante a irradiação. Um tratamento térmico foi desenvolvido para produzir grãos pequenos e aleatoriamente orientados (sem textura) na folha fina de urânio metálico [63]. Nesse tratamento a folha de urânio é aquecida a 720 °C

por 20 minutos no interior de um envelope de folha de aço inoxidável (380 μm) selado a vácuo, formando-se a fase beta do urânio metálico, e, em seguida, a folha é resfriada rapidamente, inserindo-se o envelope selado em água. O vácuo é necessário para evitar a oxidação da folha e também promover um bom contato entre a folha fina e o envelope, de modo que o calor possa ser rapidamente removido. O rápido resfriamento através da transformação $\beta \rightarrow \alpha$ da estrutura cristalina resulta na formação de grãos pequenos e aleatoriamente orientados. Esse tratamento é denominado têmpera β da folha fina de urânio metálico. O método de selagem a vácuo da folha fina de urânio metálico está patenteado [64].

Para a avaliação da microestrutura dois métodos podem ser utilizados. A microscopia óptica é um método simples e tem sido utilizada pelo ANL. A difração de raios x também é utilizada pelo ANL para investigar a existência de textura. O difratograma obtido é inspecionado determinando-se a proporção das intensidades das reflexões hkl (111) e (113). O valor de referência do urânio não orientado para a proporção (111/113) é igual a 6. Antes do tratamento térmico essa proporção foi determinada entre 0,44 e 3,94, dependendo da deformação a frio introduzida, o que demonstra a texturização. Após o tratamento térmico, normalmente aplicado por duas vezes, a proporção entre as intensidades foi determinada entre 5,96 e 6,25, o que indica a inexistência de textura [63].

No presente trabalho os dois métodos foram aplicados. Por meio de microscopia óptica foi determinado o tamanho de grão na folha fina acabada. Também, por meio de difração de raios x foi estudada a textura presente na folha fina final pelo cálculo da relação (111/113).

A Figura 43 apresenta as microestruturas obtidas nas folhas finas antes e após o tratamento térmico pelo processo da ANL [63]. Na micrografia da folha fina antes do tratamento térmico não é possível distinguir-se claramente a presença de textura. Nessa amostra, a proporção entre as reflexões hkl (111) e (113) (111/113) mostrou o valor de 3,94, demonstrando a presença de textura [63]. Após o tratamento térmico, a proporção (111/113) assumiu o valor de 6,08, demonstrando que o mesmo foi eficaz na eliminação da textura. O objetivo do tratamento térmico é também obter-se uma estrutura de grãos pequenos e equiaxial. O tamanho de grão recomendado não é mencionado pelo ANL, apenas é citado que os grãos devem ser pequenos. Observando-se a micrografia apresentada na Figura 43B, considerando-se a barra de calibração apresentada na figura,

pode-se inferir que o tamanho de grão após o tratamento térmico é de aproximadamente 70 μm . Observa-se, também, qualitativamente, que os grãos são equiaxiais.

Figura 43 – Microestrutura de folhas finas a frio segundo o processo do ANL [63].
(A) sem tratamento térmico e (B) após têmpera β .

(A)

(B)

Fonte: CONNER, C. et al., 1998.

Neste trabalho foram adotadas as mesmas condições para o tratamento térmico, de 720 °C por 20 minutos. Porém, o resfriamento foi diferente, principalmente para que não fosse usado o processo patenteado [64].

O tratamento térmico foi realizado numa retorta que, depois de transcorrido o tempo de 20 minutos na temperatura de 720 °C, foi retirada do forno para promover um resfriamento rápido. Devido a limitações experimentais, não foi utilizado vácuo, já que o sistema permitiu atingir um vácuo de apenas 10^{-2} mbar. O tratamento térmico foi realizado sob atmosfera inerte de argônio de alta pureza (99,999%), com pressão levemente positiva para impedir a entrada de ar na retorta. A Figura 44 ilustra o sistema utilizado para a execução do tratamento térmico, o qual foi idealizado para estudar a produção de pó de UMo pelo processo de hidretação/dehidretação [65].

No tratamento térmico, a folha fina é inserida na retorta (2), a qual é evacuada (4) e lavada com argônio (5) por três vezes. O argônio é, então, injetado mantendo-se uma pressão de 1,0 bar acima da pressão atmosfera, controlado por um painel de gases (3). A retorta é, então, aquecida segundo o ciclo apresentado na Figura 45. A temperatura foi monitorada continuamente durante todo o tratamento térmico (7). Transcorrido o tempo de

tratamento térmico (20 minutos) o forno (1) é deslizado para fora da retorta, a qual é resfriada naturalmente até a temperatura ambiente, quando a folha fina é removida.

Figura 44 – Esquema e ilustração do sistema utilizado para a realização do tratamento térmico na folha fina de urânio laminada a frio.

Fonte: autor da tese

No tratamento térmico utilizado neste trabalho, o resfriamento ocorreu no período de 5 minutos, até que a temperatura de 300 °C fosse atingida. Esse resfriamento foi bem mais lento do que o utilizado no processo desenvolvido pelo ANL, que usa resfriamento em água [63].

Figura 45 – Ciclo de temperatura do forno para tratamento térmico de folhas finas de urânio metálico.

Fonte: autor da tese

As amostras da folha fina antes e após o tratamento térmico foram analisadas por meio de microscopia óptica e difração de raios x.

A figura 46 apresenta as microestruturas das folhas finas de urânio metálico antes e após o tratamento térmico. Observa-se que a estruturas de grãos apresentou grãos muito finos e equiaxiais após o tratamento térmico. Antes do tratamento térmico, ou seja, após a deformação a frio, os grãos eram sensivelmente maiores, onde se pode observar, ainda que pouco pronunciada, uma texturização na direção de laminação. Por meio de análise de imagens, os contornos de grão foram evidenciados para possibilitar as análises de distribuição de diâmetro circular, razão entre a maior e menor dimensão do grão, e orientação, que mede o ângulo na qual a maior dimensão do grão está orientada. A Figura 46 apresenta as imagens nas quais os contornos de grão foram evidenciados. As imagens originais também estão apresentadas para comparação.

Os resultados deste estudo mostram que o tamanho de grão das folhas finas após o tratamento térmico foi muito menor do que o obtido no processo do ANL [62,63]. Apesar do ANL não apresentar a distribuição do tamanho de grãos da sua amostra, a diferença é da ordem de 5 vezes. Nas amostras produzidas pelo ANL, as microestruturas após a laminação a frio e após o tratamento térmico mostraram-se equivalentes, com tamanho de

grão comparáveis. Neste estudo, o tamanho de grão após a laminação a frio mostrou-se sensivelmente maior do que após o tratamento térmico (ao redor do dobro), porém sensivelmente menor do que o tamanho de grão obtido pelo ANL. As Figuras 48 e 49 apresentam micrografias que comparam os resultados obtidos neste estudo com os resultados obtidos nos desenvolvimentos do ANL [62,63]. Figura 50 apresenta a distribuição do tamanho de grão (diâmetro circular) antes e após o tratamento térmico nas amostras obtidas no presente estudo.

Figura 46 – Microestrutura do urânio metálico. (A) Antes do tratamento térmico e (B) Após tratamento térmico.

Fonte: autor da tese

Figura 47 – Delineamento dos contornos de grão (A) Antes do tratamento térmico
(B) Após o tratamento térmico

(A)

(B)

Fonte: autor da tese

Figura 48 – Comparação entre as estruturas de grãos obtidas neste trabalho (A) e no processo desenvolvido pelo ANL [62,63] (B), após o tratamento térmico.

(A)

(B)

Fonte: Figura (A) autor da tese

Fonte: Figura (B) VANDEGRIFT, G., et al., 2016 e CONNER, C, et al., 1998.

Figura 49 – Comparação entre as estruturas de grãos obtidas neste trabalho (A) e no processo desenvolvido pelo ANL [62,63] (B), após a deformação a frio.

Fonte: Figura A autor da tese

Fonte: Figura B VANDEGRIFT, G., et al., 2016 e CONNER, C, et al., 1998.

Figura 50 – Distribuição do tamanho de grãos.

Fonte: autor da tese

A Figura 51 apresenta a distribuição da razão entre a maior e menor dimensão do grão. Nota-se que essa razão é sensivelmente maior na folha fina após a deformação a frio, sem tratamento térmico, o que indica uma tendência ao alongamento dos grãos. Após o tratamento térmico, não somente o diâmetro circular dos grãos diminui, como também a razão entre a sua maior e menor dimensão, o que indica equiaxialidade. Assim como no caso do tamanho de grão, não foi encontrada na literatura qualquer especificação com relação a essa característica.

Figura 51 – Distribuição da razão entre a maior e menor dimensão do grão (aspect ratio).

Fonte: autor da tese

A Figura 49B não apresenta evidências de texturização na micrografia óptica da amostra do ANL após a deformação a frio (antes do tratamento térmico). Nessa micrografia do ANL, a amostra foi deformada com redução de 30% em espessura. No presente estudo, a redução em espessura na amostra das figuras 46A, 47A, 48A e 49A foi de 52,59% e a variação típica encontrada neste estudo entre 51 e 54%. Apesar de pouco visível, se pode perceber uma leve texturização na direção da laminação, a aproximadamente 45° na micrografia da amostra, apresentada na Figura 47A. Na amostra do ANL deformada a frio com redução de 60% em espessura, apresentada na Figura 52A, a texturização é mais evidente, sendo perceptível visualmente no ângulo de 45°. Após o tratamento térmico, a estrutura de grãos dessa amostra não se mostrou sensível ao nível de deformação a frio (Figura 52B), sendo similar a amostra do ANL deformada a frio com redução de espessura de 30% (Figura 49B).

Figura 52 – Estruturas de grãos obtidas no processo desenvolvido pelo ANL [62,63] com deformação a frio de 60% de redução em espessura. (A) deformada a frio e (B) após o tratamento térmico.

Fonte: VANDEGRIFT, G., et al., 2016 e CONNER, C, et al., 1998.

Esses resultados mostraram que até níveis 50% de redução em espessura na deformação a frio, a texturização não é bem evidenciada nas micrografias que revelam a estrutura de grãos.

A Figura 53 apresenta a distribuição dos ângulos na qual a maior dimensão do grão está orientada. Apesar de realmente não estar bem evidenciada uma texturização, na amostra deformada a frio observa-se uma tendência a existir um ângulo preferencial de

orientação, ainda que pequena. Na amostra tratada termicamente, a distribuição de ângulos mostra-se mais aleatória.

Uma diferença sensível entre o processo estudado neste trabalho e o processo desenvolvido no ANL é o tamanho de grão muito menor obtido após o tratamento térmico. A distribuição do tamanho de grãos obtida no processo desenvolvido pelo ANL não pode ser determinada a partir das micrografias disponíveis, devido à baixa qualidade das imagens. Contudo, com base na barra de calibração apresentada, pode-se inferir que, de modo geral, o tamanho varia entre 60 μm e mais de 100 μm após o tratamento térmico. No presente estudo, o tamanho dos grãos obtido após o tratamento térmico mostrou-se ser muito menor, ao redor de 12 μm , como ilustra a Figura 50. Além disso, a razão entre a maior e menor dimensão do grão (aspect ratio) mostrou um bom grau de equiaxialidade na amostra tratada termicamente no presente estudo. Essa característica também não pôde ser determinada na amostra obtida pelo ANL, devido à má qualidade das imagens.

Figura 53 – Distribuição do ângulo na qual está direcionada a maior dimensão do grão.

Fonte: autor da tese

Antes do tratamento térmico, a amostra obtida pelo ANL com deformação de 30% em espessura, apresentou tamanho de grão parecido com o obtido após o tratamento térmico. Na amostra do ANL deformada a 60% em espessura, devido à má qualidade de imagem, não se pode discutir sobre o tamanho de grão antes do tratamento térmico. Essa é outra diferença de comportamento com relação ao resultado obtido no presente trabalho. A amostra antes do tratamento térmico, deformada 54,24% em espessura, apresentou tamanho de grão consideravelmente maior do que a amostra tratada termicamente, com média quase duas vezes maior, como pode ser observado nas micrografias da Figura 46 e nas distribuições de tamanho de grão apresentadas na Figura 50. Isso é o que se espera como resultado do tratamento térmico, que tem por objetivo promover a recristalização.

A causa para os sensivelmente menores tamanhos de grão obtidos no presente estudo quando comparados ao obtidos pelo ANL não é conhecida. Uma provável explicação seria uma diferença entre os tratamentos termomecânicos adotados nos processos.

Foi realizado por meio de difração de raios x o estudo da textura cristalográfica induzida após a deformação a frio e após tratamento térmico. Para a identificação da fase cristalina e avaliação da variação da textura por meio da razão (111) / (113).

A textura cristalográfica é induzida em materiais laminados tanto a quente quanto a frio e também pelo tratamento térmico. Uma vez que o urânio na fase alfa apresenta estrutura cristalina ortorrômbica ($a = 2,85 \text{ \AA}$, $b = 5,87 \text{ \AA}$, $c = 4,94 \text{ \AA}$), a expansão térmica é anisotrópica (incluindo coeficiente de expansão térmica negativo ao longo do eixo b cristalográfico) e se a folha fina apresentar textura essa propriedade torna-se fundamental para ser considerada do projeto do alvo [66]. Para materiais com ausência de textura, as propriedades macroscópicas são praticamente isotrópicas.

Folhas finas de urânio foram laminadas a frio com 54,24% de redução em 17 passes, e codificada como "Lam frio", e depois tratadas a temperatura de 720 °C por 20 minutos e temperadas em água. Essa amostra foi codificada como LFtêmpera1. A amostra LFtêmpera1 foi novamente temperada nas mesmas condições e gerou a amostra LFtêmpera2, esse processo de dupla tempera é usado em trabalhos disponíveis na literatura [63,64].

Neste trabalho também foi realizado mais dois processos de tratamento térmico diferenciado ao da literatura para analisar a textura, no primeiro foi realizado um tratamento térmico a 720 °C por 20 minutos, e em seguida, a retorta foi retirada do forno e resfriada rapidamente com auxílio de ventilação por 5 minutos (TT5minutos), no segundo

as condições de tratamento térmico foram as mesmas, porém a amostra foi resfriada lentamente por 24 horas (TTlongo). O intuito deste processo diferente ao da literatura foi tentar eliminar o processo de têmpera dupla que torna o trabalho mais moroso.

A figura 54, apresenta os difratogramas das amostras, Lam frio, LFtêmpera 1, LFtêmpera2, TT5minutos e TTlongo. As amostras LFtêmpera 1, LFtêmpera 2, TT5minutos e TTlongo apresentam difratograma de raios x condizentes com a ficha pdf no 89-2765, referente à fase alfa-U. As amostras temperadas também apresentam picos referente a UO_2 (ficha pdf no 78-664), decorrente do tratamento térmico. É possível notar que a concentração de UO_2 aumenta com a repetição do tratamento térmico.

O difratograma da amostra Lamfrio, apresenta textura de uma forma muito acentuada, uma vez que praticamente todas as intensidades dos picos de difração estão alteradas de uma forma muito amplificada, alguns picos de alta intensidade simplesmente desaparecem. As propriedades físicas da folha de urânio metálico, estão muito anisotrópicas e a sua utilização pode ser inviável.

Em seguida, foi determinada a intensidade dos picos (111) e (113) onde foi efetuado os seguintes tratamentos: Subtração do ruído de fundo, eliminação da raia $K\alpha_2$, e integração do pico. Os valores obtidos para a relação (111) / (113) para todas as condições estudadas estão apresentadas na Tabela 9.

Tabela 9: Resultados obtidos por difração de raios x para as relações (111) / (113) das amostras de urânio

Amostra	Relação (111)/(113)
Lam frio	0,51
LFtêmpera1	5,0
LFtêmpera2	6,06
TT5minutos	6,5
TTlongo	1,9

Fonte: autor da tese

Figura 54 - Difratoograma das amostras Lamfrio, LFtêmpera 1, LFtêmpera2, TT5minutos e TTlongo. Os picos de UO_2 são marcados na figura. Também estão marcados os picos referentes aos planos (111) e (113) da fase urânio alfa. Todos os picos não marcados são da fase urânio alfa e não foram marcados para não carregar a figura.

Fonte: autor da tese

Esses resultados mostraram que o material laminado a frio, apresenta textura muito acentuada e que o tratamento térmico com têmpera reduziu a textura. Verificamos também que tratamento térmico com duas têmperas são mais adequados para obtenção de textura ideal conforme informações da literatura que cita a relação ideal igual a 6. Portanto notamos que para eliminar a textura é necessário o tratamento térmico de têmpera e material altamente deformado, corroborando com os estudos obtidos na literatura [63]. Porém, observamos nesse estudo que a nova alternativa de se realizar um tratamento térmico a 720 °C por 20 minutos, e em seguida, resfriar por 5 minutos fora do forno e não se realizar a têmpera, apresentou resultados bem satisfatórios indicando que não há necessidade de realizarmos as duas têmperas para se obter uma estrutura com textura reduzida.

5.8 Montagem do Alvo

O procedimento básico para a montagem do alvo adota, inicialmente, a colocação de uma barreira que tem a função de reter fragmentos de fissão e prevenir a ligação metalúrgica entre a folha de urânio e os tubos de alumínio que compõem o alvo. Em 1995, os primeiros alvos circulares de folhas finas de urânio metálico que foram irradiados na Indonésia não puderam ser desmontados devido ao fato das folhas de urânio terem se ligado metalurgicamente às paredes do alvo. Essa ligação ocorreu devido ao contato físico entre as superfícies e ao fluxo intenso de fragmentos de fissão na superfície da folha de urânio, suficiente para promover uma forte ligação metalúrgica na interface. Concluiu-se, então, que uma barreira deveria ser colocada entre a folha de urânio e as paredes do alvo. Vários metais foram avaliados para uso como barreiras para fragmentos de fissão, chamadas de barreiras de difusão. A finalidade da barreira de difusão é proteger completamente a superfície da folha fina de urânio metálico [30].

O principal requisito para os metais a serem usados como barreira de difusão é, principalmente, de natureza química. Como o metal de barreira se ligará à folha de urânio, ele não deve interferir nas etapas de dissolução e purificação durante o processo de extração do ^{99}Mo . O cobre, níquel, ferro e zinco foram inicialmente selecionados como candidatos para funcionar como barreira. Os três primeiros são adequados apenas para processos de dissolução ácida, enquanto o zinco pode ser usado para processos ácidos ou básicos. O cobre e o níquel foram inicialmente selecionados como barreira de fragmentos de fissão de aproximadamente 7 μm , uma barreira de 10 μm de espessura é suficiente para impedir que os fragmentos de fissão atinjam as superfícies dos tubos de alumínio que compõem o alvo [30]. O cobre foi abandonado como candidato devido à dificuldade de remoção do ^{64}Cu na etapa de purificação do ^{99}Mo [62].

Uma possibilidade para incorporar a barreira de difusão na folha de urânio metálico é a eletrodeposição. A eletrodeposição de zinco e níquel foi estudada já no final da década de 90 [67]. A incorporação da barreira de difusão usando eletrodeposição de Ni e Zn foi desenvolvida com sucesso, obtendo-se camadas depositadas uniformes e aderentes [63,68]. Contudo, devido à perda de urânio relacionada ao processo de eletrodeposição, ao redor de 5%, e ao tempo para efetuar a deposição, o processo de eletrodeposição foi abandonado e foi adotado o processo de envelopamento com folhas de níquel, bem mais rápido. Por esse motivo, neste trabalho, foi adotado o processo de envelopamento da folha fina de urânio metálico com uma fina folha de níquel.

Todo o processo de montagem do alvo foi estudado simulando inicialmente o processo usando uma folha de cobre com espessura similar à espessura especificada para a folha de urânio, de 125 μm . Uma folha de níquel com espessura de 14 μm foi usada como barreira de difusão. Inicialmente, a folha de níquel é cortada de modo que, uma vez dobrada, envolva inteiramente as superfícies da folha fina de urânio metálico, como ilustra a sequência apresentada na Figura 55 para o cobre e Figura 56 para a folha de urânio metálico. Dois milímetros adicionais são deixados nas extremidades laterais e frontal da folha de níquel, as quais são dobradas sobre a folha de urânio, formando-se o envelope.

Os tubos interno e externo, entre os quais será inserida a folha de urânio envelopada com níquel são de alumínio, liga 6061 T6, e são usinados nas dimensões requeridas a partir de tubos comerciais. A geometria do alvo depende do reator que irá irradiá-lo. Neste trabalho, foram definidas as dimensões usadas no alvo desenvolvido pelo ANL [45], apresentadas na Tabela 10.

Tabela 10 – Especificação dimensional dos tubos de alumínio que compõe o alvo [45].

Tubo	Diâmetro Interno (mm)	Diâmetro Externo (mm)
Interno	26,21	27,99
Externo	28,22	30,00

Fonte: HOYER, A., 2013.

Figura 55 – Sequência ilustrando o envelopamento da folha de urânio com a folha de níquel (cobre é usado como simulador). (A) corte da folha de níquel, (B) posicionamento da folha de cobre, (C) dobra do envelope e (D) fechamento do envelope.

(A)

(B)

(C)

(D)

Fonte: autor da tese

Figura 56 – Sequência ilustrando o envelopamento da folha de urânio com a folha de níquel. (A) corte da folha de níquel, (B) dobra do envelope e (C) fechamento do envelope.

(A)

(B)

(C)

Fonte: autor da tese

Neste trabalho foram produzidos tubos internos e externos suficientes para a fabricação de 10 alvos. A especificação do comprimento do alvo acabado é de $152 \pm 1,0$ mm, conforme especificação do ANL [45]. O comprimento inicial dos tubos foi de 175 mm. Esse sobre metal é cortado posteriormente, depois da montagem final do alvo, na preparação para a selagem por solda TIG. Foram usinados rebaixos no centro dos tubos internos, nos quais a folha fina de urânio metálico envelopada deve ser encaixada para a montagem. A profundidade nominal do rebaixo foi definida como sendo a espessura da folha fina, de 125 μm , adicionando-se o valor da folha de níquel dobrada, incluindo as bordas, com espessura total de 56 μm (4 vezes 14 μm). Portanto, a profundidade total nominal do rebaixo foi de 181 μm . A Tabela 10 apresenta os valores dos diâmetros interno e externo dos tubos e a Figura 57 apresenta o desenho esquemático, dos diâmetros interno e externo dos tubos, seus comprimentos totais e a profundidade dos rebaixos. O comprimento do rebaixo foi de 47,60 mm, o mesmo utilizado no projeto do ANL [45]. Deixa-se, portanto uma folga nas extremidades do rebaixo em relação à largura da folha fina, a qual pode variar entre 0,8 a 2,8 mm.

Para a montagem dos alvos, a composição tubos/folha fina foi escolhida de modo a minimizar a folga entre o tubo interno contendo a folha fina envelopada encaixada no rebaixo e o tubo externo, garantindo-se uma folga mínima de 50 μm para possibilitar o fácil deslizamento do tubo interno para o interior do tubo externo, denominada “folga de montagem”. As folhas finas foram escolhidas individualmente, a partir dos dados da Tabela 8, dependendo da sua espessura e da folga de montagem, sendo esta folga obtida através da soma do valor do rebaixo do tubo interno apresentado na tabela 11, e o valor da folga entre as paredes dos tubos obtida na Tabela 12 (folga total), e subtraído o valor da espessura do envelope de $\text{U}^\circ + \text{Ni}$. A composição dos alvos com suas respectivas as folgas estão apresentadas na Tabela 13, onde observamos que todos os alvos atenderam a especificação da folga de montagem mínima.

Tabela 11 – Análise dimensionais dos tubos de alumínio usados neste trabalho para a montagem de alvos.

Conjunto de Tubos		Diâmetro Interno (mm)	Diâmetro Externo (mm)	Comprimento. (mm)	Profundidade Rebaixo (µm)
1	Interno	26,22	28,13	174,90	155
	Externo	28,31	29,96	175,08	
2	Interno	26,14	28,08	175,08	165
	Externo	28,22	29,99	175,06	
3	Interno	26,22	28,13	175,10	185
	Externo	28,27	29,96	175,08	
4	Interno	26,18	28,13	175,14	170
	Externo	28,31	29,98	175,00	
5	Interno	26,30	28,16	174,99	165
	Externo	28,31	29,95	175,14	
6	Interno	26,28	28,19	175,04	185
	Externo	28,32	30,02	174,76	
7	Interno	26,22	28,11	175,02	140
	Externo	28,30	30,02	174,89	
8	Interno	26,24	28,19	174,8	170
	Externo	28,38	29,93	175,11	
9	Interno	26,33	28,21	174,76	155
	Externo	28,38	30,00	174,88	
10	Interno	26,30	28,23	175,1	170
	Externo	28,41	29,96	174,89	

Fonte: autor da tese

Figura 57 – Desenho esquemático dos tubos internos e externos

Fonte: autor da tese

Tabela 12– Folga entre as paredes dos tubos

Conjunto de Tubos	Diâmetro Interno do Tubo Externo (mm)	Diâmetro Externo do Tubo Interno (mm)	Diferença (µm)	Folga entre as paredes dos tubos (Diferença/2) (µm)
1	28,31	28,13	180	90
2	28,22	28,08	140	70
3	28,27	28,13	140	70
4	28,31	28,13	180	90
5	28,31	28,16	150	75
6	28,32	28,19	130	65
7	28,30	28,11	190	95
8	28,38	28,19	190	95
9	28,38	28,21	170	85
10	28,41	28,23	180	90

Fonte: autor da tese

Tabela 13– Composição dos alvos montados

Conjunto de Tubos	Folha Fina		Espessura do Envelope U ^o +Ni	Profundidade do Rebaixo	Folga entre as paredes dos tubos	Folga Total	Folga de Montagem
	Identificação	(μm)					
1*	FF CU 2017	105	161	155	90	245	84
2	FF-U ^o 8B-D	126	182	165	70	235	53
3	FF-U ^o 8C-C	128	184	185	70	255	71
4	FF-U ^o 8C-D	133	189	170	90	260	71
5	FF-U ^o 10-D	130	186	165	75	240	54
6	FF-U ^o 10-E	121	177	185	65	250	73
7	FF-U ^o 11-B	123	179	140	95	235	56
8	FF-U ^o 11-C	122	178	170	95	265	87
9	FF-U ^o 18C-D	126	182	155	85	240	58
10*	FF CU 2018	101	157	170	90	260	103

* Usado para a montagem de folha de cobre para simulação.

Fonte: autor da tese

A montagem dos alvos é realizada manualmente. Para testar o processo de montagem, inicialmente foram montados dois alvos usando folhas de cobre como substitutas da folha fina de urânio metálico, como ilustra a Figura 55. Depois do envelopamento da folha fina, a mesma é encaixada no rebaixo da superfície externa do tubo interno e o conjunto é inserido no tubo externo do alvo. Na superfície externa dos tubos externos foi usinada uma linha que será usada como orientação para a desmontagem do alvo após a irradiação. Na região dessa linha deve estar o espaço livre para o corte na desmontagem, conforme a Figura 58.

Figura 58 – Linha de referência para orientação na desmontagem do alvo após irradiação

Fonte: autor da tese

A operação mais importante e delicada na montagem do alvo é o posicionamento da folha fina envelopada no rebaixo da superfície externa do tubo interno, na qual a folha fina deve envolver o tubo interno para que o conjunto folha fina e tubo interno seja inserido no interior do tubo externo. Essa operação foi primeiramente descrita na publicação de Briyatmoko e colaboradores [32]. A Figura 59 ilustra a operação onde o tubo interno com a folha fina envelopada posicionada é inserido manualmente no interior do tubo externo. Posteriormente, essa operação de montagem foi também descrita por Wiencek e colaboradores [36], ilustrada na Figura 60. Essa técnica de montagem manual tem sido usada até os dias atuais [62].

Figura 59 – Ilustração da montagem manual de um alvo de folha fina de urânio [32].

Fonte: BRIYATMOKO, B., et al., 2007.

Figura 60 – Ilustração da montagem manual de um alvo de folha fina de urânio [36].

Fonte: WIENCEK, T. C.; et al., 2008.

Utilizando-se folhas de cobre como simulador das folhas de urânio, a operação manual para inserção do tubo interno no interior do tubo externo foi realizada sem dificuldade. Contudo, quando a montagem foi realizada usando folhas finas de urânio metálico, dificuldades práticas se apresentaram. A principal dificuldade é ilustrada

claramente na Figura 61, a qual foi reproduzida da mais recente publicação sobre o tema [62], onde a folha fina já envelopada com a folha de níquel (barreira de difusão) não fica bem assentada na superfície externa do tubo interno, dificultando a inserção do conjunto no interior do tubo externo. Na figura pode-se perceber o enrugamento da folha de níquel na folha fina envelopada, além da imperfeição do assentamento da mesma sobre a superfície circular do tubo interno. Essa situação é particularmente dificultada pela tendência da folha fina de urânio metálico, originalmente plana, em retornar à sua forma plana inicial após o seu assentamento na superfície do tubo interno. A folha fina deve ser mantida junto à superfície da circunferência do tubo interno por meio da pressão exercida pelos dedos do operador montador. Qualquer descuido na manutenção dessa pressão ou na uniformidade da distribuição manual da mesma ao redor da circunferência do tubo interno irá causar um emperramento por ocasião da sua inserção no interior do tubo externo, o que exigirá o recomeço da operação de montagem. Além disso, nesse tipo de montagem manual, a folha fina de níquel que funciona como barreira de difusão, tendo espessura de apenas 14 μm , corre grande risco de romper-se, principalmente se ela não estiver perfeitamente dobrada no envelopamento. No caso de rompimento, a folha de níquel deve ser substituída, iniciando-se novamente a operação de montagem. Outra desvantagem da montagem manual relaciona-se à possibilidade da folha fina deformar-se plasticamente nos seus cantos, devido à força excessiva aplicada no caso de emperramento, o que interrompe a montagem e gera retrabalho de endireitamento da folha fina e re-envelopamento com a folha de níquel. Tais problemas ocorreram frequentemente nas tentativas de montagem dos alvos contendo as folhas de urânio, como ilustra a Figura 62 A e B.

Figura 61 – Ilustração da montagem manual de um alvo de folha fina de urânio [62].

Fonte: VANDEGRIFT, G., et al., 2016.

Para solucionar esse problema, neste trabalho foi desenvolvida uma nova metodologia de montagem, usando uma pré-conformação da folha fina de urânio por meio de um dispositivo idealizado para essa função. O objetivo foi garantir o perfeito assentamento da folha fina envelopada sobre a superfície circular do tubo interno sem a necessidade da ação de um operador.

Figura 62 – Defeitos observados neste trabalho durante montagem manual de alvos de folha fina de urânio metálico. (A) Rasgo na folha fina de níquel e (B) Dobra na ponta da folha fina de urânio e níquel

(A) Rasgo na folha fina de níquel

(B) Dobra na ponta da folha fina de urânio e níquel

Fonte: autor da tese

A nova metodologia desenvolvida neste trabalho para facilitar a montagem do alvo baseia-se na conformação da folha fina envelopada para que ela adquira uma forma tubular. A folha fina envelopada é pré-preparada na forma tubular por meio de um dispositivo de calandragem, assumindo a folha fina envelopada um diâmetro ligeiramente inferior ao diâmetro externo do tubo interno na região do rebaixo. Assim, a folha fina calandrada é posicionada e fixada mecanicamente no tubo interno, assentando-se perfeitamente no rebaixo preparado para encaixá-la. Dessa forma, o tubo interno com a folha fina encaixada é inserido no interior do tubo externo sem a necessidade de exercer pressão manual, facilitando e tornando mais segura essa operação. Como resultado da operação de calandragem, a folha de níquel usada no envelopamento da folha fina de urânio metálico apresenta-se assentada na superfície da folha fina, o que evita o dobramento e rasgamento da folha de níquel durante a introdução do tubo interno no interior do tubo externo. Essa situação configura-se, portanto, outra vantagem exibida pela nova metodologia. A metodologia desenvolvida possui características singulares e vantagens em relação ao estado da técnica, tendo em vista que o método proposto simplifica a montagem, diminui a quantidade de retrabalho e, portanto, amplifica a produtividade da fabricação de alvos tubulares usando folhas finas de urânio metálico. O registro do pedido da patente dessa nova metodologia, e do dispositivo associado, foi recentemente efetuado [69].

Nessa nova metodologia, o posicionamento circunferencial da folha fina de urânio metálico é realizado pela ação da própria folha fina pré-deformada por meio de calandragem, dispensando a ação dos dedos do operador para forçar o posicionamento circunferencial da folha ao redor do rebaixo do tubo interno durante a inserção no interior do tubo externo. A Figura 63 apresenta um esquema ilustrando a folha fina de urânio metálico plana envelopada antes da pré-conformação, e após a pré-conformação, assumindo a forma tubular.

Figura 63 – Ilustração da pré-conformação da folha fina envelopada na preparação para a montagem do alvo.

Fonte: autor da tese

A folha fina de urânio metálico pré-conformada é encaixada no rebaixo do tubo interno do alvo de irradiação, como ilustra a Figura 64. Como um exemplo, o diâmetro da folha fina tubular pré-conformada é de 27,75 mm e o diâmetro do tubo interno na região do rebaixo é de 27,82 mm. Dessa forma, a folha fina tubular encaixa-se perfeitamente no rebaixo do tubo interno do alvo de irradiação, fixando-se a ele mecanicamente por meio da deformação elástica da folha fina tubular. Após essa operação, a folha fina de urânio metálico pré-conformada permanece fixa na circunferência do rebaixo do tubo interno do alvo, formando o conjunto interno do alvo de irradiação.

Figura 64 – Ilustração da sequência para posicionamento da folha fina pré-conformada no rebaixo do tubo interno do alvo.

Fonte: autor da tese

A Figura 65 ilustra a montagem do alvo final. O alvo de irradiação é montado sem a necessidade da ação do operador exercendo pressão manual da folha fina de urânio metálico envelopada contra a superfície externa do tubo interno do alvo de irradiação. O conjunto interno do alvo de irradiação, composto pelo tubo interno e a folha fina de urânio pré-conformada já fixada circunferencialmente no seu rebaixo é deslizado para o interior do tubo externo do alvo de irradiação, sendo inserido no seu interior.

Figura 65 – Sequência de operações ilustrando a montagem do alvo com a folha fina pré-conformada fixa no rebaixo do tubo interno do alvo. Note que não é necessária a pressão dos dedos do operador para fixar a folha fina no momento da inserção do tubo interno no tubo externo.

Fonte: autor da tese

A Figura 66 apresenta esquemas do dispositivo usado para a realização da conformação prévia da folha envelopada plana para obtenção da forma tubular. Podem ser vistos o rolo suporte superior (1) e os rolos laterais de dobramento (2 e 3). Em outra vista, podem ser vistos os rolos suporte inferior (4) e superior (1) e o rolo lateral de dobramento (2). Os rolos de suporte possuem na sua extremidade engrenagens (5) de modo que o

acionamento de rotação do rolo suporte superior é transmitido para o rolo suporte inferior, o qual gira em sentido inverso. O acionamento de rotação do rolo suporte superior é realizado manualmente por meio de uma manivela (6). O deslocamento vertical dos rolos laterais de dobramento (2 e 3) é realizado por meio do acionamento manual de parafusos (7), os quais deslocam individualmente os rolos na direção vertical. A posição vertical dos rolos laterais de dobramento (2 e 3) é controlada por meio de sensores de posição (8). O deslocamento horizontal dos rolos laterais de dobramento (2 e 3) é regulado manualmente por meio dos parafusos (9) que deslocam os rolos na direção horizontal. A posição horizontal dos rolos laterais de dobramento (2 e 3) é controlada por meio de escalas (10) gravadas no corpo do dispositivo.

No início do processo de calandragem, a folha envelopada é posicionada entre os rolos suporte superior (1) e inferior (4). A distância entre os rolos suporte é ajustada por meio de parafusos (11) que deslocam ligeiramente o rolo suporte superior (1) na direção do rolo suporte inferior (4), possibilitando o ajuste da distância entre os rolos para que a folha envelopada seja arrastada entre os rolos suporte por meio de atrito. Esse pequeno deslocamento possibilita a realização do ajuste da distância entre os rolos suporte (1 e 4) para introdução da folha envelopada entre eles.

A conformação prévia da folha envelopada é realizada ajustando-se a posição dos rolos laterais de dobramento (2 e 3) e dos rolos suporte (1 e 4). Tais posições são definidas com base na espessura da folha envelopada e no diâmetro requerido da folha fina de urânio pré-conformada. A pré-conformação é realizada por meio de um número não determinado de passadas no dispositivo de calandragem, ajustando-se as posições dos rolos laterais de dobramento (2 e 3) a cada passada até a obtenção do diâmetro requerido da folha fina de urânio pré-conformada. Uma vez definidas a espessura da folha fina envelopada e o diâmetro da folha fina pré-conformada, apenas um passe é suficiente na operação de calandragem.

Figura 66 – Vistas esquemáticas do dispositivo usado para a pré-conformação das folhas finas de urânio metálico

Fonte: autor da tese

É interessante notar que o novo método é aplicável independentemente das características dimensionais da folha fina de urânio metálico a ser usada na montagem do alvo, ou do diâmetro da folha fina pré-conformada. Usando o presente método, e dispositivo associado, foi possível a montagem do alvo de folha fina de urânio metálico sem necessidade de ajuste manual da folha fina durante a operação de inserção do tubo interno (pressão dos dedos do operador), no qual a folha fina de urânio metálico deve ser posicionada circunferencialmente, no tubo externo. A Figura 67 ilustra fotografias do dispositivo usado para a pré-conformação da folha fina envelopada.

Figura 67 – Sequência de operações ilustrando a pré-conformação da folha fina envelopada, conferindo-lhe a forma circular.

Fonte: autor da tese

Adotando-se esse procedimento, foram montados oito alvos usando folhas finas de urânio metálico sem nenhuma dificuldade, sendo que em nenhum caso foi necessário realizar retrabalho. O correto posicionamento da folha fina de urânio metálico é verificado por meio de radiografia. O posicionamento correto da folha fina no rebaixo e a posição da linha de orientação para o corte após a irradiação são verificados. A Figura 68 ilustra radiografias típicas de um alvo montado.

Figura 68 – Radiografias típicas de um alvo após a montagem. (A) cobre e (B) urânio metálico.

Fonte: autor da tese

A Figura 69 ilustra um alvo após a montagem. A folga típica após a montagem está ilustrada. Essa folga, denominada “gap de ar”, deve ser diminuída até valores aceitáveis na etapa de consolidação do alvo (ou expansão).

Figura 69 – Fotografia ilustrando a folga, “gap de ar”, existente antes da etapa de consolidação do alvo.

Fonte: autor da tese

5.9 Consolidação do Alvo

Durante a irradiação, o processo de fissão gera calor que precisa ser dissipado pelo refrigerante do reator. O calor gerado aumenta a temperatura do alvo, provocando a expansão térmica dos materiais do alvo. Como o urânio metálico e o alumínio possuem diferentes coeficientes de expansão térmica, a diferença na expansão térmica tem o potencial de diminuir a pressão de contato entre a folha fina de urânio metálico e o revestimento, permitindo que se desenvolvam vazios entre o revestimento de alumínio e a folha de urânio envolvida na barreira de difusão. Isso aumenta a resistência térmica e, assim, aumenta a temperatura do alvo. Uma vez que as especificações técnicas do reator incluem um limite na temperatura máxima, o aumento da resistência térmica aumenta o

risco da temperatura da folha de urânio exceder os limites operacionais do reator. Isso pode ser agravado pela existência de textura, como já foi discutido.

Portanto, após a montagem do alvo, as folgas remanescentes devem ser minimizadas. Um contato mecânico íntimo, consistente com uma baixa resistência térmica entre a folha de urânio que gera calor e o material do revestimento, é muito importante. Não foi encontrado na literatura um valor de especificação para essa folga, o qual depende das condições de operação de cada reator particular. Wiencek e colaboradores [36] comentam que pequenos vazios presentes no interior dos alvos circulares, também conhecidos como “gap de ar”, representam pouco ou nenhum risco na etapa de irradiação do processo de produção de ^{99}Mo . No entanto, nenhum valor mínimo aceitável é mencionado.

A folga inicial entre os tubos interno e externo é necessária para permitir que o tubo interno deslize facilmente dentro do tubo externo. Para a eliminação das folgas entre a folha fina envelopada e os tubos de alumínio, etapa do processo conhecida como consolidação do alvo, diversas técnicas têm sido desenvolvidas. Porém o princípio da consolidação é o mesmo, o qual consiste em deformar mecanicamente os tubos de alumínio para estabelecer um bom contato entre os componentes do alvo. Após o tubo interno ser inserido no tubo externo, ele deve ser expandido contra a parede interna do tubo externo. O tubo interno deve ser expandido por deformação plástica, enquanto o tubo externo é expandido elasticamente, contido por uma matriz. Isso cria um alvo no qual a folha fina de urânio metálico é mantida firmemente entre os dois tubos, efetuando uma boa transferência de calor pelos tubos interno e externo do alvo.

O método de consolidação por expansor de tração é usado na Universidade do Missouri e está bem descrito na literatura [70]. É composto por uma bomba hidráulica, um macaco acionado hidráulicamente, uma haste de tração, o expansor de tração e a matriz. A matriz é presa a uma dobradiça de modo que ela possa ser alinhada e desalinhada com o cilindro do expansor de tração para facilitar a colocação e a remoção do alvo na matriz.

A superfície interna do alvo é pulverizada com grafite para lubrificação. O subconjunto lubrificado é colocado na matriz que está alinhada com o conjunto expansor/haste de tração. O expansor de tração acionado hidráulicamente é empurrado através do alvo. Depois que o expansor é passado inteiramente através do alvo, ele é removido da haste, que é retirada de volta através do alvo. O alvo consolidado é, então, removido da matriz. Uma alternativa a esse método é utilizar um fuso em substituição à haste de tração acionada hidráulicamente [62].

Um segundo processo de expansão que pode ser usado para consolidação do alvo é a hidroconsolidação [62]. Esse método injeta um fluido sob alta pressão no interior do tubo interno, o que causa a sua expansão. A principal diferença conceitual entre o método do expansor de tração e o método de hidroconsolidação é a maneira pela qual a força radial é aplicada. No método do expansor de tração, o movimento linear do expansor através do alvo é convertido em uma força radial através da geometria do expansor. Uma característica do método do expansor de tração é a geração de calor por atrito entre o expansor e o tubo interno, bem como o alongamento do tubo interno. O método de hidroconsolidação aplica diretamente a força radial e, portanto, não gera aquecimento por atrito, e não alonga o tubo interno. O princípio de consolidação é o mesmo; ter o tubo interno deformado plasticamente e o tubo externo deformado apenas elasticamente.

Uma alternativa a esse método é o processo de compressão radial. Neste caso, o tubo externo é comprimido na folha e no tubo interno. Contudo, nessa abordagem o tubo externo pode desenvolver rugas à medida que ele é comprimido.

Uma terceira técnica de consolidação dos alvos é conhecida como forja rotativa. Essa técnica pode ser usada para comprimir o tubo externo. Um mandril é colocado dentro do tubo interno para fornecer suporte estrutural para que o tubo interno não colapse. Esse método usa um dispositivo rotativo que possui roletes que fazem contato com a superfície externa do tubo externo. Normalmente existem pelo menos quatro roletes, localizados uniformemente ao redor do tubo externo. À medida que os roletes rolam ao redor da circunferência do tubo externo, martelos batem os roletes sobre a sua superfície. Os golpes contínuos comprimem o tubo externo à medida que os roletes giram ao redor da sua superfície. O alvo é então consolidado lentamente até que todo o comprimento do alvo tenha sido comprimido. Essa técnica não tem sido utilizada.

Neste trabalho, tendo em vista sua simplicidade, optou-se por usar a técnica do expansor de tração, usando fuso de rosca. A Figura 70 [62] ilustra em diagrama esquemático do sistema de expansão.

Figura 70 – Princípio da consolidação por expansor por tração [62].

Fonte: VANDEGRIFT, G., et al., 2016.

O princípio de funcionamento do dispositivo é simples. O alvo montado é inserido pela parte inferior da matriz. O fuso é, então, inserido através do alvo e o expansor de tração é rosqueado ao fuso. A porca é girada forçando o expansor de tração através do interior do tubo interno do alvo, forçando a sua deformação plástica contra o tubo externo,

o qual é suportado pela matriz. Portanto, as folgas vão sendo eliminadas à medida que o expansor de tração percorre o comprimento do tubo interno. Para este estudo, um dispositivo foi construído, ilustrado na Figura 71. O projeto desenvolvido para o dispositivo de expansão usado neste estudo é baseado no dispositivo usado pelo ANL [32,62], porém foi concebido para trabalhar na vertical. Dessa forma, quando o processo de expansão é finalizado, o alvo é liberado da matriz e cai por gravidade, facilitando sua remoção. Uma alavanca foi introduzida fixada na porca que é rosqueada no fuso, evitando-se, assim, a necessidade do uso de uma ferramenta para girá-la, facilitando a operação.

Figura 71 – Dispositivo de expansão construído para a consolidação de alvos por expansor por tração.

Fonte: autor da tese

O alvo montado é consolidado introduzindo-o na parte inferior do dispositivo de expansão, que é uma matriz cilíndrica de aço ferramenta com diâmetro interno igual ao diâmetro externo máximo especificado para o alvo acabado, garantindo-se uma folga de 0,05 mm. Isso garante que o diâmetro externo do alvo após a expansão atenderá à especificação. O expansor de tração é então rosqueado na haste que é introduzida no interior do tubo interno do alvo desde a parte superior da máquina. Feito isso, a haste é girada forçando a introdução do expansor de tração no tubo interno, deformando-o plasticamente para aumentar o seu diâmetro. O tubo externo sofre apenas deformação elástica. Dessa forma o tubo interno é forçado contra a parede interna do tubo externo, o que fixa a folha fina envelopada e diminui a folga. O diâmetro do expansor de tração utilizado na consolidação pode variar dependendo da folga entre os tubos de alumínio que compõe o alvo. Portanto, mais de um expansor deve estar disponível. Uma vez que o expansor de tração atravessa todo o tubo interno, o alvo já expandido é liberado da matriz de expansão e cai por gravidade na base do dispositivo. A Figura 72 ilustra as etapas da operação de consolidação do alvo.

Após a consolidação do alvo, a folha fina está fixada na posição correta e o espaço existente entre a folha fina envelopada e as paredes dos tubos concêntricos de alumínio (gap de ar) é diminuído. Como já mencionado, nenhum valor mínimo aceitável é mencionado na literatura para o “gap de ar”, o qual depende das condições de operação do reator e do dispositivo de irradiação do alvo. Neste estudo, o valor estabelecido para o máximo “gap de ar” aceitável foi de 20 μm .

Dependendo da diferença entre os diâmetros interno do tubo externo e externo do tubo interno, um expansor de tração foi selecionado para uso na etapa de consolidação do alvo. O cálculo para a definição do expansor considerou a eliminação da folga entre os tubos interno e externo e o diâmetro interno do tubo interno. O diâmetro do expansor de tração a ser usado deve ser igual ou superior ao diâmetro interno do tubo interno acrescido da diferença entre os diâmetros interno do tubo externo e externo do tubo interno. Quatro expansores de tração foram fabricados para a consolidação dos alvos, cujas dimensões estão apresentadas na Tabela 14. A Figura 73 apresenta uma fotografia de um expansor de tração utilizado neste estudo.

Figura 72 – Fotografias ilustrando as etapas do processo de consolidação dos alvos.

Fonte: autor da tese

Figura 73 – Fotografia ilustrando o expansor de tração utilizado neste estudo.

Fonte: autor da tese

Tabela 14 – Dimensões dos diâmetros dos expansores de tração utilizados neste estudo.

Identificação do Expansor	Diâmetro (mm)
E0	26,30
E1	26,49
E2	26,61
E3	26,65

Fonte: autor da tese

Tabela 15 – Definição do expansor de tração usado na consolidação dos alvos.

Alvo	Diâmetro Interno do Tubo Externo (mm)	Diâmetro Externo do Tubo Interno (mm)	Diferença (mm)	Diâmetro Interno do Tubo Interno (mm)	Expansor selecionado
1*	28,31	28,13	0,180	26,22	1
2	28,22	28,08	0,140	26,14	0
3	28,27	28,13	0,140	26,22	1
4	28,31	28,13	0,180	26,18	1
5	28,31	28,16	0,150	26,30	1
6	28,32	28,19	0,130	26,28	1
7	28,30	28,11	0,190	26,22	1
8	28,38	28,19	0,190	26,24	1
9	28,38	28,21	0,170	26,33	2
10*	28,41	28,23	0,180	26,30	1

* Usado para a montagem de folha de cobre para simulação.

Fonte: autor da tese

Para evitar pressão exagerada na operação de consolidação, foi definido que a expansão fosse realizada em duas fases. Inicialmente, no primeiro passe foi utilizado o menor expansor de tração (E0) para ajuste e, num segundo passe, o expansor de tração selecionado conforme a Tabela 15. A lubrificação foi realizada com álcool etílico absoluto (99%).

Após a expansão foi verificado que o comprimento do tubo interno sofreu deformação plástica longitudinalmente, além de ter seu diâmetro aumentado. O “gap de ar”, o qual era visível antes da consolidação, como ilustra a Figura 68, não pode ser visível após a consolidação, como ilustra a Figura 74.

Após a consolidação, foram obtidas radiografias para verificar se a folha fina de urânio metálico não se deslocou após a consolidação, mantendo o seu posicionamento original após a montagem. A sua posição permaneceu inalterada durante a consolidação de todos os alvos. A figura 75 ilustra uma radiografia do alvo após a consolidação.

Figura 74 – Fotografia ilustrando a folga, “gap de ar”, inexistente após a etapa de consolidação do alvo.

Fonte: autor da tese

Figura 75 – Radiografias típicas de um alvo após a consolidação. (A) cobre; (B) urânio metálico.

Fonte: autor da tese

Para efetuar a análise do “gap de ar”, alvos obtidos após a consolidação foram cortados e analisados por meio de microscopia óptica. Uma seção na região central do alvo foi retirada e embutida em resina epóxi. As seções foram lixadas sucessivamente em lixas 320, 600, 1200 e 1400. Posteriormente, as amostras foram polidas em pasta de diamante com granulometria de 3 μm .

Para verificação do impacto dos defeitos apresentados nas Figuras 38, 39 e 40, decorrentes de vazios presentes nos tabletes originais de urânio metálico, foram preparadas

amostras de um alvo consolidado com folhas finas que apresentaram esse tipo de defeito. Além disso, um alvo montado com folha de cobre também foi analisado.

Durante o decorrer deste estudo, foi disponibilizado pela Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) [71] um alvo montado por meio da técnica de hidroconsolidação [62]. Nesse alvo foi utilizada uma folha de aço inoxidável como simuladora da folha fina de urânio metálico. Uma seção desse alvo também foi preparada para análise metalográfica, com o objetivo de comparar as técnicas de consolidação.

As análises metalográficas demonstraram que o “gap de ar” variou entre 6 e 9 μm no alvo que foi montado a partir de uma folha fina livre de defeitos (alvo 4 da Tabela 13). A espessura da folha fina mostrou-se uniforme, com espessuras ao redor de 125 μm . A Figura 76 apresenta imagens ilustrando a folha fina de urânio metálico montada no alvo. Pode-se observar o “gap de ar” e a camada de níquel que funciona como barreira de difusão. Como pode ser visto na Figura 76, onde a folha fina de urânio metálico (região escura) é de espessura uniforme, o contato é muito bom entre a folha fina, a barreira de difusão de níquel (cinza claro) e os revestimentos de alumínio.

Figura 76 – (A), (B) e (C) Micrografia ilustrando um alvo de folha fina de urânio metálico após a consolidação.

(A)

(B)

(C)

Fonte: autor da tese

O alvo montado usando folha de cobre como simulador (alvo 10 da Tabela 13) mostrou características muito semelhantes ao alvo consolidado a partir da folha fina de urânio metálico com exceção do gap de ar que apresentou valor maior, como ilustra a Figura 77.

Figura 77 – Micrografias ilustrando um alvo, após a consolidação, usando cobre como simulador da folha fina de urânio metálico.

Fonte: autor da tese

O alvo montado com uma folha fina que apresentava os defeitos oriundos de vazios presentes no tablete de urânio metálico original (Figuras 38, 39 e 40) apresentou espessura irregular, com vazios presentes não só entre a camada de níquel e o tubo de alumínio, como também entre a folha de urânio e a camada de níquel. Isso demonstra que esse tipo de defeito inutiliza a folha fina de urânio metálico, sendo inaceitável num alvo. A Figura 78 ilustra um alvo consolidado usando uma folha fina defeituosa.

Figura 78 – Micrografias ilustrando um alvo consolidado usando uma folha fina de urânio metálico defeituosa.

Fonte: autor da tese

Para efeito de comparação, a Figura 79 apresenta uma micrografia de um alvo montado pelo ANL [36]. Nota-se que a sua aparência é comparável ao alvo fabricado neste estudo, apresentado na Figura 78. A micrografia apresentada à direita na Figura 79 ilustra a micrografia de um alvo consolidado usando folhas finas fabricadas pelo método de lingotamento contínuo desenvolvido pelo KAERI [34,35], a qual apresenta sensíveis variações de espessura. Nesse caso, podem ser observados vazios entre as superfícies da folha fina de urânio metálico, da folha de níquel e dos tubos de alumínio interno e externo. A aparência desses defeitos é comparável à aparência dos defeitos observados neste estudo quando o alvo é consolidado a partir de folhas finas defeituosas, ou seja, quando apresentam variações de espessura como as ilustradas na Figura 40, as quais são causadas por vazios presentes nos tabletes originais de urânio metálico. Informações sobre o impacto desse tipo de defeito durante a irradiação do alvo não estão disponíveis na

literatura. De qualquer forma, a existência desse tipo de defeito foi considerada inaceitável no presente estudo.

Figura 79 – Micrografias de alvos consolidados fabricados pelo ANL [36].

Fonte: WIENCEK, T. C.; et al., 2008.

A análise metalográfica do alvo montado por meio da técnica de hidroconsolidação [62] mostrou um excelente contato entre a folha fina, a barreira de difusão e os tubos de alumínio, como ilustra a Figura 80. Não se pode observar vazios, ou “gaps de ar”, mesmo usando maiores aumentos.

Figura 80 – Micrografias (A) e (B) de alvo fabricado pela técnica da hidroconsolidação [62], obtido da IAEA [71].

(A)

(B)

Fonte: autor da tese

5.10 Selagem do Alvo

A selagem das extremidades do alvo é crucial para que os produtos de fissão sejam contidos no interior do alvo até que ele seja aberto para processamento. Duas diferentes técnicas de soldagem têm sido estudadas. O alumínio é um material difícil de soldar devido à rápida formação de uma camada de óxido na sua superfície. A limpeza é muito importante para obter soldas de qualidade.

A soldagem tipo TIG é uma técnica de soldagem comum para o alumínio. É a técnica de menor custo e mais rápida, por isso a mais utilizada na selagem dos alvos. O processo usa uma tocha cercada por uma camada de gás inerte para ajudar a reduzir a formação de óxidos na superfície aquecida. O processo depende muito da habilidade do soldador. São instalados dissipadores de calor ao redor do alvo para garantir uma boa qualidade na solda de selagem. O processo de selagem por meio de soldagem TIG está ilustrado na Figura 81 [23,62]. O alvo gira com uma rotação de 3 rpm. A soldagem é realizada usando corrente contínua de 40 A e a proteção é realizada com um fluxo de gás composto por 90% de hélio e 10% de argônio. É utilizado eletrodo de tungstênio com tório, com diâmetro de 1,6 mm (1/16 de polegada). A distância entre a ponta do eletrodo e a borda do alvo é mantida entre 1,6 e 3,2 mm, o que depende da habilidade do operador.

Figura 81 – Dispositivo de selagem do alvo de folha fina de urânio metálico utilizado pelo ANL [23,62].

Fonte: BRIYATMOKO, B.; et al., 2006.

Fonte: VANDEGRIFT, G., et al., 2016.

Um segundo tipo de soldagem que tem sido considerado é a soldagem por feixe de elétrons Electron Beam Welding (EBW), um processo de soldagem por fusão no qual um feixe de elétrons é direcionado para os dois materiais a serem unidos. O método EBW é realizado sob vácuo e, portanto, é realizado remotamente, o que requer um investimento de capital significativo para a compra do equipamento. A soldagem por feixe de elétrons pode ser usada para fazer uma solda de altíssima qualidade e pode ser aplicada para os níveis de produção requeridos para a produção de alvos [62].

Neste estudo, foi utilizada a soldagem TIG. O alvo é usinado nas duas extremidades que serão seladas. Nessa etapa os cortes são realizados de modo a obter-se a especificação máxima do comprimento do alvo, de 153 mm, conforme a especificação do ANL [44]. Caso a solda final não seja qualificada, um novo corte é realizado para a ressoldagem, diminuindo-se o comprimento do alvo para o valor mínimo especificado, de 151 mm. O corte é realizado num torno. Um dispositivo especial de soldagem foi projetado

e construído para a realização da selagem. Nesse dispositivo, o alvo gira em torno de seu eixo a uma velocidade angular que pode ser variada. A Figura 82 ilustra o dispositivo de selagem utilizado neste estudo. A Figura 83 ilustra o esquema de preparação do alvo para a execução da etapa de selagem.

Figura 82 – Dispositivo de selagem do alvo de folha fina de urânio metálico.

Fonte: autor da tese

Também foram instalados dois dissipadores de calor ao redor do alvo. O esquema de soldagem foi basicamente o mesmo utilizado pelo ANL. Após diversos testes de soldagem, a rotação foi definida em 5 rpm. Foi utilizada corrente contínua de 10 A. Foi utilizado eletrodo de tungstênio de diâmetro 3 mm. A atmosfera de proteção da solda foi argônio puro. Após a execução de diversos testes, a distância entre o eletrodo e a borda do alvo foi definida entre 3 e 5 mm. A qualidade da solda mostrou-se fortemente dependente da habilidade do operador. A Figura 84 ilustra a evolução da qualidade da solda durante o desenvolvimento da etapa de selagem.

A qualidade da solda de selagem obtida neste estudo é comparável à obtida pelo ANL quando a solda TIG é usada na etapa de selagem, como ilustra a Figura 85 [23]. A qualidade da solda de selagem obtida pelo Y-12 National Security Complex com solda TIG [72] está apresentada na Figura 86, também demonstrando que a qualidade da solda de selagem obtida no presente estudo está satisfatória. Na Figura 87 está apresentado um alvo selado por meio de soldagem por feixe de elétrons [62]. Nota-se que a selagem usando a soldagem por EBW resulta consideravelmente mais homogênea e bem delineada.

Neste trabalho se optou por utilizar o processo de solda TIG (Figura 88 A). A etapa de soldagem no presente estudo se mostrou satisfatório, em seguida, realizou-se a usinagem no para o melhor acabamento na extremidade do alvo (Figura 88 B).

Figura 83 – Etapas da preparação para a selagem do alvo de folha fina de urânio metálico.

Dissipador interno

Dissipador externo

Sistema pronto para a solda

Fonte: autor da tese

Figura 84 – Fotografias ilustrando a melhoria da qualidade da solda TIG durante o desenvolvimento da selagem dos alvos.

Fonte: autor da tese

Figura 85 – Fotografia ilustrando a qualidade da solda TIG obtida pelo ANL [23].

Fonte: BRIYATMOKO, B.; et al., 2006.

Figura 86 – Fotografia ilustrando a qualidade da solda TIG obtida pelo Y-12 National Security Complex [72]. À esquerda uma solda de selagem considerada adequada. À direita uma solda de selagem insatisfatória.

Fonte: CREASY, J. T., 2014.

Figura 87 – Fotografia ilustrando a qualidade da solda obtida por feixe de elétrons [62].

Fonte: VANDEGRIFT, G., et al., 2016.

Figura 88 – (A) Tubo soldado por solda tipo TIG; (B) Tubo finalizado após usinagem.

(A)

(B)

Fonte: autor da tese

Uma seção transversal da solda obtida na extremidade do alvo no presente estudo foi inspecionada por meio de metalografia e microscopia óptica. A Figura 89A apresenta a micrografia da seção transversal do alvo na região da solda. Nesta figura também está apresentada a micrografia da solda de selagem obtida segundo o processo do ANL (Figura 89 B) [62].

Figura 89 – Micrografias ilustrando a solda de selagem do alvo. A – Micrografia obtida neste estudo. B – Micrografia do ANL [62].

(A)

(B)

Fonte A: autor da tese

Fonte B: VANDEGRIFT, G., et al., 2016.

Após a selagem, o alvo é inspecionado para verificação de vazamento. Como não estava disponível um detector de fuga de hélio (leak detector), a inspeção não foi realizada. As dimensões finais dos alvos acabados estão apresentadas na Tabela 16. Nota-se que as dimensões internas e externas atendem às especificações do projeto do alvo desenvolvido pelo ANL, apresentado na Figura 4, as quais definem o diâmetro interno entre 26,59 e 26,42 mm, e o diâmetro externo entre 29,85 e 30,15 mm.

Tabela 16 – Dimensões dos alvos fabricados neste estudo.

Alvo	Diâmetro Interno (mm)	Diâmetro Externo (mm)	Comprimento (mm)	Espessura da Folha Fina (μm)
1*	26,43	29,98	152,01	105
2	26,52	30,01	152,14	126
3	26,43	30,02	151,76	128
4	26,46	30,02	152,21	133
5	26,42	29,98	152,11	130
6	26,52	30,02	151,88	121
7	26,48	30,09	151,89	123
8	26,53	29,99	152,03	122
9	26,49	30,10	152,12	126
10*	26,45	30,07	151,91	101

* Usado folha de cobre para simulação de montagem do alvo.

Fonte: autor da tese

Após a verificação de conformidades nas dimensões do alvo e limpeza, o alvo é armazenado em um container de teflon para ser transportado com segurança para o reator, como mostrado na (Figura 90).

Figura 90 - Container de teflon para transporte do alvo

Fonte: autor da tese

6 CONCLUSÕES

O processo de fabricação de alvos tubulares a base de folhas finas de urânio metálico foi estudado satisfatoriamente. Grande experiência foi adquirida na tecnologia de fabricação desse tipo de alvo, preparando-se a infraestrutura mínima requerida para esse processo de fabricação. O trabalho foi desenvolvido com base em especificações internacionais. O desenvolvimento de uma especificação para um alvo específico que possa ser irradiado no Reator Multipropósito Brasileiro – RMB se faz necessário para a continuidade desse trabalho. As seguintes conclusões podem ser enumeradas:

1 – O processo de fabricação dos lingotes de urânio metálico adotado neste trabalho resultou em lingotes com defeitos internos, na forma de vazios. O uso de lingoteira de grafite mostrou resultado superior, em comparação ao uso de lingoteira de cobre. Um estudo suplementar se faz necessário para solucionar esse problema. Os resultados demonstraram que a presença de vazios no lingote primário não é desejável, causando a rejeição das folhas finas produzidas a partir de peças com esse tipo de defeito.

2 - O processo de fabricação das lâminas de urânio por meio de laminação a quente possibilitou a obtenção de lâminas com espessura entre 250 e 300 μ m, apropriadas para a operação posterior de laminação a frio. O processo desenvolvido permitiu a obtenção de lâminas por meio de processamento direto, sem a necessidade de corte e resoldagem, com vantagem sobre o processo internacionalmente adotado.

3 - O uso de óxido de alumínio como material para prevenir caldeamento do tablete de urânio metálico com o material estrutural de aço 1020 mostrou-se eficiente, substituindo com vantagens o uso de óxido de ítrio.

4 - O processo de fabricação das folhas finas de urânio por meio de laminação a frio possibilitou a obtenção de folhas finas de urânio metálico com espessura que atende à especificação internacional. O processo desenvolvido permitiu a obtenção de folhas finas por meio de laminação direta entre os cilindros de laminação, sem a necessidade de uso de chapas de aço inoxidável como material de suporte. Isso permitiu um controle mais preciso da espessura final a ser obtida, com vantagem sobre o processo internacionalmente adotado, e com isso não ocorreu perdas de folhas finas, como reportado na literatura, onde a perda era de até 50%.

5 – O tratamento térmico necessário para a eliminação de textura nas folhas finas de urânio metálico foi desenvolvido satisfatoriamente. A microestrutura obtida após o tratamento térmico apresentou grãos equiaxiais de pequeno tamanho, sensivelmente menores do que o tamanho obtido em trabalhos publicados na literatura aberta. A literatura [63,64] mostrou que a têmpera é usada com eficiência para a eliminação de textura. Porém os estudos realizados neste trabalho mostraram que a realização de um resfriamento rápido após o tratamento térmico de 5 minutos foi suficiente para se eliminar a textura da folha fina de urânio metálico.

6 – O processo de montagem das folhas finas no alvo tubular foi desenvolvido com sucesso. O processo tradicionalmente adotado foi modificado. Foi desenvolvido um processo inovador baseado na pré-conformação da folha fina, conferindo-lhe a forma tubular, facilitando a montagem e diminuindo a necessidade de retrabalho, com vantagem sobre o processo internacionalmente adotado.

7 – O processo de consolidação do alvo por meio de expansão por tração foi desenvolvido e aplicado com êxito. Por meio de radiografia observou-se o posicionamento adequado da folha fina de urânio metálico no interior do alvo tubular, tanto na etapa de montagem como na etapa de consolidação. A folga após a consolidação (“gap de ar”) mostrou-se compatível com a obtida internacionalmente.

8 – O processo de selamento do alvo por meio de soldagem TIG foi desenvolvido com êxito. A qualidade da solda mostrou-se compatível com a qualidade da solda obtida internacionalmente.

9 – As dimensões finais dos alvos tubulares obtidos neste trabalho atenderam à especificação internacional.

7 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

1 – Desenvolver a especificação para um alvo tubular de folhas finas de urânio metálico para operação no RMB.

2 - Estudos com o objetivo de se eliminar a presença de vazios no lingote primário de urânio metálico são necessários. A mudança das dimensões do lingote primário e/ou na sua geometria são possibilidades a serem estudadas. A fusão e lingotamento a vácuo e o uso de uma lingoteira de cobre refrigerada também são possibilidades a serem estudadas.

3 – Desenvolver o processo de eletrodeposição de níquel, substituindo-se a operação de envelopamento. A eletrodeposição deve ser realizada na folha fina pré-conformada na forma tubular. Um dispositivo para realizar essa eletrodeposição deve ser desenvolvido.

4 – Desenvolver o processo de usinagem de tubos de alumínio externo e interno, e rebaxos, com precisão mínima de 5 μm . O objetivo é utilizar um único expansor com as dimensões apropriadas, garantindo-se, assim, uma maior reprodutibilidade na folga final obtida (“gap de ar”).

5 – Desenvolver o processo de consolidação do alvo pelo processo de hidroconsolidação (“hidroforming”), assim como o dispositivo associado.

6 – Desenvolver um procedimento para verificação da qualidade da estanqueidade do alvo montado após a solda de selagem.

7 – Desenvolver um estudo para se avaliar a cinética de recristalização do material laminado e acompanhar o processo de eliminação de textura no material.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Non-HEU production technologies for Molybdenum-99 and Technetium-99m*. IAEA NUCLEAR ENERGY SERIES N°. NF-T-5.4, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, VIENNA, 2013. Disponível em: <http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/Pub1589_web.pdf> Acesso em: 20 mai 2015.

- 2 - PONSARD, B. Mo-99 supply issues: status report and lessons learned. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, 14TH, March 21-25, 2010, Marrakech, Morocco. Disponível em: <<http://www.euronuclear.org/meetings/rrfm2010/transactions/RRFM2010-transactions-s3.pdf>> Acesso em: 18 fev 2014.

- 3 - CAMERON, R.; LOKHOV, A. Y.; WESTMACOTT, C. The supply of medical radioisotopes – an assessment of the market economics, alternative technologies and proposed policy approach to achieving sustainability. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, 15TH, March 20-24, 2011, Rome, Italy. Disponível em: <<http://www.euronuclear.org/meetings/rrfm2011/transactions/transactions-monday.pdf>> Acesso em: 25 fev 2014.

- 4 - EUROPEAN NUCLEAR SOCIETY – ENS. The medical isotope crisis. Disponível em: <<http://www.euronuclear.org/pdf/The-medical-isotope-crisis-2009-09-15.pdf>> Acesso em: 4 out 2013.

- 5 - OSSO Jr, J. A.; TEODORO, R.; DIAS, C. R. B. R.; BEZERRA, R.R.L.; VILLELA. J. L.; CORREIA, PERROTTA, J. A.; PEREIRA, G. A.; ZAPPAROLI Jr, C. L.; MENGATTI, J. Brazilian strategies to overcome molybdenum crisis: present and future perspectives of the Multipurpose Research Reactor. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, 15TH, March 20-24, 2011, Rome, Italy. Disponível em: <<http://www.euronuclear.org/meetings/rrfm2011/transactions/transactions-poster.pdf>> Acesso em: 7 mar 2014.

- 6 – MARQUES, F. L. N; OKAMOTO, M. R. Y.; BUCHPIQUEL, C. A. Alguns Aspectos sobre Geradores e Radiofármacos de tecnécio-99m e seus Controles de Qualidade – *Radiol. Bras* , 30(4), p. 233 – 239, 2001.

- 7 - OSSO, J.A.; DIAS, C.R.B.R.; BRAMBILLA, T.P.; TEODORO, R.; CATANOSO, M.F.; ZINI, J.; BEZERRA, R.R.L.; VILLELA, L.A.; CORREIA, J.L.; IVANOV, E.; CARVALHO, F.M.S.; POZZO, L.; SQUAIR, P.L.; MENGATTI, J. "Production of ⁹⁹Mo at IPEN-CNEN/SP-Brazil". In: 2013 TOPICAL MEETING ON MOLYBDENUM-99 TECHNOLOGICAL DEVELOPMENT, Chicago, Illinois, April 1-4, 2013. Disponível em:
<http://mo99.ne.anl.gov/2013/pdfs/Mo99%202013%20Web%20Presentations/S9-P1_Osso.pdf> e
<http://mo99.ne.anl.gov/2013/pdfs/Mo99%202013%20Web%20Papers/S9-P1_Osso_Paper.pdf> Acesso em: 11 abr 2015.

- 8 - CONTURBIA, G. L.C. R. *Tecnologia de fabricação de alvos de aluminetos de urânio para produção de Mo-99*. 2017 103 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP, São Paulo. Disponível em: <<http://www.teses.usp.br/teses/disponiveis/85/85134/tde-29012018-100507/en.php>> Acesso em: 10 jan. 2017.

- 9 - WU, D.; LANDSBERGER, S.; VANDEGRIFT, G. F. Progress in chemical treatment of LEU targets by the modified CINTICHEM process. International RERTR Meeting. Seoul, Korea, October 7-10, 1996. Disponível em:
<<http://www.rertr.anl.gov/99MO96/WU96.PDF>> Acesso em: 23 abr 2014.

- 10 - OBADIA, I. J.; PERROTTA, J. A. A sustainability analysis of the Brazilian Multipurpose Reactor project. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, 14TH, March 21-25, 2010, Marrakech, Morocco. Disponível em:
<<http://www.euronuclear.org/meetings/rrfm2010/transactions/RRFM2010-transactions-s6.pdf>> Acesso em: 16 ago 2015.

- 11- TRAVELLI, A. The U.S. reduced enrichment research and test reactor (RERTR) program. International meeting on advance fuel fabricators technology for research and test reactors; Argonne, IL (United States), 9-10 Nov, Argonne National Lab., pp.3-18. ANL/RERTR/TM, 1, 1978.

- 12 - STAPLES, P. Global threat reduction initiative's reactor conversion programs cooperation methodologies and approaches. International symposium on nuclear security; Vienna (Austria); 30 Mar - 3 Apr 2009; 141 p. 77. IAEA-CN-166/52, 2009.

- 13 - DURAZZO, M.; RIELLA, H. G. *Procedures for manufacturing nuclear research reactor fuel elements*. OmniScriptum GmbH & Co. KG, Saarbrücken, Germany. 2015.

- 14 - KAUFMAN, A. R. *Nuclear reactor fuel elements, metallurgy and fabrication*. New York, N.Y. Interscience, 1962.

- 15 - CUNNINGHAM, J. E.; BOYLE, E. J. MTR-Type fuel elements. International Conference on Peaceful uses atomic energy. Geneva, August 8 to 20, 1955. V. 9: Reactor technology and chemical processing. UNITED NATIONS. New York, N.Y, p. 203-7, 1956.
- 16 - KOHUT, C.; FUENTE, M.; ECHENIQUE, P.; PODESTA, D.; ADELFGANG, P. Targets development of low enrichment for production of Mo99 for fission. International RERTR Meeting. Las Vegas, Nevada, USA, October 1-6, 2000. Disponível em: <<http://www.rertr.anl.gov/Web2000/Title-Name-Abstract/AAbstracts2.html>> Acesso em: 10 set 2015.
- 17 - CESTAU, D. M.; CRISTINI, P. R.; CARRANZA, E.; CESTAU, J.; BAVARO, R.; BRONCA, M.; CENTURIÓN, R.; NOVELLO, A. HEU and LEU cost comparison in the production of Molybdenum-99. International RERTR Meeting. Washington, DC, USA, Oct 5-9, 2008.
- 18 - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Fission Molybdenum for Medical Use. Proc. IAEA Technical Meeting Committee, Karlsruhe, 13-16 October, IAEA-TECDOC-515, 1987.
- 19 - VANDEGRIFT, G. F.; BAKEL, A. J.; THOMAS, J. W. Overview of 2007 ANL progress for conversion of HEU-based Mo-99 production as part of the U.S. global threat reduction conversion program. International RERTR Meeting. Prague, Czech Republic, September 23-27, 2007. Disponível em: <<http://www.rertr.anl.gov/RERTR29/index.html>> Acesso em: 10 mai 2015.
- 20 - CONNER, C.; LEWANDOWSKI, E. F.; SNELGROVE, J. L.; LIBERATORE, M. W.; WALKER, D. E.; WIENCEK, T. C.; MCGANN, D. J.; HOFMAN, G. L.; VANDEGRIFT, G. F. Development of annular targets for 99Mo production International RERTR Meeting. Budapest, Hungary, October 3-8, 1999. Disponível em: <<http://www.rertr.anl.gov/Web1999/Abstracts/Program.html>> Acesso em: 20 set 2014.
- 21 - WIENCEK, T. C.; HOFMAN, G. L.; WOOD, E. L.; WU, C. T.; SNELGROVE, AND J. L. LEU 99Mo target fabrication and testing: Overview, status and plans. International RERTR Meeting. Williamsburg, Virginia, USA, September 18-23, 1994. Argonne National Laboratory, August 1997, p. 78. ANL/RERTR/TM-20. Disponível em: <http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/29/036/29036183.pdf> Acesso em: 30 set 2014.
- 22 - SOLBREKKEN, G. L.; TURNER, K.; GOVINDARAJAN, S.; MACAREWICZ, P.; ALLEN, C. Development, qualification, and manufacturing of LEU-foil targetry for the production of Mo-99. In: INTERNATIONAL TOPICAL MEETING ON RESEARCH REACTOR FUEL MANAGEMENT, 15TH, March 20-24, 2011, Rome, Italy. Disponível em: <<http://www.euronuclear.org/meetings/rrfm2011/transactions/RRFM2011-transactions.pdf>> Acesso em: 7 nov 2014.

- 23 - BRIYATMOKO, B.; SRIYONO, B.; GUNAWAN, A. H.; LUBIS, H.; MUTALIB, A.; HAMBALI, A. Experiences of HEU to LEU Mo-99 Production Conversion. IAEA Meeting, 2006. Disponível em:
<<http://www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/Technical-Areas/RRS/documents/mo99/BRIYATMOKOmo99CM.pdf>> Acesso em: 8 nov 2014.

- 24 - BRIYATMOKO, B.; SUDARMADI; MUTALIB, A. Indonesia's program for conversion of Mo-99 production to LEU fission. In: SYMPOSIUM ON MINIMISATION OF HEU IN THE CIVILIAN SECTOR, June 17-20, 2006, Oslo. Disponível em:
<https://norwayportal.mfa.no/NR/rdonlyres/EC9F5DE51CE947AF88C060C5E1865D8A/60587/Briyatmoko_Presentation_Indonesias_Program_for_Con.pdf> Acesso em: 9 dez 2014.

- 25 - PACIFIC NORTHWEST NATIONAL LABORATORY. In: WOSMIP II – Workshop on Signatures of Medical and Industrial Isotope Production. U. S. Department of Energy. November 2011. Report PNNL-21052. Disponível em:
<<http://wosmip.pnnl.gov/WOSMIPII2011FinalReport.pdf>> Acesso em: 15 dez 2014.

- 26 - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Production and Supply of Molybdenum-99. Annex to the Nuclear Technology Review 2010. Disponível em:
<https://www.iaea.org/About/Policy/GC/GC54/GC54InfDocuments/English/gc54inf-3-att7_en.pdf> Acesso em: 14 jan 2015.

- 27 - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. CRP on Production of Mo-99 from LEU or Neutron Activation. 2005-2011. Disponível em:
<<http://www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/Technical-Areas/RRS/mo99.html>> Acesso em: 14 jan 2015.

- 28 - BROWN, M. A.; JERDEN JR., J. L.; GELIS, A. V.; STEPINSKI, D. C.; WIEDMEYER, S.; YOUKER, A.; HEBDEN, A.; VANDEGRIFT, G. F. Development of frontend processing to allow use of high-density LEU foil targets in current Mo-99 production facilities. In: 2014 TOPICAL MEETING ON MOLYBDENUM-99 TECHNOLOGICAL DEVELOPMENT, June 24-27, 2014, Washington D.C. Disponível em:
<<http://mo99.ne.anl.gov/2014/pdfs/papers/S11P3%20Paper%20Brown.pdf>> e
<<http://mo99.ne.anl.gov/2014/pdfs/presentations/S11P3%20Presentation%20Brown.pdf>> Acesso em: 12 mar 2015.

- 29 - MARSHALL, S. L., REDEY, L., VISSERS, D. R., VANDEGRIFT, G. F., and MATOS, J. E., Continuing Investigations on Electrochemical Preparation of LEU Targets for 99Mo Production, Proceedings of the 1988 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, San Diego, California, September 18-24, ANL/RERTR/TM-13, 1988.

- 30 - HOFMAN, G. L., WIENCEK, T. C., WOOD, E. L., SNELGROVE, J. L., SURIPTO, A., NASUTION, H., LUFTI-AMIN, D., GOGO, A. "Irradiation Tests of ⁹⁹Mo Isotope Production Targets Employing Uranium Metal Foils," 19th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, October 7-10, 1996, Seoul, Korea, 1996.

- 31 - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. "Production technologies for molybdenum-99 and technetium-99m". INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, VIENNA, 1999. Disponível em: <http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/te_1065_prn.pdf> Acesso em: 5 abr 2014.

- 32 - BRIYATMOKO, B.; GUSWARDANI, B.; PURWANTA, S.; PERMANA, S.; BASIRAN, D.; KARTAMAN; M. Indonesia's current status for conversion of Mo-99 production to LEU fission. International RERTR Meeting. Prague, Czech Republic, September 23-27, 2007. Disponível em: <http://www.rertr.anl.gov/RERTR29/Abstracts/S6-1_Briyatmoko.html> Acesso em: 6 mar 2014.

- 33 - SCHRADER, R.; KLEIN, J.; MEDEL, J.; MARÍN, J.; LISBOA, J.; BIRSTEIN, L.; AHUMADA, L.; CHANDÍA, M.; BECERRA, R.; ERRAZU, X.; ALBORNOZ, C.; SYLVESTER, G.; JIMÉNEZ, J.C. Status of the Chilean implementation of the modified Cintichem process for fission ⁹⁹Mo production using LEU. International RERTR Meeting. Washington, DC, USA, October 5-9, 2008. Disponível em: <<http://www.rertr.anl.gov/RERTR30/index.shtml>> Acesso em: 6 mar 2014.

- 34 - KIM, K. H.; SON, M.K.; OH, S. J.; LEE, D. B.; LEE, B. C.; KIM, C. K.; SOHN, D. S. Development of the fabrication technology of wide uranium foils for Mo-99 irradiation target by cooling-roll casting method. International RERTR Meeting, Vienna, Austria, November 7-12, 2004. Disponível em: <<http://www.rertr.anl.gov/RERTR26/Abstracts/58-Kim.html>> Acesso em: 11 jun 2014.

- 35 - KIM, K. H.; OH, S. J.; LEE, D. B.; LEE, B. C.; KIM, C. K.; SOHN, D. S. An investigation of the fabrication technology for uranium foils by cooling-roll casting. International RERTR Meeting, Chicago, USA, 5-10 October, 2003. Disponível em: <<http://www.rertr.anl.gov/RERTR25/HTML/KHKim.html>> Acesso em: 11 jun 2014.

- 36 - WIENCEK, T. C.; VANDEGRIFT, G. F.; BAKEL, A.; LEYVA, A. A.; HEBDEN, A. S. Status and progress of foil and target fabrication activities for the production of ⁹⁹Mo from LEU. International RERTR Meeting. Washington, DC, USA, October 5-9, 2008. Disponível em: <<http://www.rertr.anl.gov/RERTR30/index.shtml>> Acesso em: 18 set 2014.

- 37 - MUSHTAQ, A.; IQBAL, M.; BOKHARI, I. H.; MAHMOOD, T. Low enriched uranium foil plate target for the production of fission Molybdenum-99 in Pakistan Reactor-1. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B 267, p. 1109-1114, 2009.

- 38 - CREASY, J. Update on the development, testing, and manufacture of high density LEU-foil targets and processing for the production of Mo-99. In: 2013 TOPICAL MEETING ON MOLYBDENUM-99 TECHNOLOGICAL DEVELOPMENT, Chicago, Illinois, April 1-4, 2013. Disponível em: <http://mo99.ne.anl.gov/2013/pdfs/Mo99%202013%20Web%20Presentations/S7-P2_Creasy.pdf> Acesso em: 17 out 2015.

- 39 - UHM, Y.R.; RYU, H.J.; LEE, J. S.; CHOI, S.J. Process Development of Fission Mo in Korea, In: 2013 TOPICAL MEETING ON MOLYBDENUM-99 TECHNOLOGICAL DEVELOPMENT, Chicago, Illinois, April 1-4, 2013. KAERI Disponível em: <http://mo99.ne.anl.gov/2013/pdfs/Mo99%202013%20Web%20Presentations/S6-P1_Uhm.pdf> Acesso em: 17 out 2015.

- 40 - SOLBREKKEN, G., TURNER, K., ALLEN, C., Engineering of LEU-Foil Based Mo-99 Target for High Volume Production, International RERTR Meeting, 1-5 November, Beijing, China, 2009.

- 41 - TURNER, K., SOLBREKKEN, G., ALLEN, C., Thermal-Mechanical Analysis of Annular Target Design for High Volume Production of Molybdenum-99 Using Low-Enriched Uranium, IMECE2009-13238, Proc. ASME International Mechanical Engineering Congress & Exposition Lake Buena Vista, ASME, New York, 2009.

- 42 - ALLEN, C.W., BUTLER, R.A., JAROUSSE, C., FALGOUX, J.L., Feasibility Development Program, LEU-Foil Plate Target for the Production of Molybdenum-99, **International RERTR Meeting**, 23-27 September, Prague, Czech Republic, 2007.

- 43 - TURNER, K., SOLBREKKEN, G., ALLEN, C. Thermal-Mechanical Analysis of Varying Boundary Conditions on a LEU Foil Based Molybdenum-99 Plate Processing Target, **Proc. ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition**, Vancouver, IMECE2010-39393, ASME, New York, 2010.

- 44 – SCHOVERI, R. M.; DOMIENIKAN, C.; TOLEDO, F.; ANDRADE, M. L. G.; STANOJEV PEREIRA, M. A.; PLUGLIESI, R. The New Facility for Neutron Tomography of IEN-CNEN/SP and its Potencial to Investigate Hydrogenous Substances. *Applied Radiation and Isotopes*, 84, p. 22 – 26, 2014.

- 45 – HOYER, A. *An Investigative approach to explore optimum assembly process design for annular targets carrying LEU foil*. Master of Science thesis presented to the Faculty of the Graduate School at the University of Missouri – Columbia. December 2013.

- 46 – LISBOA, J. R., MARIN, J., BARRERA, M. E., CIFUENTES, G. Manufacturing of Annular Targets Made of LEU Foil Coated with Electrodeposited Nickel. *Procedia Materials Science* 8, 434–441, 2015.

- 47 –STEPNIK, B., BLAY, C., BOURDAT, G., COLOMB, P., JAROUSSE, C., KOCHER, A., GESLIN, D. Industrialization of LEU 99-Mo target production in AREVA-CERCA. TOPICAL MEETING ON MOLYBDENUM-99 TECHNOLOGICAL DEVELOPMENT Mo-99 2013. April 1-5, Embassy Suites Downtown - Lakeshore Chicago, Illinois, 2013.
- 48 –JOLLAY, L., CREASY, C., ALLEN, J., SOLBREKKEN, G. Development, qualification, and manufacturing of LEU-foil targetry for the production of Mo-99. 1st ANNUAL MOLYBDENUM-99 TOPICAL MEETING Mo-99 2011. December 4-7, La Fonda Hotel Santa Fe, New Mexico, 2011.
- 49 – HARPER, J., WILLIAMS, A. E. Factors influencing the magnesium reduction of uranium tetrafluoride. Extraction and Refining of Rarer Metals. London: The Institute of Mining and Metallurgy; p. 143-62, 1957.
- 50 - KATZ, J. J., RABINOWITCH, E. Part 1 - The elements, its binary and related compounds. The Chemistry of Uranium. New York: McGraw-Hill; 1951.
- 51 - HUET, H., LORRAIN, C. Magnesothermal process for preparation of metallic uranium. *Energ Nucl-Paris*. 9:181, 1967.
- 52 - KUBASCHEWSKI, O. High-Temperature Reaction Calorimetry - Potentialities, Limitations and Application of Results. *Thermochim Acta*. 22:199-209, 1978.
- 53 - RAND, M. H., KUBASCHEWSKI, O. *The thermochemical properties of uranium compounds*. London: Oliver & Boyd; 1963.
- 54 – FRAJNDLICH, E. U. C., SALIBA-SILVA, A. M., ZORZETTO, M. A. Alternative route for UF₆ conversion towards UF₄ to produce metallic uranium. 1998 International Reduced Enrichment for Test Reactor Conference, Sao Paulo, Brazil, October 18-23, 1998.
- 55 – SALIBA-SILVA, A. M., DURAZZO, M., URANO DE CARVALHO, E. F., RIELLA, H. G. Fabrication of U₃Si₂ powder for fuels used in IEA-R1 nuclear research reactor. *Materials Science Forum*. 591-593:194-9, 2008.
- 56 – PERROTTA, J. A., NETO, M. A., DURAZZO, M., SOUZA, J. A. B., FRAJNDLICH, R. Irradiation experience of IPEN fuel at IEA-R1 research reactor. The 1998 International Reduced Enrichment for Test Reactor Conference, Sao Paulo, Brazil, October 18-23, 1998.
- 57 – SALIBA-SILVA, A. M., SOUZA, J. A. B., FRAJNDLICH, E. U. C., PERROTTA, J. A., DURAZZO, M. First results of U₃Si₂ production and its relevance in the power scaleup of IPEN research reactor IEA-R1m. The 1997 International Reduced Enrichment for Test Reactor Conference, Jackson Hole, WI, 1997.

- 58 –BELTRAN, A. D., RIVAZ DIAZ, M., SANCHEZ, A. F. Fabricación de uranio metal. Energia Nuclear - Publicacion Bimestral de la Junta de Energia Nuclear (España). 1972:294-320, 1972.
- 59 – DURAZZO, M., SALIBA-SILVA, A. M., MARTINS, I. C., URANO DE CARVALHO, E. F., RIELLA, H. G. Manufacturing low enriched uranium metal by magnesiothermic reduction of UF₄. Annals of Nuclear Energy 110, 874–885, 2017.
- 60 – WIENCEK, T. C., HOFMAN, G. L. Development of Uranium Metal Targets for 99Mo Production, Proceedings of the 1993 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR) held in Oarai, Japan on October 4-7, 1993, JAERI –M 94-042, Japan Atomic Energy Research Institute, March 1994, p. 385, 1994.
- 61 – WIENCEK, T. C., VANDEGRIFT, G. F., AKEL, A. Facility Design to Produce Low-Enriched Uranium Targets for the Production of 99Mo Medical Radioisotopes, ANL/CSE-13/32, Argonne National Laboratory, January 19, 2009. Disponível em: <<http://www.ipd.anl.gov/anlpubs/2013/10/77307.pdf>> Acesso em: 10 out 2015.
- 62 – VANDEGRIFT, G., BROWN, M. A., JERDEN, J. L., GELIS, A. V., STEPINSKI, D. C., WIEDMEYER, S., YOUKER, A., HEBDEN, A., SOLBREKKEN, G., ALLEN, C., ROBERTSON, D., EL-GIZAWY, S., GOVINDARAJAN, S., HOYER, A., MAKAREWICS, P., HARRIS, J., GRAYBILL, B., GUNN, A., BERLIN, J., BRYAN, C., SHERMAN, S., HOBBS, R., GRIFFIN, F., CARBAJO, J., FREELS, J., CHANDIER, D, HURT, C. J., WILLIAMS. P. Low-Enriched Uranium High-Density Target Project: Compendium Report, ANL/NE-16/15, Argonne National Laboratory, September, 2016.
- 63 – CONNER, C., LIBERATORE, M. W., MUTALIB, A., SEDLET, J., WALKER, D., VANDEGRIFT, G. F. Progress in Developing Processes for Converting 99Mo Production from Highto Low-Enriched Uranium. Proceedings of the 1998 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR) held in Sao Paulo, Brazil on October 18–23, 1998, Disponível em:><http://www.rertr.anl.gov/Mo99-98/CConner.pdf>> Acesso em: 10 dezembro 2016.
- 64 – WIENCEK, T. C. Method to seal reactive materials under vacuum. Uchicago Argonne, Llc.US Patent 7350280 B2. 2008.
- 65 – LEAL NETO, R. M., ROCHA, C.J., URANO DE CARVALHO, E. F., RIELLA, H.G., DURAZZO, M. Investigation of powdering ductile gamma U-10 wt%Mo alloy for dispersion fuels. J. Nucl. Mat. 445, 218–223, 2014.

- 66 – EINHORN, J. R. *A Survey and Comparison of Methods for Quantitative Texture Analyses*, 2014, 100p. Theses (the Faculty of the School of Engineering and applied Science), University of Virginia. Disponível em:
<https://libraetd.lib.virginia.edu/downloads/1g05fb752?filename=1_Einhorn_John_2017_MS.pdf> Acesso em: 15 abr. 2017.
- 67 – SMAGA, J. A., SEDLET, J., CONNER, C., LIBERATORE, M. W., WALKER, D. E., WYGMANS, D. G., VANDERGRIFT, G. F. Electroplating Fission-Recoil Barriers onto LEU-Metal Foils for ⁹⁹Mo-Production Targets. Proceedings of the 1997 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR) held in Jackson Hole, WI, on October 5–11, 1997, Disponível em:
<<https://www.rertr.anl.gov/Fuels97/JSmaga.pdf>> Acesso em: 19 mai 2015.
- 68 – VANDEGRIFT, G. F., CONNER, C., HOFMAN, G. L., LEONARD, R. A., MUTALIB, A., SEDLET, J., WALKER, D. E., WIENCEK, T. C., SNELGROVE, J. L. Modification of Targets and Processes for Conversion of ⁹⁹Mo Production from High- to Low-Enriched Uranium, Ind. Eng. Chem. Res., 39, pp. 3140–3145, 2000.
- 69 – DURAZZO, M., SOUZA, J. A. B., IANELLI, R. F., TAKARA, E. M., GARCIA NETO, J. S., SALIBA-SILVA, A. M. Dispositivo e Método para Montagem de Alvos de Urânio Metálico para Produção de Mo-99. Instituto Nacional da Propriedade Industrial. Março 2018. BR102018005860-6, 2018.
- 70 – EL-GIZAWY, A. S., BERLIN, J. K., GRAYBILL, B. Robust Design of Assembly Process of Targets Carrying LEU Foils for Production of Mo-99, Transactions of the American Nuclear Society, Vol. 105, pp. 364–366, 2011.
- 71 – OSSO JR., J. A. Comunicação Pessoal.
- 72 – CREASY, J. T. Update On The Development, Testing, And Manufacture Of High Density LEU-Foil Targets For The Production Of Mo-99. United States: N. p., june, 2014. Disponível em:
<<https://mo99.ne.anl.gov/2014/pdfs/presentations/S10P1%20Presentation%20Creasy.pdf>> Acesso em: 16 fev 2017.

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Diretoria de Pesquisa, Desenvolvimento e Ensino
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária CEP: 05508-000
Fone/Fax(0XX11) 3133-8908
SÃO PAULO – São Paulo – Brasil
<http://www.ipen.br>

O IPEN é uma Autarquia vinculada à Secretaria de Desenvolvimento, associada à Universidade de São Paulo e gerida técnica e administrativamente pela Comissão Nacional de Energia Nuclear, órgão do Ministério da Ciência, Tecnologia e Inovação.