

# RECUPERAÇÃO E PURIFICAÇÃO DO URÂNIO UTILIZADO EM ALVOS PARA A PRODUÇÃO DE $^{99m}\text{Tc}$ PARTE I - ESTUDOS PRELIMINARES

Inez Cristina de Oliveira e Jorge Eduardo de S. Sarkis

IPEN/CNEN-SP  
Travessa R 400 Cidade Universitária  
05508-900 São Paulo, SP

## RESUMO

Nos últimos anos os radioisótopos e radiofármacos têm sido cada vez mais utilizados em medicina. Cerca de 90% das aplicações referem-se a utilização do  $^{99m}\text{Tc}$  para diagnósticos de tumores. Um método de obtenção deste radionuclídeo por meio da fissão do nuclídeo  $^{235}\text{U}$ , formando o radioisótopo  $^{99}\text{Mo}$  seguido de emissão  $\beta^-$ , vem sendo estudado no IPEN. Entretanto neste processo apenas 1% do Urânio, que é altamente enriquecido (93%) é fissionado. Desta forma faz-se necessário a sua recuperação e purificação para posterior reutilização.

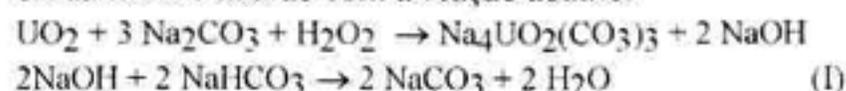
Neste trabalho estuda-se a recuperação do urânio não fissionado, a partir da dissolução de  $\text{UO}_2$  em meio alcalino ( $\text{CO}_3^{2-}/\text{HCO}_3^-$ ) com formação do íon complexo  $[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3]^{4-}$ , e sua posterior purificação via cromatografia de troca iônica em colunas com resina aniônica Bio-Rex5 condicionadas em meio carbonato; serão discutidos os diversos parâmetros que influenciam na etapa de dissolução tais como: Tempo, Temperatura, pH, Concentração dos reagentes e Concentração do agente oxidante. Na etapa de purificação serão discutidos: Relação  $\text{U}:\text{CO}_3^{2-}$ , pH, Fluxo, e meio de percolação.

## INTRODUÇÃO

Nos últimos anos a Medicina Nuclear tem tido notável crescimento, e como consequência cresceram as necessidades tanto de Radioisótopos como também de Radiofármacos. O  $^{99}\text{Mo}$ , como gerador de  $^{99m}\text{Tc}$ , é um radioisótopo largamente utilizado para fins médicos, na fabricação de radiofármacos. Cerca de 90% das aplicações referem-se a utilização do  $^{99m}\text{Tc}$  para diagnósticos de tumores e investigações funcionais de órgãos[1] Tecnicamente existem dois métodos para a obtenção do  $^{99}\text{Mo}$ . Um dos métodos consiste na reação  $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ , utilizando o isótopo natural  $^{98}\text{Mo}$  enriquecido ou não, tendo uma atividade específica muito baixa, da ordem de 10 - 100 GBq por grama de  $^{99}\text{Mo}$ . O outro método é através da reação de fissão  $^{235}\text{U}(n,f)^{99}\text{Mo}$ , resultando em atividades específicas da ordem de dez mil vezes maiores do que pelo primeiro processo[2]. Por fissão, apenas 1% do Urânio, ainda que enriquecido (93%), é fissionado. Desta forma a recuperação e purificação são questões de ordem

econômica e de segurança nuclear. Quando se pretende a fabricação de novos alvos a separação dos produtos de fissão (P.F.), tais como  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$  e  $^{103}\text{Ru}$ , se torna essencial.

O processo de recuperação do  $^{235}\text{U}$ , baseia-se no método desenvolvido por Sameh e colaboradores[3] descrito na Fig. 1. Após a dissolução dos alvos a serem recuperados e sua posterior filtração, o precipitado retido no filtro sinterizado de aço inox, contém além de  $^{235}\text{U}$ , óxidos insolúveis de terras raras, alguns produtos de fissão como Zr, Nb, Ru e Rh, mais emissores  $\alpha$  de Np e Pu, além de diuranatos de sódio formados[2]. Para obter uma recuperação eficiente do urânio, estudou-se as condições que influenciam a etapa de dissolução em meio carbonato/bicarbonato de sódio[4,5] com  $\text{H}_2\text{O}_2$  como agente oxidante. De acordo com a reação abaixo:



A etapa de descontaminação da solução, é realizada via troca iônica, utilizando-se 2 colunas com resina aniônica Bio-Rex5 condicionada na forma  $\text{CO}_3^{2-}$ . Na

primeira coluna ocorre a retenção dos produtos de fissão contaminantes. A seguir, muda-se a relação  $U/CO_3^{2-}$ , conseguindo a retenção do urânio na forma de um íon complexo de tricarbonato de urânio quadrivalente na segunda coluna. A eluição é realizada com  $HNO_3$  4 Molar[6,7]. A fase final de purificação do Urânio é obtida por cromatografia de extração, numa modificação do Processo Purex.

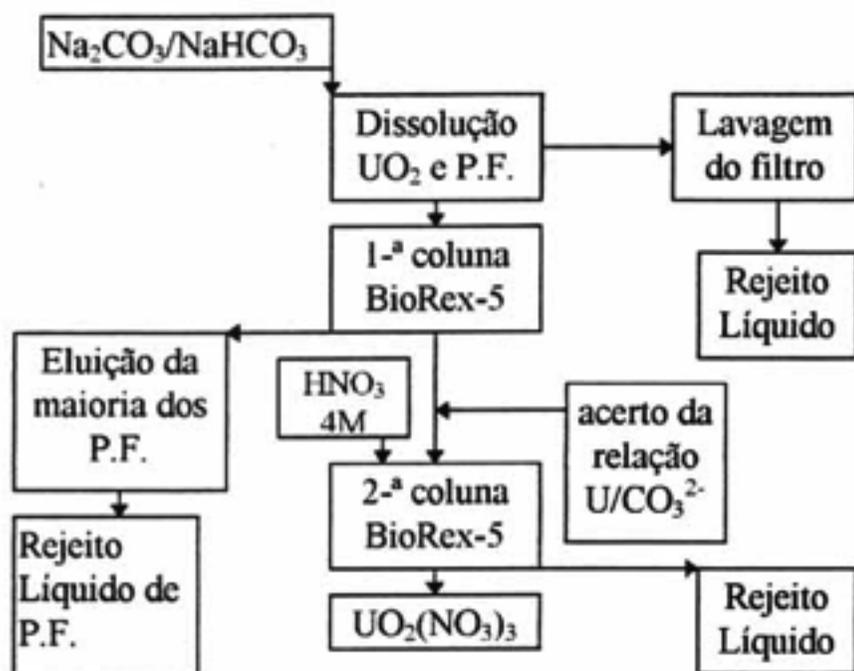


Figura 1. Fluxograma do Procedimento Químico.

Com o objetivo de satisfazer a necessidade crescente de  $^{99}Mo$ , o IPEN criou um grupo de desenvolvimento com servidores de todas as áreas, e vêm desenvolvendo estudos para a implantação de uma unidade de produção de  $^{99}Mo$  baseada no processo de fissão do  $^{235}U$ .

## PARTE EXPERIMENTAL

**Dissolução de  $UO_2$ .** Introdução. Utilizaram-se amostras simuladas de  $UO_2$ , basendo-se na estequiometria da reação (I), para 1 grama de  $UO_2$

Método de determinação da concentração de urânio dissolvido Verificou-se através de análises de volumetria por oxi-redução[17].

Influência do Tempo de reação. Determinou-se a influência do tempo de dissolução em de intervalos de tempo de até 8 horas.

Influência da Temperatura. Determinou-se a razão de dissolução do urânio, com o aumento da temperatura à pressão atmosférica. O intervalo de temperatura variou de 25 a 80°C, sob condensação dos vapores de  $H_2O$ .

Influência do Agente oxidante. Estudou-se a influência da concentração de agente oxidante na reação, sob duas condições de temperaturas (25 e 80°C). As percentagens do oxidante consideradas foram de em 20% acima do valor

estequiométrico, e 20% em condição de sub estequiometria.

Influência da concentração dos reagentes. Variou-se concentração do bicarbonato segundo as razões de  $U/CO_3^{2-}$  de 1:3 até 1:7, em termos de equivalentes.

**Purificação do Urânio por cromatografia de troca iônica.** Condicionamento da resina Bio-Rex5. Utilizou-se uma coluna cromatográfica de vidro com 260 mm de altura e 10 mm de diâmetro contendo 20 ml de resina Bio Rex-5. No condicionamento foram necessários 200 ml de solução  $NaOH$  0,2 M e 300 ml de solução  $NaHCO_3$  0,2M.

Retenção do íon complexo tricarbonato de Urânio e lavagem da coluna. Utilizou-se uma solução de  $Na_4UO_2(CO_3)_3$  contendo o traçador  $^{233}U$  a fim de se verificar o carregamento e a lavagem da coluna. Após esta etapa, utilizou-se uma solução de  $Na_2CO_3$  e  $NaHCO_3$  sob as mesmas proporções. As frações da amostra foram medidas pela técnica de espectrometria Alfa.

Eluição do complexo tricarbonato de Urânio. No método de eluição para urânio, utilizou-se  $HNO_3$  4M como eluente, solubilizando-se então o nitrato de urânio.

A influência do fluxo O fluxo recomendado por vários autores [3,6], corresponde à 0,5 ml/min. Contudo, neste trabalho, considera-se uma variação entre 0,5 a 0,6 ml/min, devido o fato de não se empregar um sistema de bombeamento controlado .

## RESULTADOS E DISCUSSÕES

**Dissolução de  $UO_2$ .** No estudo do tempo de dissolução observou-se que até a terceira hora, há um aumento da dissolução do urânio. Após este intervalo a reação torna-se mais lenta passando a valores praticamente constantes, segundo o mostrado na Figura. 2.

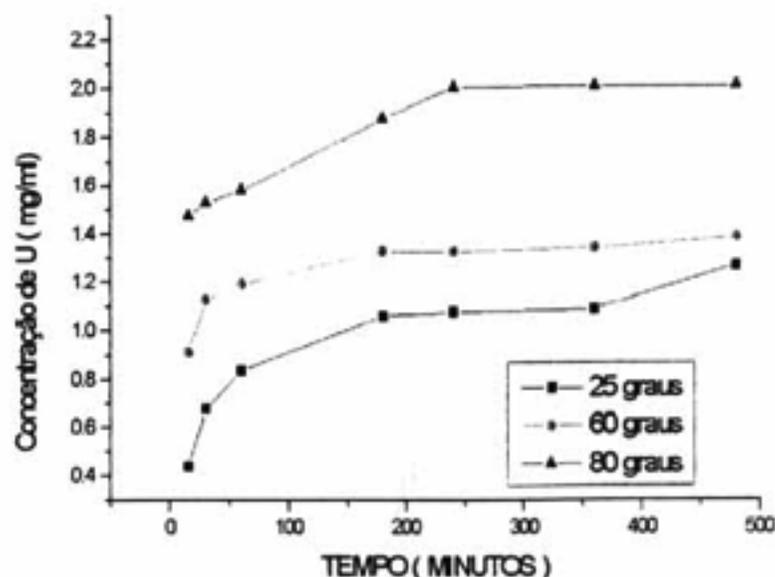


Figura 2- Influência do tempo

Observou-se que até 80°C, o sistema mantém-se em equilíbrio. Conforme a literatura [8] em temperaturas maiores o sistema deve ser mantido sob pressão até a temperatura limite de 120°C. Desta forma diminui-se consideravelmente o tempo de dissolução. Observa-se que este é, contudo, o valor limite para o complexo de tricarbonato de urânio permanecer estável. A temperatura que forneceu melhores resultados foi 80°C sob pressão atmosférica. Este valor é citado por vários autores [5,9], como a que fornece também o menor tempo de dissolução em comparação com aquele realizado a temperatura ambiente.

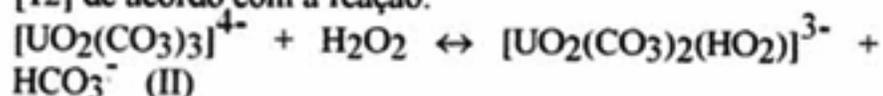
Obteve-se uma percentagem de dissolução considerável, em relação as demais temperaturas estudadas. Estes resultados são mostrados na tabela 1.

TABELA 1 - Influência da Temperatura

Temperatura (°C)	% Dissolução
25 °C	65
60 °C	76
80 °C	86

Quanto ao agente oxidante, optou-se pelo uso de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> devido este apresentar uma razão de dissolução mais rápida em relação ao gás oxigênio [10]. Observou-se que em condições de excesso do oxidante, obtêm-se a dissolução total do urânio. Entretanto, há a formação de peroxos complexos [9] em sua maioria e pouca formação do complexo de interesse.

Inicialmente atribuiu-se a formação do peroxo complexo UO<sub>4</sub>.2H<sub>2</sub>O, mas de acordo com ARGANDOÑA et al [11], este é somente formado em pH da ordem de 0,5 a 3, com um excesso de 30% de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. No entanto verificou-se que, com a adição em excesso do agente oxidante, este também pode reagir com o íon [UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>]<sup>4-</sup> do meio e formar espécies UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>HO<sub>2</sub><sup>3-</sup> [12] de acordo com a reação:



Foi verificado que em qualquer condição de estequiometria em relação ao agente oxidante (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) há a formação do complexo desejado ( tricarbonato de urânio e sódio ). Estes resultados foram confirmados através de análises de difração de raio-X. Observa-se também a presença de outro complexo ainda não caracterizado. Os possíveis complexos encontrados são: [UO<sub>2</sub>(OO)(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>]<sup>4-</sup> e [UO<sub>2</sub>(OO)(CO<sub>3</sub>)(H<sub>2</sub>O)<sub>2</sub>]<sup>2-</sup> que ocorrem na relação de 1:1 de UO<sub>2</sub><sup>2+</sup> : O<sub>2</sub><sup>2-</sup> ; ou algum destes outros Na[UO<sub>2</sub>(OO)OH(H<sub>2</sub>O)<sub>3</sub>] , Na[UO<sub>2</sub>(OO)<sub>2</sub>OH(H<sub>2</sub>O)<sub>7</sub>] , Na<sub>3</sub>[(UO<sub>2</sub>)<sub>2</sub>(OO)<sub>2</sub>(OH)<sub>3</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>5</sub>], Na<sub>2</sub>[UO<sub>2</sub>(OO)(OH)<sub>2</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>2</sub>].H<sub>2</sub>O [12].

Segundo ABERG et al [13], não é possível preparar uma solução contendo somente o complexo

tricarbonato de urânio, sempre haverá a formação de um composto mononuclear presente.

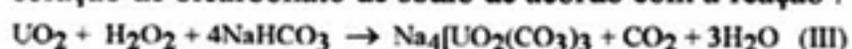
Nestes ensaios verificou-se tanto a percentagem de dissolução quanto a de retenção na resina. Observou-se que a presença de uma quantidade maior de oxidante, pode aumentar a dissolução do urânio, mas reduz consideravelmente a formação do íon complexo de [UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>]<sup>4-</sup>. Este complexo pode reagir com o oxidante levando a formação de outro íon complexo [UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>HO<sub>2</sub>]<sup>3-</sup>, de acordo com reação (II), que não é retido na coluna contendo resina BioRex-5. Isto impossibilita a sua posterior purificação. Os dados obtidos até o momento podem ser conferidos na tabela 2.

Na tabela 2, observa-se que em condição de reação super-estequiométrica aumenta a dissolução do urânio, mas diminui a retenção na resina devido a provável formação de peroxo complexo, conforme citado na reação II. Em condições sub-estequiométricas, o complexo formado pode hidrolizar-se e não ser adsorvido na resina, provocando a diminuição de retenção.

TABELA 2 - Influência do H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> em relação a Reação Estequiométrica

% H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	Temperatura °C	% Dissolução	% Retenção
20% super-estequiométrica	80	87	10
estequiométrica		86	38
20% sub-estequiométrica		74	3
20% super-estequiométrica	25	75	8
estequiométrica		65	15
20% sub-estequiométrica		48	5

Conforme citado por STEPHENS et al [5] ,é possível realizar a dissolução do urânio somente em solução de bicarbonato de sódio de acordo com a reação :



Entretanto SCHORTMANN e DESESA [18] verificou que a concentração total de íons carbonato, é independente da relação CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>/HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> no meio, considerando apenas a concentração total de íons carbonato. A função do íon HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>, conforme o observado é neutralizar os íons OH<sup>-</sup> formados durante a dissolução. Deste modo obtém-se melhores resultados utilizando misturas de Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>/NaHCO<sub>3</sub> , do que com cada um dos reagentes separadamente.

Baseado nos dados acima citados, verificou-se a influência do excesso de NaHCO<sub>3</sub> no meio, variando a sua concentração e mantendo a quantidade de Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> constante , conforme a reação (I).

Na tabela 3, observa-se que aumentando a concentração de íons bicarbonato, aumenta a dissolução do urânio. Comparando os valores obtidos nas diferentes temperaturas nota-se que são próximos. A diferença que surge é sentida em relação ao tempo. Na dissolução a 80°C e na proporção de 1:7, consegue-se obter uma solução límpida em um tempo de 180 minutos e uma dissolução próxima a 99%. Enquanto que à temperatura ambiente para a mesma relação de 1:7, necessita-se de um intervalo de tempo três vezes maior. Os resultados obtidos são mostrados na tabela 3.

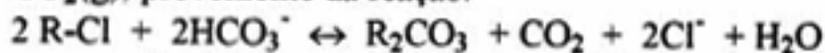
Estabilidade do íon complexo  $[UO_2(CO_3)_3]^{4-}$ . Segundo LÓPEZ et al [6], o complexo  $[UO_2(CO_3)_3]^{4-}$  é estável em soluções quando a proporção de  $CO_3^{2-}$  para  $UO_2$  excede 3, ou seja super-estequiométrica. Quando esta proporção iguala ou a solução é muito diluída, este complexo sofre hidrólise, formando o íon  $[UO_2(CO_3)_2(H_2O)_2]^{2-}$ ; por isso a necessidade do uso de solução de  $HCO_3^-$  super-estequiométrica para evitar hidrólise.

TABELA 3 - Influência da  $[HCO_3^-]$  em Relação a Reação Estequiométrica

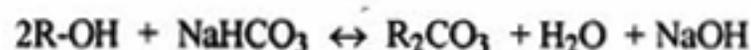
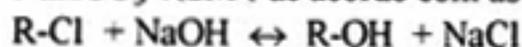
Temperatura	Razão $U/CO_3^{2-}$	% Dissolução
80°C	1:3	86
	1:5	84
	1:7	98
25°C	1:3	65
	1:5	87
	1:7	94

De acordo com as constantes de formação dos possíveis complexos, verifica-se que o tricarbonato de urânio e sódio possui uma tendência muito maior de ser formado.

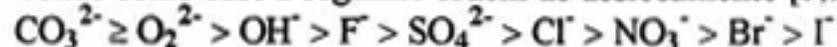
Purificação do Urânio por cromatografia de troca iônica. Condicionamento da resina BioRex-5. A resina aniônica BioRex-5 é considerada uma resina moderada, pois possui grupos amino terciário e amino quaternário. Sua forma original,  $Cl^-$ , deve ser modificada para a forma de  $CO_3^{2-}$  possibilitando a utilização na etapa de purificação do Urânio. Inicialmente, percolou-se uma solução de  $NaHCO_3$  com o intuito de condicionar a resina da forma  $Cl^-$  para  $CO_3^{2-}$  [1]. Observou-se então, a evolução de gases formando caminhos preferenciais possivelmente  $CO_2(g)$ , proveniente da reação.



Verificou-se então, a necessidade de uma etapa intermediária a fim de impedir a liberação de  $CO_2(g)$ . Assim optou-se por um condicionamento prévio com  $NaOH$  0,2 M seguido de um condicionamento com  $NaHCO_3$  0,2M; de acordo com as reações:



Tendo como base a seguinte ordem de deslocamento [5,9]:



#### Retenção do íon complexo tricarbonato de Urânio.

Observando-se a Figura 3, nota-se que aproximadamente a partir de 3 volumes da resina utilizada (60 mL), a amostra deixa de ficar retida na coluna. Devido a solução de carga, não estar nas condições ideais de retenção em virtude do excesso de íons  $CO_3^{2-}$  no meio.

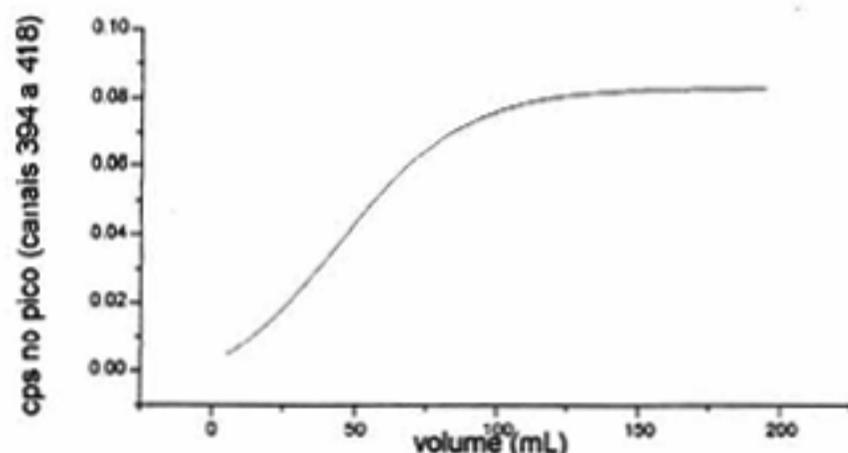


Figura 3- Percolação da Amostra

Na Figura 4, nota-se que 3 volumes da resina, é a quantidade necessária para retirar os íons complexos não adsorvidos na coluna. Na Figura 5, também com 3 volumes de resina são eluídos todos os íons retidos na coluna.

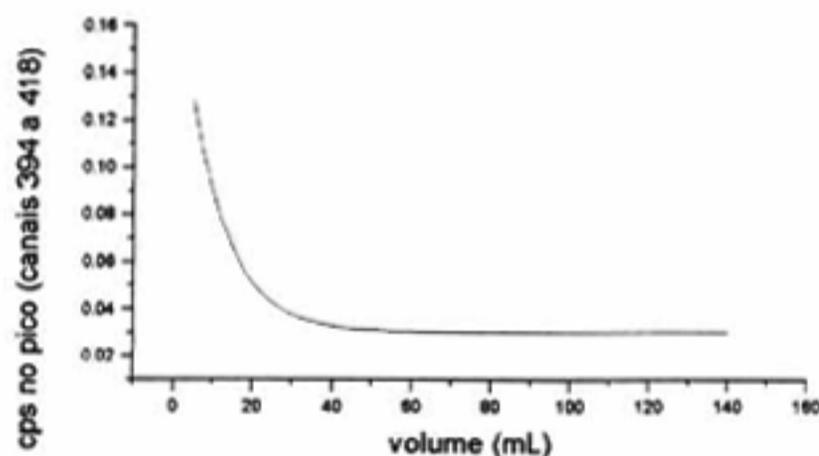


Figura 4 - Lavagem da Coluna

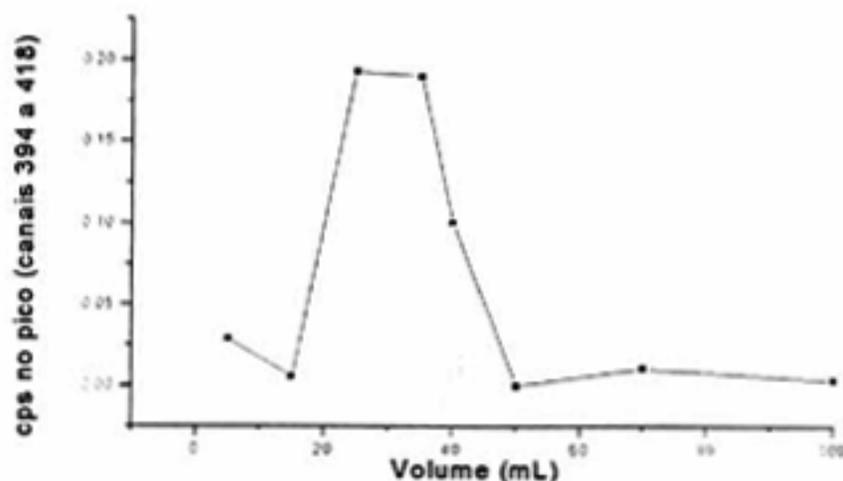


Figura 5 - Eluição do íon complexo

Quanto a retenção do íon complexo, tricarbonato de urânio, em relação a temperatura; nota-se uma maior retenção utilizando-se a solução de urânio realizada a 80°C. A solução obtida a 80°C, é a que está próxima da relação ideal do íon complexo que é de 1:3 de  $U:CO_3^{2-}$ , onde estes dados podem ser observados pela tabela 1.

Influência da relação  $U/CO_3^{2-}$ . Na retenção do íon tricarbonato de urânio, a relação  $U/CO_3^{2-}$  é fator determinante. Quando realiza-se a dissolução, a relação de  $U/CO_3^{2-}$  pode chegar até 1:7 obtendo-se uma maior dissolução. Mas quando pretende-se sua purificação esta relação deve ser diminuída para 1:3, que é a relação ideal para a retenção do complexo desejado.

Caso esta relação não seja estabilizada, a retenção do complexo será baixa, devido a competição do íon complexo formado com os íons carbonato em excesso na solução.

Para realizar esta mudança da relação de  $U:CO_3^{2-}$ , é necessário a adição de uma solução contendo Urânio, que diminuirá a proporção de íons carbonato no meio [3,7].

Influência do pH. Estudou-se que numa resina aniônica a estabilidade química se limita às ligações C-N. Independentemente desta ser forte ou fraca, ao se condicionar a resina sob a forma R-OH há decomposição [14]. Como no caso da resina Bio-Rex5 passa por uma etapa intermediária permanecendo sob a forma R-OH, esta pode sofrer decomposição. Ainda permanecendo sob pH 14 devido a solução de NaOH 0,2 M. Portanto o pH deve ser controlado pois sua faixa de operação varia entre pH de 0 à 9. O ideal para a resina Bio-Rex5, seria condicionar previamente na forma R-OH, e logo em seguida na forma desejada  $R_2CO_3$ . Para isso utiliza-se uma solução de  $NaHCO_3$  0,2 M como um tampão evitando o aumento do valor do pH, permanecendo igual a 9.

Observou-se durante o condicionamento da forma R-Cl para a forma R-OH, a ocorrência do inchamento da resina, isto ocorre devido ao maior grau de hidratação dos íons [14]. Na mudança para a forma  $R_2CO_3$  o volume da resina volta aproximadamente ao volume original.

Durante a percolação da solução o pH deve ser mantido em aproximadamente 9. Evitando que este valor aumente, provocando a precipitação de diuranatos. Durante a etapa de eluição do complexo o valor de pH diminui para 1, devido a eluição ser realizada em meio ácido.

Eluição do complexo tricarbonato de Urânio. A eluição do tricarbonato de urânio, inicialmente foi realizada utilizando uma solução de  $Na_2CO_3$  0,5 M. Entretanto verificou-se que uma solução mais concentrada de carbonato, não eluia todo o íon complexo de carbonato adsorvido na resina [3]. É que ao utilizar-se esta solução (pH 14), pode-se provocar a precipitação de sólidos dentro da coluna e a degeneração da resina.

Posteriormente verificou-se que o método de eluição para urânio, citado por vários autores, utiliza-se de  $HNO_3$  4M. A eluição deve ser realizada em contra

corrente, devido a decomposição do carbonato em meio ácido liberando  $CO_2(g)$  [3,15,16].

Tentou-se realizá-la nestas condições, mas devido a baixa pressão disponível no sistema, o procedimento empregado se deu em fluxo direto.

A influência do fluxo. Observou-se que para fluxos maiores a percentagem de retenção do complexo diminui, enquanto para valores menores de fluxo este valor pode até aumentar. Baseado no fato de se tratar de um íon complexo com valor de carga maior do que as cargas dos íons de condicionamento, este pode estar mais firmemente adsorvido na resina. Durante as etapas de condicionamento da resina BioRex-5, percolação da amostra e lavagem da coluna, o fluxo utilizado varia entre 0,5 a 0,6 ml/min.

## CONCLUSÃO

Embora preliminares, os dados anteriormente apresentados demonstram, claramente, o potencial da metodologia utilizada.

Entre as principais conclusões deste estudo obteve-se uma boa indicação de que a dissolução do urânio deve ser feita na temperatura de 80°C. Outros estudos serão ainda realizados a 100°C, com e sem influência de pressão, de modo a avaliar a possibilidade de melhoria da relação rendimento de dissolução/ tempo de reação.

Com relação ao agente oxidante, os melhores valores foram alcançados em condições estequiométricas e super estequiométricas. Observa-se contudo a provável decomposição do peróxido de hidrogênio devido a temperatura elevada.

Em ensaios preliminares, verificou-se que com quantidades de íons  $[HCO_3^-]$ , acima do que a requerida na estequiometria [5] ocorre um aumento significativo na dissolução do urânio. Entretanto, nestas condições ocorre uma diminuição da retenção na resina provavelmente devido a competição entre os íons  $CO_3^{2-}/[UO_2(CO_3)_3]^{4-}$ . Assim sendo estudos deverão ser realizados de modo a avaliar-se o deslocamento do equilíbrio de dissolução/retenção, pela adição de urânio ao soluto.

Será também avaliada a eluição em condições de contra corrente de modo a permitir um aumento na eficiência da separação.

## REFERÊNCIAS

- [1] SHIKATA, E.; IGUCHI, A.: **Production of  $^{99}Mo$  and its application in nuclear medicine.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, Vol 102(2), 533 - 550 (1986).
- [2] ENDO, L.S. **Caracterização dos rejeitos da produção de  $^{99}Mo$  de Fissão.** julho 1992. (IPEN - Pub 371).
- [3] SAMEH.A.ALI.; ACHE.HANS J.: **Production Techniques of Fission Molybdenum-99.** Radiochimica Acta 41.65-72 (1987).

- [4] MCCLAIN, L. A., BULLWINKEL, E.P., and HUGGINS, J.C., USA., **Carbonate Chemistry of Uranium : Theory and Application**, Int Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf. Bd. , 8 26-37 (1955).
- [5] STEPHENS, F.M., JR and MACDONALD, R.D., USA.: **Alkaline Leaching of Uranium Ores**, Int. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf. Bd.8, 18-25 (1955).
- [6] LÓPEZ MUÑOZ, B.E., SERRANO GÓMEZ, J., FUCUGAUCHI, L.A.: **Separation de uranio de algunos productos de fisión por cromatografía de intercambio iónico**, Revista Técnica del SUTIN, Investigación mas desarrollo, 56-62 (nov. 1991).
- [7] RODRÍGUEZ, S.A., LÓPEZ MUÑOZ, B.E., FUCUGAUCHI, L.A.: **Separacion Del ion tricarbonato de uranio por cromatografía de intercambio iónico. Parte I e Parte II**, Rev. Soc. Quim. Méx. vol 34 (4), 161 - 166 (1990).
- [8] Technical reports series 359.: **Uranium Extractions Technology**, (1993).
- [9] CHERNYAEV, I.I., **Complex Compounds of Uranium**, Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem (1966).
- [10] HISKEY, J.B.: **Hydrogen peroxide Leaching of Uranium in Carbonate Solutions**, Trans. Inst. Min. Metall. (Sect. C: Mineral Process. Extr. Metall.), 89, C145-C152 (December 1980)
- [11] ARGANDOÑA, J.R., TURNBULL, R., RÍOS, A.: **Obtencion de peroxido de urânio**, Rev. Soc. Quim. Mex. Vol 17 (3), 133-138 (Mayo - Junio 1973).
- [12] STEN AHRLAND et al.: **Uranium**, Gmelin Handbook Of Inorganic Chemistry, Gmelin-Institut, Supplement vol. D1, 148-149, 8<sup>th</sup> edition (1984).
- [13] ABERG, M. FERRI, D., GLASER, J., GRENTHE, I.: **Studies of Metal Carbonate of the Hexakis(carbonato)tris[dioxouranato(VI)] Ion in Aqueous Solution. Na x-ray Diffraction and <sup>13</sup>C NMR study**, Inorganic Chemistry, vol. 22, N<sup>o</sup> 26, 3981- 3985, (1983).
- [14] ABRÃO, A; **Operações de Troca Iônica**, Instituto de Energia Atômica, 1972.
- [15] HAAG, J., and SAMEH, A. ALI: **Dynamic Experiments on the Separation of Uranium Tricarbonate Ions on Three Different Anion Exchangers and Studies of the Elution Properties**, KFK-3015, Karlsruhe Nuclear Research Center (1981).
- [16] SAMEH, A.ALI.; ACHE, HANS. J.: **Actinide Separation MAW Process Streams via Ion-Exchange Techniques**, Radiochimica Acta 36, 89-94 (1984).
- [17] W. DAVIES, and W. GRAY.: **A rapid and specific Titrimetric method for the precise Determination of Uranium using Iron (II) sulphate as Reductant**, Talanta, 11, 1203-1211 (1964).
- [18] SCHORTMANN, W.E., DESEA, M.A., **Kinetics of de Dissolution of Uranium Dioxide in Carbonate-Bicarbonate Solutions**, Sec. U.N. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy Genf., Bd. 3, S.333-341 (1958).

### ABSTRACT

In the last few years the use of radioisotopes and radiopharmaceuticals in medicine has increased very much. About 90% of the applications refer to the utilization of <sup>99m</sup>Tc for tumour's diagnosis. A method to obtain this radionuclide by <sup>235</sup>U nuclide's fission, forming the radioisotope <sup>99</sup>Mo follow a β<sup>-</sup> emission, has been developed at IPEN. However, in this process only 1% of uranium, that is highly enriched (93%) is fissioned. In this way its recovering and purification for further use is needed.

In this paper we studied the not fissioned uranium recovery, starting from UO<sub>2</sub> dissolution in alkaline leaching (CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>/HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>) to form the complex ion [UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>]<sup>4-</sup> and further purification by ion exchange chromatography on columns with the anionic resin Bio-Rex5 conditioned on carbonate; the different parameters that influence on the dissolution, like: Time, Temperature, pH, Reagents's concentration and oxidant's concentration are discussed. Concerning the purification process: U/CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> ratio, pH, flux and percolation way are discussed.