# OPERAÇÃO DE REATOR DE LEITO MÓVEL EM REGIME ESTÁVEL PARA PRODUÇÃO DE TETRAFLUORETO DE URÂNIO: APLICAÇÃO DE INSTRUMENTAÇÃO APROPRIADA

#### Wagner dos Santos Oliveira

Diretoria de Materiais e do Ciclo do Combustível - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares IPEN / CNEN - SP Caixa Postal 11049 - Pinheiros - São Paulo - Brasil - CEP 05423-970

#### **ABSTRACT**

This work describe the influence of process variables in the uranium tetrafluoride production by a moving bed reactor and applications of a specified instrumentation

**Key Words: uranium tetrafluoride, moving bed reactor** 

# I. INTRODUÇÃO

O denominado Ciclo do Combustível Nuclear é formado por grandes etapas de fabricação, e dentre elas encontra-se a fase denominada Conversão. A Conversão recebe o concentrado de urânio, que é fabricado junto à mina de urânio e que através de uma série de unidades de processamento químico chega ao hexafluoreto de urânio, matéria prima para as unidades de enriquecimento isotópico.

Como parte integrante da etapa da Conversão, tem-se uma unidade de produção do tetrafluoreto de urânio que recorre a reatores tubulares capazes de contatar sólidos, o trióxido de urânio ou o dióxido de urânio, com reagentes gasosos, hidrogênio e fluoreto de hidrogênio. Essa tecnologia faz uso de reatores do tipo forno rotativo, reatores de leito móvel, ou reatores de leito fluidizado, atualmente em desuso.

Este trabalho descreverá como a escolha adequada de instrumentação leva a condições mais estáveis de operação do reator do tipo de leito móvel contínuo. Neste reator realizam-se duas reações heterogêneas com a transformação do trióxido de urânio a dióxido, e deste ao tetrafluoreto de urânio, sendo realizadas num único corpo do reator. Enquanto a tecnologia americana e canadense utiliza reatores de leito móvel, realizando as duas reações anteriores em reatores diferentes, e a tecnologia inglesa utiliza fornos rotativos, o Projeto Conversão no Brasil, utilizou o reator de leito móvel contínuo

obtendo o dióxido e o tetrafluoreto de urânio numa única unidade de processamento.

O processo que utiliza o denominado reator L se caracteriza de modo marcante por realizar duas reações distintas, num único corpo do reator, obtendo-se na parte superior do corpo do reator o dióxido de urânio, que não é retirado do interior do reator e, na parte inferior, o tetrafluoreto de urânio. As reações são representadas a seguir:

Reação exotérmica de redução do trióxido de urânio:

$$UO_3(s) + H_2(g)$$
  $UO_2(s) + H_2O(g) + 25,3$  kcal

Reação de fluoretação do dióxido de urânio, também exotérmica:

$$UO_2(s) + 4HFA(g)$$
  $UF_4(s) + 2H_2O(g) + 43,2 kcal.$ 

Cada uma dessas reações ocorre numa região bem definida do corpo do reator de leito móvel, em módulos denominados de redução e módulo de fluoretação, com a zona principal da reação localizada a 2/3 da altura dos respectivos módulos. A localização dessas zonas principais de reação é feita através do controle dos perfis de temperatura no sentido longitudinal do equipamento.

Na figura 1 mostra-se de modo esquemático o reator de leito móvel do tipo L e o perfil de pressões no sentido longitudinal do equipamento.

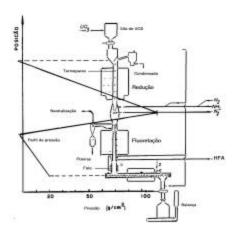


Figura 1. Perfil de Pressões no Reator de Leito Móvel Tipo L

#### II. OBJETIVO

O processo químico para a fabricação do tetrafluoreto de urânio por reator de leito móvel apresenta como desvantagem os freqüentes entupimentos, mesmo que todas as precauções para que tal fato não ocorra tenham sido tomadas. Os entupimentos tanto podem ocorrer na fase de arranque do processo químico, como durante as condições estáveis de operação da unidade de fabrico do UF<sub>4</sub>. O presente trabalho dá ênfase a operação do reator, sob condições de regime estável e de regime transitório, fazendo-se uma análise das condições de operação, a partir dos dados obtidos nas campanhas de operação. Em poder dos dados de processo e da análise crítica sobre a operação da unidade sugeremse algumas decisões a serem tomadas, quando das campanhas de produção para se minimizarem os riscos de entupimentos, principalmente por análise das variáveis de processos, temperatura e pressão registradas durante a operação da planta química.

#### III. METODOLOGIA

A partir dos registros das variáveis de processo, neste caso, pressão e temperatura, analisaram-se as dificuldades operacionais do reator quando das campanhas de produção do tetrafluoreto de urânio, principalmente a ocorrência de entupimentos que levaram a paragem da unidade, ou tendências de entupimento cujos sintomas foram detectados pelos registros e com antecedência tomadas as devidas providências operacionais para se dar continuidade a operação do reator de leito móvel em regime estável.

## IV. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

É importante que durante a fase de projeto do reator de leito móvel se especifiquem instrumentos que através de seus sensores quer sejam de pressão ou de temperatura levem a medida e registro dessas variáveis do processo, mas que também tenham sensibilidade para se acompanhar a estabilidade operacional do reator de leito móvel.

#### REGISTRO DAS TEMPERATURAS.

Considerando o reator de leito móvel operando em condições de regime estável, pode-se dizer que na medida que o leito de sólidos flui uniformemente, no interior de seus módulos verticais, estabelecem-se perfis de pressões e temperaturas que permanecem estáveis e de forma parabólica.

Pela análise dos registros das temperaturas, obtidos nas diversas campanhas de produção, nota-se que os valores registrados das temperaturas em geral apresentam-se como a forma de linhas que evoluem ao longo do tempo como pequenas ondulações, isto é, para um determinado termopar colocado no interior do leito, a temperatura oscila sob a forma de picos sistemáticos ao longo de todo registro, ou pelo menos enquanto se mantiver a condição de operação estável do reator. A Fig.2 mostra esse típico comportamento do registro das temperaturas sob a forma de picos.

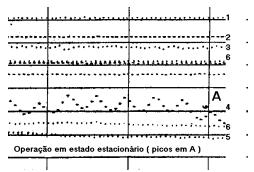


Figura 2. Registro da Temperatura sob a Forma de Picos

As ondulações que aparecem no registro das temperaturas devem-se ao fato do material sólido, que flui ao longo do reator, apresentar temperaturas diferentes devido ao leito fluir sob a forma de pulsos, à medida que um sistema de vibração atua sobre o reator. Pode-se afirmar que a tendência mais estável é o leito ficar parado no reator, movimentando-se devido a atuação do sistema de vibração acoplado ao reator. A título de exemplo, consideremos uma análise mais detalhada do que se passa no módulo de

redução, para a obtenção do UO<sub>2</sub>. Existem dois perfis de temperaturas, um no sentido axial e outro no sentido radial.

Os registros das temperaturas da massa reagente no sentido axial são determinados por termopares introduzidos no interior do leito, e medem a temperatura num determinado local do leito, apresentando as referidas ondulações longo do tempo. Como foi dito anteriormente os reatores de leito móvel, qualquer que seja o seu modelo, apresentam uma tendência natural do leito de sólido parar de fluir. À medida que um sistema de vibração, localizado junto as paredes do equipamento é acionado o sólido desce, ou seia, é como se o fluxo de sólidos ocorresse sob a forma de "soluços", dando-lhe um comportamento de fluxo pulsado, o que estaria representado pelas ondulações nos registros das temperaturas. Ver-se-á mais tarde neste trabalho, que essa hipótese pode ser confirmada pelo registro das pressões. Num determinado instante, a massa de sólidos junto ao termopar apresenta um certo grau de conversão, e, consequentemente, sua temperatura aumenta, por ser a reação exotérmica. No instante seguinte, nesse mesmo local onde está localizado o termopar, chega uma nova massa de sólidos com outro grau de conversão, e consequentemente a temperatura registrada é outra. Surgem deste modo as ondulações no registro das temperaturas. Assim, para um mesmo ponto no interior do reator, as temperaturas do leito oscilam, dando origem as ondulações registradas. Como se vê a presença das ondulações no registro das temperaturas é indicativa de que o fluxo do leito mantêm-se e é sistemático para registro de picos de temperatura também sistemáticos.

A título de exemplo, consideremos, dois pontos do reator com temperaturas diferentes,  $T_1$  sendo a menor temperatura e  $T_2$  a maior. Neste caso, os registros dessas temperaturas para dois instantes consecutivos apresentam alterações à medida que ocorre a vibração, já que com ela o leito de sólidos se movimenta no interior do reator. Surgem assim as ondulações registradas no papel do controlador ao longo do tempo e que podem apresentar inflexões para a esquerda ou para a direita. Pela análise das posições relativas dos picos, pode-se concluir se a massa de sólidos já passou pela zona principal da reação, temperatura mais elevada, ou se dela aproxima.

Se, por um lado, a presença de ondulações indica que o sólido está fluindo, por outro, a sua ausência é um indício de que algo de errado está ocorrendo no interior do reator, facilmente se

concluindo que tal ausência das ondulações significa que o reator caminha para o entupimento, já que o material começa a deixar de fluir em seu interior. A Fig.3 mostra o registro das temperaturas sem ondulações.



Figura 3: Registro das Temperaturas com Indicações de Anomalias no Processo

Pela análise do ponto de temperatura mais elevada nos registros, que representa a zona de frente da reação, e analisando-se também a presença das inflexões dos valores da temperatura, pode-se determinar em que ponto do módulo a frente de reação se encontra e como tende a evoluir no sentido longitudinal do equipamento.

Além dos registros das temperaturas no interior do reator, é prática normal se fazer os registros das temperaturas dos fornos que envolvem externamente o equipamento. Esses registros quando da operação do reator sob condições estáveis, se apresentam constantes, sem ondulações ao longo do tempo.

REGISTRO DAS PRESSÕES. Como a pressão é a variável de processo que mais rapidamente se propaga, torna-se importante analisar o seu comportamento durante a operação do reator de leito móvel. Qualquer obstrução que ocorra no interior do reator, originada por material reagente sólido que tenha sofrido sinterização ou que inicie a formação de blocos incrustados sobre as paredes internas do reator, de modo a estrangular a descida do leito sólido, acaba por originar também um sintoma típico de entupimento, detectado pelas pressões. Ou seja, com uma análise cuidadosa do comportamento das pressões, nos módulos de redução e de fluoretação, pode-se constatar um início de entupimento, e sua evolução, que pode levar a paragem da unidade de produção, para manutenção. Detectado o início de entupimento do reator, medidas devem ser tomadas, alterando as variáveis de processo adequadas para tentar se superar as dificuldades que se apresentam, e que devem levar de certeza a paragem da unidade de produção por obstrução do reator..

A título de exemplo, apresentam-se alguns gráficos, que são registros das pressões diferenciais, durante campanhas de operação.

Analisando-se os registros das pressões diferenciais nota-se que, de modo semelhante ao registro das temperaturas, também apresentam ondulações. Considerando o reator sob condição de regime estável, o registro da pressão apresenta inflexão no ponto de tomada da pressão para aquele instante. A Fig.4 mostra o registro das pressões durante uma campanha de produção de tetrafluoreto de urânio.

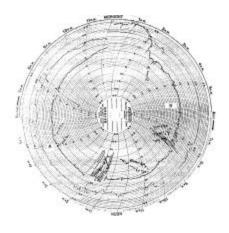


Figura . Registro das Pressões

Quando a pressão é tomada num determinado ponto, no interior do leito de sólidos, o valor medido depende da permeabilidade do leito existente nesse instante. Acionado o sistema de vibração, os sólidos descem ao longo do reator quase num movimento em camadas sucessivas e, ao fluírem deste modo, acabam por alterar as condições da permeabilidade do leito, o que é sentido e registrado pelo sistema de medição da pressão.

O fluxo dos sólidos sob a forma de pulsos e as sucessivas mudanças de permeabilidade do leito figuram no registro de pressão sob a forma de um serrilhado, que permanece mais ou menos constante ao longo do tempo e, de pequena amplitude, indicando a operação do reator sob condições estáveis e sendo representativas das alterações da perda de carga local no leito.

Surge um outro tipo de oscilação no registro das pressões, no momento em que se faz a

alimentação do trióxido de urânio, a matéria prima da unidade de produção. Ao se alimentar um lote de material novo, no topo do reator de leito móvel, que vai encher o silo de alimentação, a perda de carga ao longo de todo o reator se altera, sendo essa alimentação sentida pelas tomadas de pressão instaladas ao longo do reator. Surgem assim no registro, picos sistemáticos de maior intensidade que o serrilhado indicativo do fluxo pistonado do leito, e coincide no tempo com os instantes em que se pratica a alimentação do trióxido de urânio ao sistema.

Pela análise da Fig.4 pode-se tecer alguns comentários para alguns pontos específicos:

No início da operação do reator pode acontecer de as pressões diferenciais da zona de redução e de fluoretação se sobreponham o que representa uma condição anormal de operação. O natural é que os módulos de redução e de fluoretação tenham valores de pressão diferentes, com os registros caminhando segundo linhas paralelas e com serrilhado.

As pressões diferenciais da redução e da fluoretação tendem a adquirir os valores operacionais, por volta de 7 g/cm<sup>2</sup> e 18 g/cm<sup>2</sup>, respectivamente.

Num determinado trecho do registro, os valores da pressão para as zonas de redução e de fluoretação caminham em paralelo e com os valores mantidos na gama operacional. Vê-se nitidamente um serrilhado miúdo na curva da pressão diferencial da redução, que é representativo da descida do leito de sólidos, que se dá sob a forma de "soluços", à medida que o sistema de vibração é sistematicamente acionado. Se, por um lado, a curva da pressão diferencial da zona de redução apresenta um nítido comportamento sob a forma de serrilhado, a curva da pressão diferencial da zona de fluoretação não apresenta o serrilhado típico da descida dos sólidos, isto é indicativo de que o leito na zona de fluoretação provavelmente está parado, e iniciam-se processos de sinterização do material levando a formação de grandes blocos que acabam por entupir o reator.

Em outras regiões do registro, as curvas das pressões da redução e da fluoretação apresentam intensas alterações sob a forma de grandes picos que podem durar horas de operação, significando desequilíbrio do sistema, com o reator caminhando para uma situação de instabilidade, causada por entupimento. De modo semelhante ao que existia no caso do registro das temperaturas, onde havia a presença das ondulações, a presença do serilhado no registro das pressões indica que os sólidos fluem no

interior do reator de leito móvel, sendo importante a presença do serrilhado ao longo de toda a campanha de produção do tetrafluoreto de urânio.

Caso se detecte a ausência de serrilhado no registro das pressões, tanto do módulo de redução como do módulo de fluoretação, ou se detecte a inversão das curvas de pressão, deve-se atuar sobre o sistema, alterando as condições operacionais do reator, de tal modo a superar o problema que surgiu, e que levará fatalmente a paragem completa da unidade de produção, para se fazer a desobstrução do equipamento.

A Fig.5 é representativa do reator de leito móvel operando em condições de regime estável, tanto no módulo de redução como no de fluoretação...

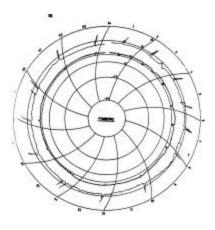


Figura 5. Registro das Pressões com Picos Representativos das Cargas de UO<sub>3</sub>

Este gráfico mostra valores das pressões diferenciais do módulo de redução e do módulo da fluoretação segundo linhas paralelas, como uma indicação clara da ausência de entupimento no reator. Além disso, o registro das pressões apresenta serrilhado em quase toda a sua extensão, indicando assim que o leito de sólido se movimenta em camadas sucessivas de material como resultado da atuação sistemática da vibração.

Aparecem ainda picos em intervalos de tempo a cada uma ou duas horas, indicando a novas cargas de UO<sub>3</sub> feitas no silo principal da unidade. Essas cargas atuam como perdas de cargas instantâneas adicionadas ao sistema. Quando das novas adições do trióxido de urânio, o valor da pressão diferencial da redução diminui, enquanto que a pressão diferencial no módulo de fluoretação

vertical aumenta. Este registro das pressões diferenciais pode ser considerado como representativo de uma operação do reator em regime estável, ou seja, de uma boa condução da unidade de produção do tetrafluoreto de urânio.

### CONCLUSÃO

Considerando que um reator de leito móvel onde se praticam reações heterogêneas, com um leito de sólido descendente ao longo do corpo do reator, que podem estar sujeitos a desagregação de suas partículas, originando pós finos e os reagentes gasosos em contracorrente é importante se prever qualquer condição de entupimento do sistema. Como foi demostrado a escolha de instrumentação adequada para medição das temperaturas do leito e de sua perda de carga podem sinalizar com antecedência de horas os problemas operacionais que irão surgir.

A localização adequada de sensores de temperatura ao longo do corpo do reator, assim como sensores de pressão com sensibilidade suficiente para detectar variações nas pressões do leito se enquadram nesse tipo de instrumentação.

# REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1. Relatórios Técnicos do Projeto Conversão PROCON 1985 1992 IPEN/CNEN-\SP.
- 2. HARRINGTON, G.D. Uranium Production Technology, 1959.