



### 3º Congresso Geral de Energia Nuclear

22 a 27 de abril de 1990

ANAIS - PROCEEDINGS

#### IMPLANTAÇÃO DE UM PROCESSO PARA PRODUÇÃO DE $^{99}\text{Mo}$ NO IPEN-CNEN/SP.

Bertha Floh de Araujo  
 José Adroaldo de Araujo  
 Izilda da Cruz de Araujo  
 Afonso dos Santos Tomé Lobão  
 Christina Aparecida Leão Guedes de Oliveira  
 Sergio Forbicini  
 Harko Tamura Matsuda  
 Victor Haim Cohen  
 Etsuko Ikeda de Carvalho  
 Mitiko Yamaura  
 Ruth Luqueze Camilo  
 Terezinha Akico Kuada  
 Maria Augusta Gonçalves  
 Departamento de Engenharia Química  
 Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares  
 Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN/SP

#### SUMÁRIO

Verificou-se a viabilidade técnica para implantação de uma unidade de produção de 80-100 Ci/semana de  $^{99}\text{Mo}$  no IPEN-CNEN/SP. Neste estudo procurou-se reproduzir todas as fases do processo desenvolvido por Sameh Ali e col. a fim de se obter dados que possibilitassem uma tomada de decisão pela Direção da Instituição. Os experimentos foram realizados usando-se placas não irradiadas de UAl<sub>x</sub> estudando-se as fases de dissolução alcalina, purificação intermediária por troca iônica e sublimação. Quando necessário, utilizaram-se soluções marcadas com traçadores para melhor avaliação dos experimentos. Apesar de não terem sido verificados todos os parâmetros para o projeto, as informações obtidas foram suficientes. Estas indicaram os pontos de maior dificuldade técnica, permitiram concluir que o processo é viável técnica e operacionalmente e que o IPEN dispõe de competência para desenvolver o projeto, implantar e operar a unidade de produção

#### ABSTRACT

PROCESS AVAILABILITY STUDIES FOR A  $^{99}\text{Mo}$  PRODUCTION PLANT AT IPEN-CNEN/SP.

The technical availability to set up an 80-100 Ci/week  $^{99}\text{Mo}$  production at IPEN-CNEN/SP was verified. Based on Sameh Ali's work done at KFK the full process was produced in lab-scale by IPEN'S staff. Natural UAl<sub>x</sub> fuels were used in all steps including alkaline dissolution, ion-exchange separation and purification and a final sublimation of the  $^{99}\text{Mo}$  product. Some  $^{99}\text{Mo}$  tracer solutions were employed to provide better results and to make easier the analytical work. It wasn't possible to check up all parameters required for project which could only be achieved via a mock-up installation, but the results were reliable enough to conclude that IPEN has technical experience to build-up a production facility.

## I-INTRODUÇÃO

Neste trabalho apresenta-se o estudo do processo químico visando a obtenção de dados para a verificação de viabilidade de implantação de uma unidade para produção de 80 a 100 Ci/semana de  $^{99}\text{Mo}$  no IPEN. A base para os estudos foi o processo desenvolvido por Sameh Ali et col. (1) nas instalações do Instituto de Radioquímica do Centro de Pesquisas Nucleares de Karlsruhe/RFA. O diagrama de bloco do processo encontra-se na figura 1. A filosofia adotada, em todas as fases, foi a de se tentar reproduzir a totalidade do processo, com um mínimo de custos, usando somente os materiais e informações bibliográficas disponíveis no IPEN. O estudo teve como finalidades principais :

- verificar as condições técnicas para a reprodutibilidade do processo,
- analisar e apontar as dificuldades técnicas,
- fornecer subsídios técnicos para uma tomada de decisão pela Direção da Instituição.

## II-CONSIDERAÇÕES GERAIS

O processo escolhido utiliza um alvo constituído de placas de liga  $\text{UAl}_x$  com revestimento de alumínio irradiado em operação contínua sob um fluxo de neutrons térmicos de  $5 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , por um período mínimo de 120 horas, com um resfriamento mínimo de 12 h e máximo de 24 horas. As seguintes etapas fazem parte do processo para a separação e purificação do  $^{99}\text{Mo}$  :

- dissolução, filtração e tratamento de off-gases,
- purificação intermediária por meio de colunas cromatográficas,
- purificação final onde se atingem as especificações requeridas pelo produto.

## III-PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

### III.1. DISSOLUÇÃO, FILTRAÇÃO E CONVERSÃO DE $\text{H}_2$

Realizaram-se os experimentos de dissolução usando-se placas de  $\text{UAl}_x$ , variando-se parâmetros como : concentração de  $\text{NaNO}_3$  ou  $\text{NaNO}_2$  e o modo de adição dos reagentes. Procedeu-se a filtração da solução proveniente da dissolução utilizando-se um filtro de aço inox sinterizado de porosidade de  $1\mu$ . O resíduo insolúvel da dissolução foi dissolvido com  $\text{HNO}_3$  a quente, para posterior recuperação do urânio. O hidrogênio gerado durante a dissolução deve ser removido do sistema, e esta dá-se por sua conversão em água. Essa reação de oxidação foi efetuada em coluna de recheio contendo óxido de cobre. Nesses experimentos estudaram-se vários tipos de suportes para o óxido de cobre, assim como a sua granulometria. Verificaram-se, também, as condições para impregnação e calcinação do recheio, o diâmetro da coluna de vidro e a vazão do hidrogênio na mistura hidrogênio e nitrogênio. Os testes de oxirredução realizaram-se após o acondicionamento do recheio em coluna de vidro, mantida à temperatura de  $400^\circ\text{C}$ . A eficiência e a capacidade de reação foram verificadas usando-se uma mistura de  $\text{N}_2$  e  $\text{H}_2$ . A regeneração foi realizada com  $\text{O}_2$  ou Ar. O arranjo experimental da dissolução, filtração e conversão de  $\text{H}_2$  encontra-se na figura 2.

### III.2. PURIFICAÇÃO INTERMEDIÁRIA

Desenvolveram-se os trabalhos experimentais, verificando-se o comportamento do molibdênio separadamente, em cada uma das colunas, realizando-se um ciclo completo : acondicionamento, retenção, lavagem e eluição. Usaram-se uma coluna de resina aniônica forte, seguida de duas colunas de resinas quelantes, uma coluna de resina catiônica forte, e, por último, uma coluna de alumina.

#### III.2.1. RESINA ANIÔNICA FORTE

Os experimentos foram feitos em coluna cromatográfica usando-se resina tipo DOWEX 1 x 10, 50-100 mesh, acondicionada sob a forma R-Cl. Estudou-se a sorção dos molibdatos tanto em meio alcalino, quanto ácido e verificou-se a influência da concentração salina em sua retenção. A lavagem da coluna foi realizada com solução de NaOH e água e a eluição do Mo foi efetuada com soluções de  $H_2SO_4$  e de  $Na_2SO_4 - NH_4OH$ .

#### III.2.2. RESINAS QUELANTES

Os experimentos realizaram-se com resina tipo Chelex-100, 100-200 mesh, acondicionada com soluções de tiocianato de amônio e  $H_2SO_4$ . Os parâmetros verificados foram : acidez da solução, concentração do agente redutor, concentração do agente cromogênico e o tempo de reação. As lavagens da 1ª coluna carregada foram feitas com soluções de tiocianato,  $H_2SO_4$  e água. O complexo retido foi de composto com solução de  $NaOH$  e eluído sob a forma de molibdato de sódio. Os estudos realizados para a 1ª coluna de Chelex-100 foram repetidos para a 2ª coluna.

#### III.2.3. RESINA CATIÔNICA FORTE

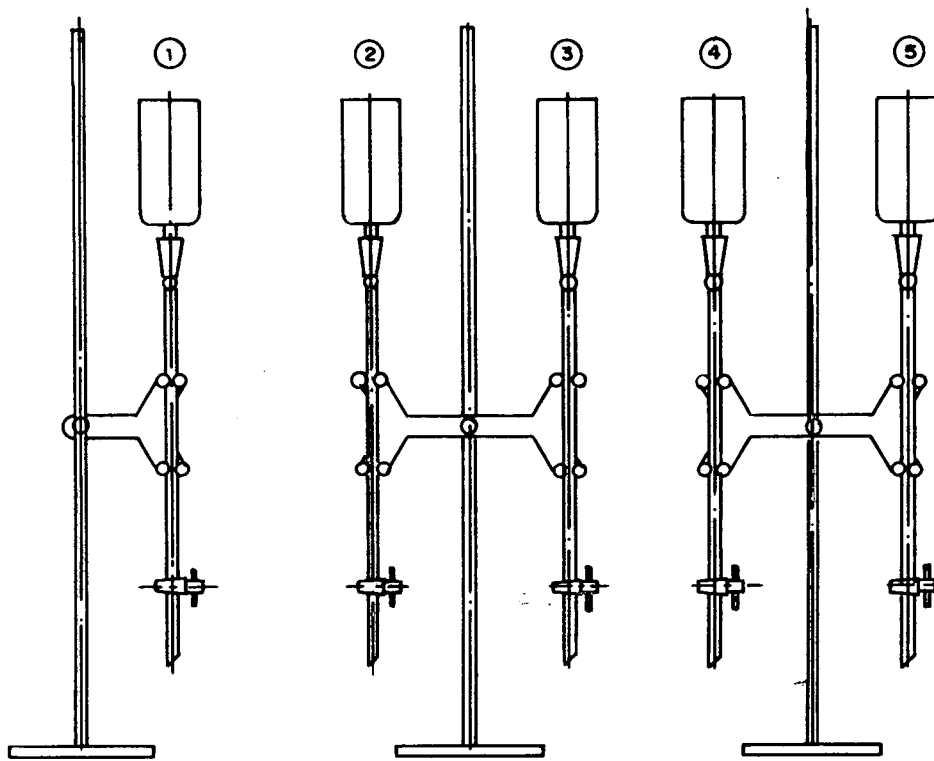
Esta coluna tem por finalidade a retenção de íons metálicos, evitando-se a introdução de cátions no sistema. As soluções - carga foram preparadas simulando-se o eluído da 2ª coluna de Chelex-100, adicionando-se algumas impurezas metálicas como Ni, Cr e Fe, produtos de corrosão do aço inox. A resina usada foi a Dowex 50W-X12, 50-100 mesh.

#### III.2.4. ALUMINA

Esta coluna permite a purificação do molibdênio dos sais de sódio não voláteis e possíveis traços de contaminantes, como iodo e telúrio. As soluções usadas simularam as concentrações existentes a partir do processamento de 5 placas de UAl<sub>x</sub>. A lavagem foi realizada com solução de  $HNO_3$  e a eluição do  $Mo^x$  com solução de  $NH_4OH$ . O arranjo experimental da purificação intermediária encontra-se na Figura 3.

### III.3. PURIFICAÇÃO FINAL

Nesta fase obtém-se o  $^{99}Mo$  com grau farmacêutico. Faz-se a descontaminação final de possíveis impurezas orgânicas e produtos de fissão residuais. O processo inicia-se com a concentração da solução, seguida de evaporação à secura e sublimação. Estudaram-se, na etapa de concentração, os tipos de aquecimento, temperatura de



- 1 - COLUNA DE RESINA ANIÔNICA FORTE      4 - COLUNA DE RESINA CATIONICA FORTE  
 2 e 3 - COLUNAS DE RESINA CHELEX-100      5 - COLUNA DE ALUMINA

FIGURA 3 - ARRANJO EXPERIMENTAL DA FASE DE PURIFICAÇÃO INTERMEDIÁRIA

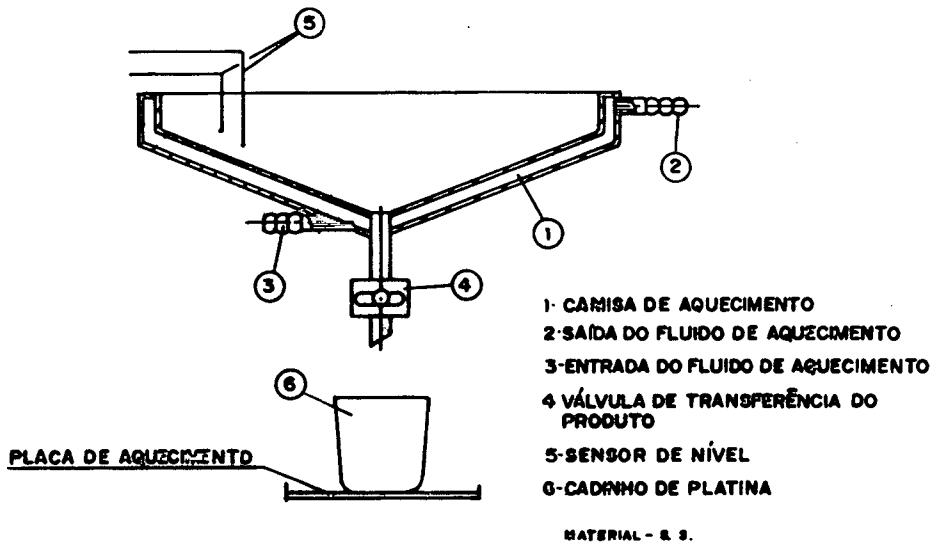


FIGURA 4 - ESQUEMA DO EVAPORADOR COM ENCAMISAMENTO

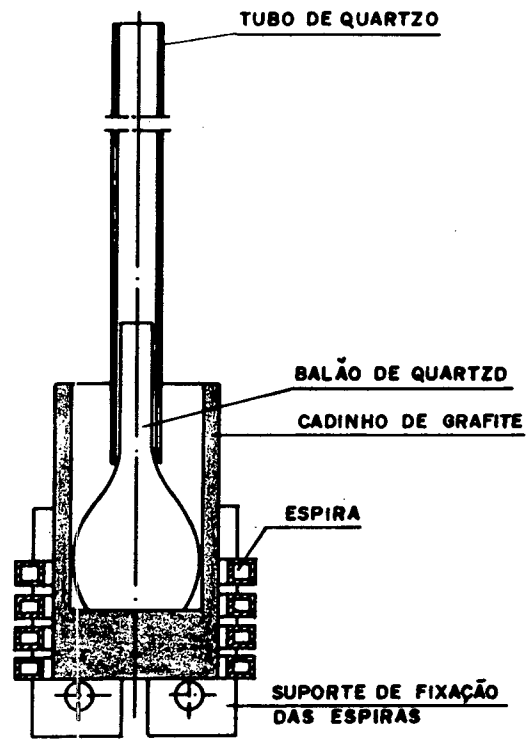


FIGURA 5 - ARRANJO EXPERIMENTAL VERTICAL DO SISTEMA DE SUBLIMAÇÃO

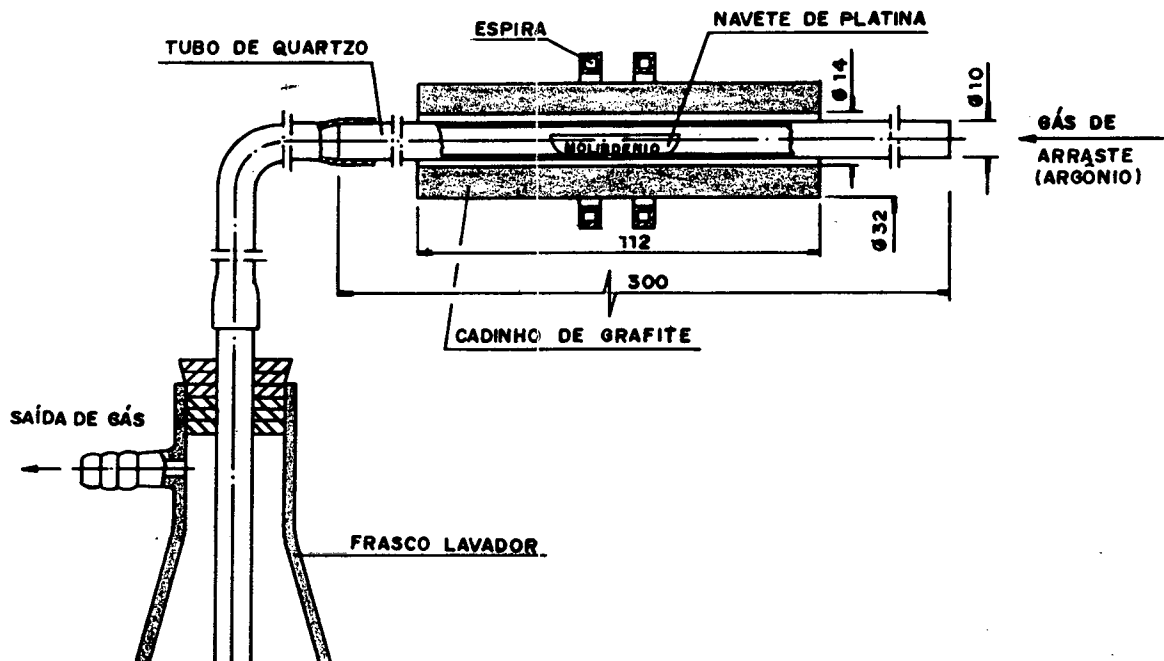


FIGURA 6 - ARRANJO EXPERIMENTAL HORIZONTAL DO SISTEMA DE SUBLIMAÇÃO

## VI.REFERÊNCIA BIBLIOGRÁFICA

1. Sameh A. Ali e Hans J. Ache. Nuclear Research Center Karlsruhe, Institute of Radiochemistry. Radiochimica Acta 41, 65-72(1987).