

**DESENVOLVIMENTO DO PROCESSO DE PREPARAÇÃO DE DIURANATO DE AMÔNIO EM SOLUÇÕES PROVENIENTES DA HIDRÓLISE DO HEXAFLUORETO DE URÂNIO**

Marycel E. Barboza Cotrim, Elita F. Urano de Carvalho,  
Reginaldo Pereira Gomes e Marta Aparecida S. Terazan  
Comissão Nacional de Energia Nuclear - IPEN-CNEN/SP  
Travessa R nº 400 - Cidade Universitária  
05508-900, São Paulo, SP

**RESUMO**

Apresenta-se um procedimento químico de precipitação de diuranato de amônio (DUA) a partir das soluções de hidrólise do  $UF_6$ .

O objetivo principal é preparar DUA em soluções de  $UF_6$  hidrolisado contendo urânio enriquecido a 20% com boas características químicas. O DUA enriquecido é posteriormente transformado por calcinação em óxido de urânio ( $U_3O_8$ ), que é a matéria prima para a fabricação do elemento combustível do reator de pesquisas IEA-R1, do IPEN-CNEN/SP. Descrevem-se as condições ideais de precipitação bem como as características químicas do DUA obtido.

**OBJETIVO**

O desenvolvimento do processo de preparação de diuranato de amônio (DUA) a partir da solução da hidrólise do hexafluoreto de urânio ( $UF_6$ ) tem como objetivo principal a obtenção do combustível nuclear para o reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP. O DUA obtido é transformado em óxido de urânio ( $U_3O_8$ ), que é matéria prima para a fabricação do elemento combustível do reator IEA-R1.

**INTRODUÇÃO**

No ciclo do combustível a base de urânio são necessárias várias etapas anteriores de processamento para a obtenção do hexafluoreto de urânio ( $UF_6$ ), que é a matéria prima para o enriquecimento. A Figura 1 apresenta um diagrama de blocos simplificado do ciclo do combustível em desenvolvimento no Brasil, visando a autonomia tecnológica na fabricação do combustível nuclear a base de urânio.

Desenvolveram-se no IPEN-CNEN/SP unidades piloto de processamento, que utilizando como matéria prima externa os diuranatos de sódio (DUS) ou de amônio (DUA) passam por várias etapas até a obtenção de  $UF_6$ , conforme diagrama de blocos (Figura 1) [1 - 4].

No IPEN-CNEN/SP desenvolveram-se também os processos em escala piloto para a preparação do tricarbonato de amônio e urânio (TCAU), composto intermediário entre  $UF_6$  e o produto final dióxido de urânio ( $UO_2$ ) [5].

O reator IEA-R1 utiliza como combustível o  $U_3O_8$  contendo urânio enriquecido a 20%. Para a preparação deste óxido pretende-se utilizar como matéria prima o  $UF_6$  obviamente com o mesmo enriquecimento.

**PARTE EXPERIMENTAL**

O procedimento de preparação do produto final  $U_3O_8$  a partir do  $UF_6$  consiste das seguintes etapas:

- 1) Hidrólise do  $UF_6$
- 2) Precipitação de DUA
- 3) Calcinação do DUA a  $U_3O_8$

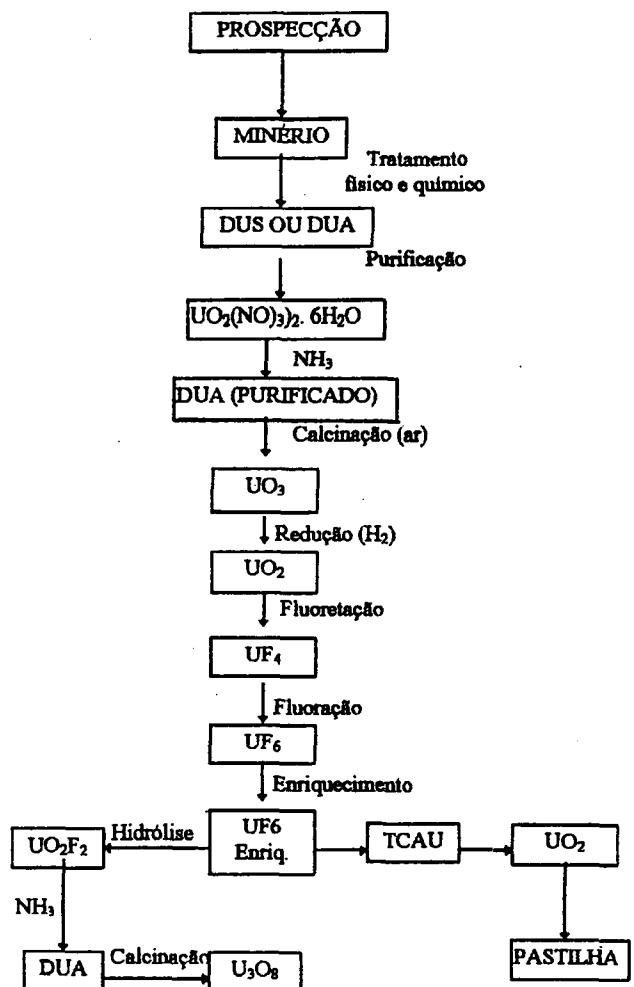
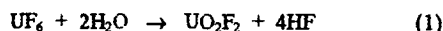


Figura 1 - Diagrama de Blocos do Ciclo do Combustível Nuclear a Base de Urânio.

### 1) Hidrólise do UF<sub>6</sub>

A solução de hidrólise do UF<sub>6</sub> é obtida utilizando-se a Unidade Piloto de Produção de TCAU. Nesta Unidade o cilindro de UF<sub>6</sub>, tipo 5A, é colocado dentro de uma autoclave e conectado à linha por onde passa o UF<sub>6</sub>. Por meio de vapor d'água, o cilindro é aquecido, o UF<sub>6</sub> é vaporizado e entra no reator de precipitação de TCAU onde recircula água destilada. Ao entrar em contato com a água o UF<sub>6</sub> sofre hidrólise formando uma solução de fluoreto de urânio (UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>), conforme a equação 1.



### 2) Precipitação de diuranato de amônio (DUA)

A preparação do DUA compreende a etapa intermediária entre o UF<sub>6</sub> e o U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, que é o óxido de urânio usado como combustível nuclear do reator IEA-R1.

Utilizando-se a solução do UF<sub>6</sub> hidrolisado obtida conforme descrição sucinta da etapa anterior prepara-se o DUA, por meio de adição de gás amônio (NH<sub>3</sub>) em condições controladas.

Apresenta-se na Tabela 1 os valores dos parâmetros de processo utilizados e obtidos nos vários experimentos realizados para a preparação de DUA utilizando-se uma solução de UF<sub>6</sub> hidrolisado (UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>) na concentração em urânio de 116,0 g/L.

Tabela 1 - Parâmetros de Processo Utilizados e Obtidos nos Experimentos de Preparação de DUA

| Experi-<br>mento | pH | T(°C)<br>Precipi-<br>tação | V<br>solução<br>(L) | m<br>DUA<br>obtido<br>(g) | U (g/L)<br>no<br>Filtrado<br>gerado |
|------------------|----|----------------------------|---------------------|---------------------------|-------------------------------------|
| I                | 6  | 60                         | 2                   | 306                       | 2,4                                 |
| II               | 7  | 60                         | 2                   | 328                       | 0,40                                |
| III              | 8  | 60                         | 2                   | 323                       | 0,20                                |
| IV               | 9  | 60                         | 2                   | 325                       | 0,10                                |
| V                | 10 | 60                         | 2                   | 306                       | 0,18                                |

### 3) Calcinação do DUA a U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>

Para a obtenção do U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> a partir do DUA no procedimento descrito anteriormente, efetua-se a calcinação deste composto ao ar, em temperatura em torno de 700°C durante aproximadamente 3 horas.

## IDENTIFICAÇÃO DO PRODUTO COMO DUA

Para a identificação do produto final efetuaram-se várias análises difratométricas de raios-X. Apresenta-se na Figura 2 um difratograma do DUA obtido do procedimento descrito.

## CARACTERIZAÇÃO QUÍMICA DO DUA

Para que o DUA possa ser usado como matéria prima para a preparação do combustível nuclear (U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>), ele deve ser qualificado, principalmente em relação as impurezas metálicas contaminantes. Para isso efetuaram-se várias análises químicas, cujos valores estão listados na Tabela 2. Na mesma Tabela os resultados são comparados com os padrões considerados ideais para o uso como combustível nuclear.

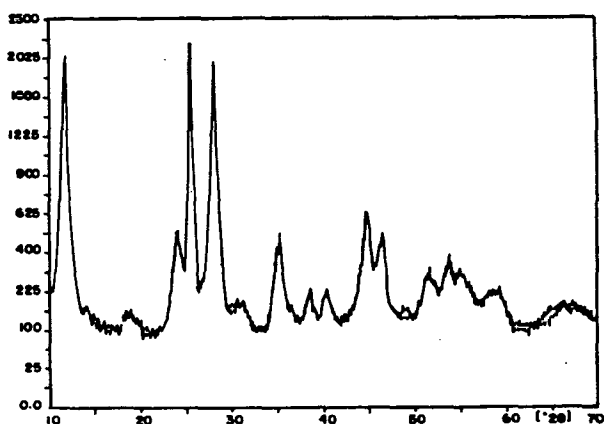


Figura 2 - Difratograma do DUA obtido.

Tabela 2 - Características Químicas do DUA obtido e do Filtrado Gerado

|                | U    | F    | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> |
|----------------|------|------|------------------------------|
| DUA obtido (%) | 72,9 | 2,0  | 4,02                         |
| Filtrado (g/L) | 0,1  | 21,0 | 31,0                         |

### Impurezas Metálicas

| Elemento | DUA obtido (µg/g) | DUA espec. (µg/g) | Elemento | DUA obtido (µg/g) | DUA espec. (µg/g) |
|----------|-------------------|-------------------|----------|-------------------|-------------------|
| Cd       | 0,2               | 0,5               | Mn       | 2                 | 250               |
| P        | <100              | 250               | Mg       | 20                | 200               |
| Cr       | <5                | 200               | Pb       | 50                | 250               |
| B        | 0,8               | 2                 | Sn       | <1                | 250               |
| Fe       | 40                | 250               | V        | <3                | 250               |
| Ni       | <4                | 200               | Cu       | 15                | 250               |
| Mo       | <2                | 250               | Co       | <10               | 10                |
| Zn       | <10               | 250               |          |                   |                   |
| Si       | <35               | 250               |          |                   |                   |
| Al       | 20                | 250               |          |                   |                   |

## CONCLUSÃO

Com o desenvolvimento do processo de preparação de DUA a partir do UF<sub>6</sub> com características adequadas dá-se mais um passo para a autonomia na fabricação do elemento combustível no país, especialmente em relação ao reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] - Abrão, A.; Araujo, J.A.; França Jr., J. M. Precipitação reversa de diuranato de amônio a partir de soluções de sulfato de urânio. IEA-278, 1972.
- [2] - França Jr., J.M. Estudo comparativo entre os rendimentos dos processos de purificação de urânio por troca iônica e extração por solvente em colunas pulsadas na precipitação do urânio nuclearmente puro. IEA-249, 1971.
- [3] - França Jr., J.M. Usina piloto de purificação de urânio pelo processo de colunas pulsadas em operação no Instituto de Energia Atômica. IEA-277, 1972.

[4] - Ribas, A.G.S. Tecnologia de preparação de óxido de urânio (IV) apropriado para conversão a tetrafluoreto de urânio. São Paulo, 1973 (Dissertação de Mestrado, Escola Politécnica, USP).

[5] - Santos, L.R. Unidade piloto de obtenção do tricarbonato de amônio e urânio. São Paulo, 1989 (Dissertação de Mestrado, IPEN-CNEN/SP).

#### ABSTRACT

DUA precipitation process from  $UF_6$  solutions is presented. The purpose is to obtain DUA 20%  $^{235}U$  enrichment with chemical characteristics to the fabrication of the IPEN-CNEN/SP IEA-R1 reactor fuel element.