

2299
 621.0331R444r93
 Biblioteca
 93

OTIMIZAÇÃO DAS CONDIÇÕES DE DISSOLUÇÃO DE PASTILHAS DE URÂNIO METÁLICO

CAMILO, R.L.; **KUADA**, T.A.; **FORBICINI**, C.A.L.G.O.; **COHEN**, V.H.; **LOBÃO**, A.S.T.; **ARAUJO**, B.F.

Comissão Nacional de Energia Nuclear/IPEN-CNEN/SP

RESUMO

Apresenta-se o estudo da dissolução de amostras de combustível de urânio natural metálico revestido com alumínio, visando a obtenção de condições otimizadas para sua dissolução. A dissolução do revestimento de alumínio foi realizada com solução alcalina e a do urânio metálico com solução ácida.

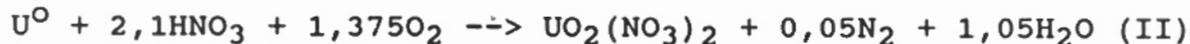
Na dissolução alcalina utilizou-se uma solução de NaOH 3,0M e NaNO₃ 3,7M com um excesso de 50% em relação ao estequiométrico, baseando-se em trabalhos anteriores⁽¹⁾.

Para uma relação mássica U:Al de 50:1, observou-se a dissolução completa do Al. O U permaneceu praticamente insolúvel, com uma perda inferior a 0,1%. Na dissolução do U, utilizaram-se pastilhas de urânio metálico de 2,8cm de diâmetro, 1cm de altura e massa em torno de 110g.

A estequiometria da reação de dissolução ácida é variável, dependendo das condições de dissolução. Para uma concentração de HNO₃ de 11,7M, a reação provável segue a seguinte equação^(2,3):



Os vapores de óxido de nitrogênio (NO) produzidos na reação de dissolução podem ser oxidados pela adição de oxigênio ou ar. O NO₂ formado reage com o vapor d'água formando HNO₃. Se todos os vapores nitrosos formados retornarem ao sistema sob a forma de HNO₃, tem-se a condição de dissolução "fumeless" e a equação da reação pode ser simplificada para:



Inicialmente, verificou-se a influência do oxigênio na taxa de dissolução do U. Observou-se que, para a vazão de O₂ de 7,5NL/h a taxa de dissolução é superior àquela obtida na ausência de O₂, para uma mesma concentração de HNO₃ 11,7M e uma área de condensação de 1500cm².

Em seguida, estudou-se a influência da concentração de HNO₃ de 6,5 até 11,7M, mantendo-se constante a vazão de O₂ em 7,5NL/h, a relação n^oEq.gHNO₃/gU em cerca de 28, para uma área de condensação de 1500cm².

De acordo com a literatura, a taxa de dissolução do U metálico aumenta com o aumento das concentrações de HNO₃ e

$UO_2(NO_3)_2$. No entanto, os resultados mostraram que a taxa de dissolução foi maior com HNO_3 8,0M. Isto se deve à reação ser menos energética do que com os ácidos 10,0 e 11,7M, com um aproveitamento melhor dos vapores nitrosos e conseqüente reaproveitamento do HNO_3 . No caso da dissolução com HNO_3 6,5M, esta foi lenta e a taxa de dissolução foi menor.

Baseando-se nestes resultados, prosseguiram-se os experimentos utilizando-se HNO_3 8,0M. Variou-se a relação $n^{\circ}Eq.gHNO_3/gU$ de 16 até 28. Conforme previsto, obteve-se maior taxa de dissolução com o aumento da relação. Para uma relação inferior a 21, ocorreu a cristalização do nitrato de urânio à temperatura ambiente.

Nos experimentos em que se aumentou a área de condensação, obteve-se maior reaproveitamento dos vapores nitrosos e um aumento na taxa de dissolução.

Nos experimentos seguintes variou-se a vazão de O_2 no intervalo de 5 a 25 NL/h, utilizando-se um condensador de $3000cm^2$ de área de condensação. Observou-se que, para uma mesma vazão de O_2 , ocorreram dois fenômenos distintos: o refluxo e o borbulhamento das colunas de retenção de NO_x . Este fato mostrou ser necessário o controle da pressão interna do sistema, realizado por meio do controle da vazão de O_2 . Nestas condições, mantendo-se a pressão do sistema entre 0 e $0,11kgf/cm^2$ obteve-se a recuperação total do HNO_3 , atingindo-se a condição otimizada do sistema.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1- ARAUJO, B.F. et al. "Implantação de um processo para produção de ^{99}Mo no IPEN-CNEN/SP". 3^o Congresso Geral de Energia Nuclear, Rio de Janeiro, julho 1990.
- 2- BLANCO, R.E. & WATSON, C.D. "Head-End Processes for Solid Fuels". In: STOLLER, S.M. & RICHARDS, R.B., eds - Reactor Handbook, v.2: Fuel Reprocessing. 2^a ed. New York, Interscience, 1961.
- 3- FOSTER, D.L.; SAVOLAINEN, J.E. & WYMER, R.G. Nuclear Reactor Fuel Dissolution. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the international conference held in New York, 8-20 Aug 1956, v.9:Reactor technology and chemical processing, p. 546-550.