



**PURIFICAÇÃO DE URÂNIO
ABSORÇÃO DE MOLIBDÊNIO SÔBRE O CARVÃO ATIVO**

K. J. BRIL e LUDMILA FEDERGRÜN

PUBLICAÇÃO IEA N.º

117

Dezembro — 1965



INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA

Caixa Postal 11049 (Pinheiros)

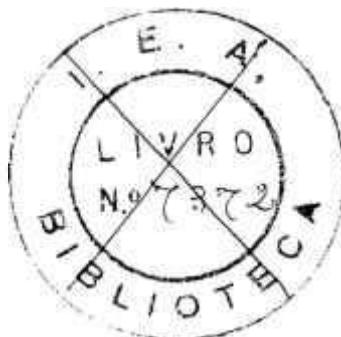
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"

SÃO PAULO — BRASIL

PURIFICAÇÃO DE URÂNIO.
ABSORÇÃO DE MOLIBDÊNIO SOBRE O CARVÃO ATIVO.

K. J. Brill e Ludmila Federgrün

Divisão de Engenharia Química
Instituto de Energia Atômica
São Paulo - Brasil



Publicação IEA nº 117

Dezembro - 1965

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof.Dr. Luiz Cintra do Prado

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof.Dr. Luiz Antonio da Gama e Silva

Instituto de Energia Atômica

Diretor: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IEA

Prof. Hélio Lourenço de Oliveira)	
Prof. Walter Borzani)	pela USP
Prof. Rui Ribeiro Franco)	
Prof. Theodoreto H.I. de Arruda Souto)	pela CNEN

PURIFICAÇÃO DE URÂNIO.
ABSORÇÃO DE MOLIBDÊNIO SOBRE O CARVÃO ATIVO.

K. J. Brill e Lucmila Federgrün

RESUMO

A separação entre urânio e molibdênio, por absorção deste último sobre carvão ativo, foi estudada em soluções aquosas de vários sais de urânio, no intervalo de concentrações de 1 a 60 g/l de U, e para relações de Mo/U variando entre 10 ppm e 20%. As isotermas de absorção de urânio e de molibdênio, a velocidade de equilíbrio, a possibilidade de um processo contínuo de separação assim como o efeito da procedência do carvão ativo estão sendo discutidos. A separação é eficiente até 30 g/l de urânio.

ABSTRACT

The separation of uranium from molybdenum by absorption of Mo upon activated charcoal has been studied in aqueous solutions of various uranium salts, in the concentration range of 1 to 60 g/l of U, and for Mo/U relations varying between 10 ppm and 20%. The absorption isotherms of both uranium and molybdenum, the rate of exchange the possibility of a continuous purification process and the effect of the nature of the activated charcoal have been investigated. Up to 30 g/l of uranium, the separation is still efficient.

RÉSUMÉ

La séparation entre l'uranium et le molybdène par absorption de ce dernier sur le charbon actif, a été étudiée en partant des solutions aqueuses de plusieurs sels de l'uranium, dans le domaine de concentrations entre 1 et 60 g/l de U, et pour une relation de Mo/U variant entre 10 ppm e 20%. On étudie les isothermes d'absorption de l'uranium et du molybdène, la vitesse de l'équilibration, la possibilité d'une séparation continue et l'effect de la nature du charbon actif. La séparation reste efficace jusqu' à une concentration de ~30 g/l de U.

1. INTRODUÇÃO

O molibdênio é um dos raros elementos cuja presença pode acarretar dificuldades durante os processos de concentração e/ou purificação de urânio. Em seu estado de valência 6, o molibdênio apresenta alguma semelhança no seu comportamento em solução, ao urânio hexavalente (10). Em soluções sulfúricas é conhecida a existência de complexos aniônicos do tipo $(MoO_2(SO_4)_n)^{2-2n}$. A formação de complexos aniônicos em soluções clorídricas é também comprovada. Assim, em soluções usuais que constituem o ponto de partida para a recuperação de urânio por absorção deste sobre resinas aniônicas fortes, o molibdênio encontra-se em forma aniônica mais facilmente absorvido pela resina do que o próprio urânio (3,9,10). Ademais, em condições usuais para eluição de urânio absorvido, o molibdênio é eluído somente parcialmente, de maneira que observa-se uma acumulação progressiva deste elemento com a consequente diminuição da capacidade para absorver o urânio, já que os centros ativos da resina troca-iônica tornam a ser ocupados pelo molibdênio. O fenômeno chama-se de "envenenamento" da resina aniônica. Um tratamento de regeneração periódica torna-se indispensável e onera o processo de recuperação de urânio.

Nos processos de extração de urânio por meio de solventes não miscíveis, a presença de molibdênio pode também ser prejudicial. Já nos primeiros processos de purificação de urânio por extração de nitrato de uranila com éter etílico, observou-se a extractibilidade elevada de heteropoliácidos de molibdênio tais como ácido fosfomolibdico, sílico-molibdico, etc. (2) e a dificuldade de posterior eliminação destes compostos sem perdas excessivas de urânio. No caso de extração com aminas a formação de sais insolúveis entre molibdatos e certas aminas, pode acarretar problemas de emulsionamento (4). No caso de ésteres de ácido fosfórico, o molibdênio é co-extraído e diminui a capacidade de solvente para extrair o urânio. Ademais, no caso da re-extração com carbonatos alcalinos, ele é re-extraído junto com o urânio, contaminando o produto final (9,10).

Entre os vários meios estudados para a eliminação prévia de molibdênio, devem ser mencionados (5,10):

- 1º) lixiviação do minério em condições que desfavorecem a solubilização de molibdênio;
- 2º) precipitação seletiva de MoS_3 ;
- 3º) absorção seletiva de molibdênio sobre carvão ativo.

O nosso trabalho relaciona-se com esta última modalidade.

Numa patente requerida em 1954, Wibbles e Miller (2) , descrevem um processo que baseia-se sobre tratamento de soluções de nitrato de uranila em éter etílico com carvão ativo. Partindo de soluções contendo 150-200 g/l de urânio, 0,5 - 1 N ácido nítrico e 150-1000 ppm de molibdênio sobre o urânio, mantidas em agitação durante 30-45 minutos com 12 g/l de carvão ativo, o conteúdo de molibdênio está sendo reduzido por um fator que varia entre 2 e 300 dependendo da procedência e tipo do carvão ativo. Em particular, o carvão ativo Merck assegura nestas condições, uma descontaminação por um fator de 30. Os autores atribuem o desapa-

recimento de molibdênio da solução à absorção sobre o carvão ativo dos heteropoliácidos de molibdênio e por esta razão aconselham um envelhecimento prévio das soluções etéreas durante até 5 semanas para obter os melhores resultados.

Vários relatórios da USAEC tratam do problema de absorção de molibdênio sobre carvão ativo também a partir de soluções aquosas (1,5,6). Hollis e Dixon (5) estudam a purificação prévia das soluções provenientes da lixiviação ácida de minérios de urânio antes de submeter este último à extração com solventes. Shiff e Viklund (1) sugerem este pré-tratamento antes de enviar as soluções do processo sobre as resinas aniônicas. Arnold e Crouse (4) estudam a possibilidade de concentração de molibdênio por meio de absorção sobre carvão ativo partindo de soluções residuais resultantes da extração de urânio com aminas (AMEX Process).

Contrariamente ao caso mencionado de soluções de urânio em éter etílico no que se refere à absorção de molibdênio partindo de soluções aquosas, trata-se nos trabalhos acima referidos, de soluções diluídas que contêm apenas 0,1 a 1 g/l de urânio e/ou de molibdênio, ambos em quantidades comparáveis. Todavia, no trabalho de Arnold e Crouse (4) trata-se de absorção de molibdênio partindo de soluções 1 molar em nitrato de amônio; nos trabalhos de Hollis e Dixon (5) e de Woody e coll. (6) a absorção de molibdênio é feita também a partir de soluções contendo altas concentrações salinas: até 1 molar em sulfatos. Nestas circunstâncias parecia-nos promissor estender o intervalo de concentrações estudado no que se refere a separação de urânio do molibdênio e de verificar de quais limites o processo pode apresentar interesse prático.

Os resultados que serão apresentados mostram que até 15 a 30 g/l U, a descontaminação de urânio do molibdênio por absorção deste último sobre carvão ativo, pode ser realizada em poucos estágios, desde o nível original de 1% até alguns ppm de Mo/U no

rim da operação, mas que acima desta concentração de urânio, a separação para ser eficiente exige um número de estágios elevado.

2. PARTE EXPERIMENTAL

2.1. Reagentes

Soluções de nitrato de uranila foram preparadas partindo de uranato de amônio nuclearmente puro por calcinação a baixa temperatura e dissolução com ácido nítrico p.a. Em algumas experiências foi usada uma solução de nitrato de uranila proveniente do ataque nítrico de uranato de sódio bruto produzido pela Orquima S.A. (11). Além das impurezas contidas no uranato bruto (12) esta solução contém $\text{NaNO}_3/\text{Na}_2\text{SO}_4/\text{U}$ na proporção molar de 1/0 , 35/1.

Soluções de molibdato de sódio foram preparadas a partir de MoO_3 p.a. por dissolução em quantidade estequiométrica de soda cáustica. A solução assim preparada foi acidulada com ácido nítrico até pH 1,5 e diluída até o volume desejado. A solução estequiométrica mais diluída tinha 1 g/l de Mo. Soluções mais diluídas foram preparadas apenas na ocasião de serem usadas.

Usamos carvão ativo em pó de procedência Merck e Carlo Erba (300 mesh) assim como carvão ativo granulado de procedência USA desconhecida (B.W.), B. Herzog (B.H.) e Carvorite (de fabricação nacional).

Todos os outros reagentes foram de qualidade "para análise". Em particular para a determinação colorimétrica do molibdênio (13) usamos:

- Acetato de butila purificado por lavagem com ácido diluído, soda cáustica e destilação.
- Tiocianato de amônio solução a 5% peso por volume.

- Cloreto estanoso solução de 125 g SnCl_2 em 100 ml de HCl conc. diluído a 500 ml com água saturada de CO_2 .
- Sulfato ferroso solução a 1%, peso por volume de sal de Mohr em água destilada.

2.2. Métodos analíticos

Molibdênio

O molibdênio foi determinado espectrofotometricamente baseando-se o método adotado sobre a redução de molibdênio com cloreto estanoso em presença de sulfato ferroso como catalisador (13); desenvolvimento da coloração de molibdênio pentavalente com tiocianato de amônio; extração do complexo formado com o acetato de butila e determinação espectrofotométrica do tiocianato de molibdênio.

Transfere-se uma alíquota da solução para analisar, contendo 5-50 microgramas de molibdênio, dentro de um funil de separação. Adicionar 2,5 ml de HCl concentrado e diluir até 25 ml com água destilada. Adicionar 5 ml de acetato de butila. Agitar 5 minutos. Deixar decantar 15 minutos. Retirar e desprezar a fase aquosa. Lavar o extrato orgânico com duas porções consecutivas de 5 ml da solução redutora e 2,5 ml da solução de tiocianato de amônio. Agitar cada vez um minuto e deixar decantar até separação nítida das fases. Desprezar todas as fases aquosas. Transferir a solução orgânica sem filtrar para uma célula espectrofotométrica e medir absorção a 4700 Å. Evitar a exposição da fase orgânica por tempo prolongado ao ar, caso contrário verificar-se-á a oxidação de ferro ferroso. Como solução de referência, usar um extrato de acetato de butila contendo todos os reagentes utilizados nas análises. A lei de Beer é obedecida com desvio

máximo de 5% e desvio da média de $\pm 2\%$. Uma solução de 10 microgramas de molibdênio em 25 ml de acetato de butila apresenta em média um clg I/I_0 de 0,069 numa célula de 1,35 cm de caminho ótico, quando submetida a todas as operações acima indicadas. A curva de calibração não é alterada pela presença de até 30 g/l de urânio, em forma de UO_2Cl_2 ou de $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$.

Urânio

O urânio foi determinado por titulação com bicromato de potássio após redução com cloreto estanoso em presença de ferro e de ácido fosfórico com catalisadores conforme descrito por Main (14,15) usando a difenilamina como indicador e cloreto mercurioso para eliminar o excesso do redutor.

Pequenas quantidades de urânio foram determinadas espectrofotometricamente pela formação de peróxido de urânio em solução alcalina (14).

Acidez livre

A determinação da acidez livre foi feita pelo método de Shepherd e Rein (16). Adiciona-se, a uma alíquota a ser titulada, 25 ml de uma solução de 8% de oxalato de potássio de pH 5,55. A suspensão obtida é titulada potenciomêtricamente com NaOH 0.1 N até voltar ao pH original da solução de oxalato de potássio. A quantidade de soda gasta constitui uma medida direta da acidez livre da amostra.

2.3. Condições experimentais

A maior parte dos resultados foi obtida agitando-se uma alíquota de solução de composição conhecida com uma alíquota de

carvão ativo, seja em pó, seja granulado. Após separação do carvão por decantação ou filtração procede-se geralmente somente à análise da solução. Em alguns casos foi também analisado o carvão para confirmação dos resultados.

Uma série de experiências foi feita usando colunas de carvão ativo granulado. As colunas tinham um diâmetro de 1,25 - 1,3 cm e uma altura do carvão variável entre 25 e 35 cm. O carvão granulado, 10/20 mesh, ocupava um volume de 1,5 ml/g C e as colunas tinham um volume livre de ca. 0,6 ml/g.C.

O carvão em pó de procedência Merck e C. Erba tinha um volume úmido decantado de 3,3 ml/g C.

Nas experiências de recirculação de carvão ativo em pó, a suspensão (~50 ml) foi filtrada. O carvão retido pelo filtro, sem lavar, foi transferido de volta ao copo original por meio de um jato de uma posseta contendo a solução a tratar, até completar o volume original (~50 ml). O mesmo papel de filtro foi usado ao longo de uma experiência e até a sua conclusão.

3. RESULTADOS EXPERIMENTAIS

Foram estudados os seguintes fatores:

- 3.1. Velocidade de equilíbrio
- 3.2. Isotermas de absorção de molibdênio em ausência de urânio.
- 3.3. Isotermas de absorção de urânio.
- 3.4. Influência de urânio sobre absorção de molibdênio.
- 3.5. Influência da qualidade e da concentração de carvão sobre a absorção de molibdênio.
- 3.6. Re-circulação do carvão carregado.

- 3.7. Influência da acidez e de adições propositadas de sílica, fosfatos, etc.
- 3.8. Comparação entre sulfato, cloreto, percloro e nitrato de urânio.
- 3.9. Efeito da temperatura.
- 3.10. Absorção contínua de molibdênio sobre colunas de carvão ativo.

3.1. Velocidade de equilíbrio

Conforme aparece nos dados da tabela 4, o equilíbrio de absorção é atingido a temperatura ambiente dentro de menos que 20 minutos usando o carvão em pó, e dentro de mais que 2 horas usando o carvão granulado de 10/20 mesh.

3.2. Isotermas de absorção de molibdênio em ausência de urânio

As tabelas 1 e 2a contêm os resultados experimentais e as figuras 1 e 2a ilustram os resultados numéricos. A forma das isotermas de absorção no intervalo de concentrações baixas de molibdênio é peculiar e não obedece às equações usuais de Freundlich ou Langmuir (17). De acordo com Brunauer (ver ref. 17 p. 1202) a forma em S observada pode indicar que trata-se aqui de uma absorção em camadas moleculares múltiplas.

No caso do carvão ativo C. Erba em pó, chegamos a uma quase-saturação (ver fig. 1) que corresponde a uma capacidade de absorção ao redor de 320 g de Molibdênio por quilo de carvão em bom acordo com as indicações de Arnold e Crouse (4).

3.3. Isotermas de absorção de urânio

A tabela 2 contém os resultados experimentais que ilustram a figura 6. Contrariamente às indicações da literatura, a absorção de urânio sobre carvão ativo não é desprezível, e o nível de saturação ultrapassa 150 g de Urânio por quilo de carvão! A comparação das figuras 1, 4a e 6 mostra entretanto, que a concentração de equilíbrio na solução aquosa é para urânio entre 75 e 600 vezes superior à do molibdênio para concentrações iguais do metal sobre carvão ativo e quando estas aumentam de 0 a 0,1 g/g C (ver também tabela 2a).

3.4. Influência de urânio sobre a absorção de molibdênio

Como era de se esperar dos resultados anteriores, o urânio influe desfavoravelmente sobre a capacidade do carvão ativo de absorver o molibdênio. A tabela 3 e o gráfico 3 ilustram este efeito. Observa-se que até 30 g/l de U a fração de molibdênio absorvida por 20 g/l de carvão é superior a 50%. Acima desta concentração a eliminação total de molibdênio exigirá um grande número de estágios de contatação.

3.5. Influência da qualidade e da quantidade de carvão ativo sobre a fixação de molibdênio

Entre as amostras de carvão estudadas, não foram encontradas grandes diferenças no comportamento do ponto de vista da eficiência de fixação de molibdênio (ver tabelas 4, 5 e 6). O gráfico nº 2 mostra no caso do carvão de C. Erba em pó que um aumento da quantidade de carvão além de 20 g/l não trás benefícios apreciáveis. Até esta concentração, a fração de molibdênio absorvida aumenta praticamente linearmente com a quantidade de carvão empregada. As experiências resumidas nas tabelas 5 e 6 mostram que

por contatãõ sucessiva de soluções de urânio contendo quantida-
des variáveis de urânio (entre 35 e 30 g/l) e de molibdênio (en-
tre 300 ppm e 1% de molibdênio) com carvão ativo fresco é possí-
vel em poucos estágios descer ao nível de alguns ppm de Mo/U. Pa-
ra a concentração extrema de urânio (60 g/l) a eliminação de molib-
dênio torna-se muito mais penosa.

3.6. Re-circulação do carvão carregado

A tabela 7 e as figuras 4 e 5 mostram o efeito da dimi-
nuição do poder de absorção de carvão ativo à medida que o carvão
está sendo carregado com quantidades crescentes de molibdênio.
Não se nota nenhum efeito de "cansaço". O resultado de absorção
múltipla e de um contato único com quantidades equivalentes de mo-
libdênio total, conduz às mesmas concentrações nas duas fases em
equilíbrio.

3.7. Influência da acidez livre e de adições proposi- tadas de sílica e de fosfatos

No intervalo de 0,05 a 0,2 N, o efeito da acidez sô-
bre a fixação de molibdênio pelo carvão ativo em presença de urânio
até 60 g/l foi muito pequeno mas sistematicamente no sentido
de favorecer a absorção com acidez decrescente. Acima de 0,2 N a
acidez crescente desfavorece nitidamente a absorção de molibdênio.
Partindo da sugestão de Wibbles e Miller (2), tentamos aumentar a
fração de molibdênio absorvido formando os heteropolifosfatos de
molibdênio com sílica ou fosfato. Nenhum efeito positivo foi ob-
servado variando a relação molar de SiO_2/Mo entre 0 e 1. O efei-
to de ácido fosfórico no mesmo intervalo de concentrações, por pe-
queno que foi, parecia mais desfavorecer do que favorecer a fixa-
ção de molibdênio sobre o carvão ativo. Envelhecimento das solu-

ções preparadas durante até uma semana, não trouxe nenhum efeito benéfico.

3.8. Separação de molibdênio a partir de soluções de nitrato, sulfato, perclorato e perclorato de uranila.

Estudamos a absorção de molibdênio a partir de soluções de igual concentração de urânio alternativamente em forma de cloreto, perclorato, sulfato e nitrato, todas contendo a mesma acidez livre 0,05 N. Observou-se uma pequena variação na facilidade de fixação de molibdênio. Partindo de: 15 g/l de Urânio, 20 mg/l Mo e uma acidez livre de 0,05 N constatamos a fixação de 60% (Cl^-), 65% (ClO_4^-), 69% (SO_4^{2-}) e 72% (NO_3^-) de molibdênio usando 20 g/l de carvão ativo C. Erba em pó.

3.9. Efeito da temperatura

No intervalo de 20-80° C a temperatura foi sem efeito dentro da reprodutibilidade dos resultados sobre a separação de urânio do molibdênio.

3.10. Absorção contínua de molibdênio

As figuras 8 e 9 mostram o resultado de absorção contínua de molibdênio a partir de uma solução contendo 20 mg/l de molibdênio e 15 g/l de urânio (fig. 8) respectivamente 60 mg/l de urânio (fig. 9). O "break-through" corresponde no caso de 15 g/l de urânio a 50 Vs/Vc (volume da solução sobre o volume da coluna) e no caso de 60 g/l de urânio e apenas Vs/Vc = 15 apesar de ter sido aumentada a altura da coluna de cerca de 50% (em relação à curva "a" da fig. 8). Até o "break-through" a solução que

atravessa a coluna continha em média menos do que 0,2 mg/l de Mo, isto é 12 ppm no primeiro e 3 ppm de Mo/u no segundo caso. Observa-se integrando a curva "a" (fig. 8), que até $V_s/V_c = 200$, o efluente contém em média 25% do molibdênio original e mais do que 95% de urânio. No caso de urânio de grau técnico o "break-through" correspondeu a V_s/V_c de cerca de 25 (ver curva "b" fig. 8). Esta diminuição deve-se em parte à maior concentração salina e em parte à presença de outras impurezas que além do molibdênio (proposi tamente adicionado) competem pelos centros ativos do carvão.

4. DISCUSSÃO

Os resultados apresentados demonstram a possibilidade de separação entre o urânio e o molibdênio por meio de absorção preferencial deste último sobre carvão ativo; em soluções con tendo até 30 g/l de urânio, a separação é ainda bastante eficien te.

Devido à lentidão do equilíbrio com carvão de malha gros sa, um processo que envolve operação descontínua com filtração e/ /ou decantação intermediária parece mais promissor do que a opera ção por meio de colunas.

Finalmente deve-se observar que devido à forma diferente das isotermas de absorção de molibdênio e de urânio, o proces so de fixação preferencial de molibdênio sobre carvão, é mais van tajoso para tratamento de concentrados de urânio de teor elevado em molibdênio, do que para eliminação dos últimos traços de molib dênio do urânio purificado, já que os fatores de separação (ver tabela 2a e fig. 7) aumentam com concentração crescente de molib dênio na solução.

As diferenças observadas entre os diversos tipos de car-

vão ativo estudados, são pequenas e levam a crer que os resultados dos podem ser melhorados pela escolha de um tipo de carvão mais apropriado*.

5. BIBLIOGRAFIA

- (1) SCHIFF, N.N. e VIKLUND, H.I., USAEC ACCO 46 (1954), p.17-18.
- (2) WIBBLES, H.L. e MILLER, E.I., US Pat. 2.819.944, Jan. 14 (1958) (depositado em 26, janeiro, 1954).
- (3) GOREN, M.J., Ind. Eng. Chem. 51, 539 (1959).
- (4) ARNOLD, W.D. e CROUSE, D.J. em USAEC-CF-60-3-136, (1960).
- (5) HOLLIS, E.T. e DIXON, H.E., USAEC-WIN-53, (1958).
- (6) WOODY, R.J., GEORGE, D.R., PETROW, H., BREYMAN, J.B., PORTER, E.S., USAEC-WIN-54, (1957), p.78-80.
- (7) GARTEN, V.A. e WEISS, D.E., em Proceedings of 3rd Conference on Carbon; ed. Pergamon Press, p. 295.
- (8) STEENBERG, B., Absorption and Exchange of Ions in Activated Charcoal, ed. Almquist and Wiksells, Upsala (1944).
- (9) JAMRACK, W.D., Rare Metal Extraction, editado por Pergamon Press, (1963).
- (10) CLEGG, J.W. e FOLEY, D.D., Uranium Ore Processing, ed. Addison-Wesley (1958), p. 223.

* Experiências preliminares mostram que carvão ativo pré-tratado com H_3PO_4 absorve o molibdênio mais fortemente do que o mesmo carvão não tratado.

- (11) BRIL, K.J. e FEDERGRÜN, L., publicação IEA no prelo.
- (12) BRIL, K.J. e KRUMHOLZ, P., Interamerican Symp. Peaceful Application At. Energy, 3rd, Brasil, T/022 (1960).
- (13) BRIL, K.J., SADEK, F., FEDERGRÜN, L., CAMARGO, N.U., SABOIA DE ARAÚJO, P. e HOLZER, S., LPO-12, (1961).
- (14) BRIL, K.J., BRIL, S., FEDERGRÜN, L., HOLZER, S., MADJAR, J.B. e RÉTHY, B., LPO-2, (1959).
- (15) MAIN, A.R., Anal. Chem. 26, 1507, (1954).
- (16) SHEPHERD, M.J. e REIN, J.E., USAEC Rept. IDO-14316, (1956).
- (17) GLASSTONE, S., Textbook of Physical Chemistry, ed. D. Van Nostrand Co., (1946), (capítulo XIV).

T A B E L A N° 1

Absorção de molibdênio sobre carvão ativo em
função da concentração original de molibdênio.

Exp. nº	(Mo) _o mg/l	(Mo) _f mg/l	fração absorvida
34	1	~0.015	~0,95
4	12.5	1	0,92
5	50	4.9	0,90
13F ₁	50	4	0,92
.	100	7	0,93
6	200	11	0,94
7	500	26	0,95
14F ₁	500	27.5	0,95
9	1000	50	0,95

- urânio ausente
- carvão Merck em pó (300 mesh): 20 g/l
- acidez livre: 0.05 N HNO₃
- tempo de contato: 20'

T A B E L A N° 1a

Absorção de molibdênio sobre carvão ativo em
função da concentração original de molibdênio.

Exp. nº	(Mo) _o g/l	(Mo) _f g/l	fração absorvida
III- 1	0.02	0.0015	~92
III- 2	0.05	0.005	90
III- 3	0.03	0.009	91
III- 4	0.25	0.019	92
III- 5	0.50	0.033	93
III- 6	1.00	0.047	95
III-12	2.00	0.064	97
III-13	2.50	0.090	97
III-14	3.00	0.109	97
III-15	5.00	0.253	95
III-16	7.00	1.4	80
III-17	8.00	2.3	71
III-18	10.00	3.6	64

- urânio ausente

- carvão C. Erba em pó (300 mesh): 20 g/l

- acidez livre: 0.05 N HNO₃

- tempo de contato: 20'

TABELA Nº 2Absorção de urânio sobre carvão ativo

Exp. nº	(U ₀) g/l	(U) _f g/l	fração absorvida
V-10	0.39	0.79	0.11
V- 9	2.16	1.93	0.105
V- 8	5.40	4.90	0.093
V- 7	10.7	9.84	0.080
V- 6	27.1	25.65	0.050
V- 5	54.2	52	0.040

- carvão C. Erba em pó (300 mesh): 20 g/l
- acidez livre: 0.05 N HNO₃
- tempo de contato: 20'

T A B E L A N° 2a

Comparação entre o poder de absorção de urânio
e de molibdênio sobre carvão ativo.

g Me/g C	U _{aq.} (1) g/l	Mo _{aq.} (2) mg/l	(U/Mo) _{aq.}
0.005	0.75	10	75
10	1.5	17	88
15	2.2	24	92
20	3.25	30	108
25	4.5	34	132
30	5.75	38	151
35	7.25	41	177
40	9.0	43	210
45	11.0	46	240
50	13	48	272
55	15.5	51	304
60	18	53	340
65	20.7	56	372
70	23.5	58	405
75	26.5	60	442
80	29.5	62	475
85	32.5	64	510
90	36	66	545
95	39.5	68	582
0.100	43	70	615
05	47.5	73	650
10	52	77	675
15	56	80	700

(1) interpolado da figura 6.

(2) interpolado da figura 4a.

- carvão ativo C.Erba em pó: 20 g/l
- acidez livre: 0.05 N HNO₃
- tempo de contato: 20'
- Me = Molibdênio e/ou Urânio.

TABELA nº 3

Influência de urânio sobre a absorção
de molibdênio sobre carvão ativo.

Exp. nº	(U) ₀ g/l	(Mo) _f mg/l	fração absorvida
■	0	1.5	0.95
31	0.9	2.5	0.87
32	2.4	3	0.85
29	4.5	3.5	0.82
28	9	6.2	0.69
15, 23, 26	15	6.3	0.68
16, 24	30	8	0.60
20, 25	60	12.5	0.375

- carvão ativo Merck (300 mesh): 20 g/l
- acidez livre: 0.05 N HNO₃
- tempo de contato: 20'
- (Mo)₀ = 20 mg/l
- média de muitas experiências

TABELA Nº 4

Influência do tipo de carvão, da concentração de urânio e do tipo de agitação sobre a absorção de molibdênio.

Exp. nº	Carvão	Urânio g/l	(Mo) _p em mg/l após agitação durante				
			20'	1h	2h	5h	
46	B.H.	10/20	15	8.8	6.6	4.1	3.1
68	Carvorite	10/20	15	9.7	7.8	6.7	6.0
54	Carvorite	10/20	15	10.3	6.6	7.7	7.7
68	B.W.	10/20	15	8.6	8.3	6.7	4.4
55	B.W.	10/20	15	8.3	7.9	4.6	3.5
a	Merck	pó	15	6.5	6.5		
b	C.Erba	pó	15	5.1	5.1		
59F ₁	C.Erba	pó	30	6.3	6.3		
69	Carvorite	10/20	60	17.4	14.7	13.5	12.4
56	B.W.	10/20	60	14.3	12.1	9.6	9.6
c	Merck	pó	60	12.7	12.7		
d	C.Erba	pó	60	8.7	8.7		

a - média de 15, 23, 32F, 40 e 47.

b - média de 45, 45c, 49F e 64a.

c - média de 20, 25, 27 e 33.

d - média de 52, 53 e 65a.

- carvão ativo Merck (300 mesh): 20 g/l
- acidez livre: 0.05 N HNO₃
- tempo de contato: 20'

TABELA Nº 5

Contatos consecutivos com carvão ativo sempre fresco.
Absorção de molibdênio em função da concentração ori-
ginal de molibdênio.

Exp. nº	(U) _o g/l	(Mo) _c	Carvão	(Mo) _f após n contatos consecutivos					
				1	2	3	4	5	6
48	15	10	C.Erba pó	1.4	0.2	~0.05			
49	15	20	C.Erba pó	5.2	0.6	~0.09			
50	15	50	C.Erba pó	16.4	3.1	0.4	0.04		
51	15	100	C.Erba pó	24.6	6.9	0.65	0.04		
39	15	10	Merck pó	2					
40	15	20	Merck pó	6.3	1.2	~0.05			
41	15	50	Merck pó	19					
42	15	100	Merck pó	24.8					
43	15	500 ^{HH}	Merck pó						

^{HH} precipitou o molibdato de urânio.

- carvão ativo Merck (300 mesh): 20 g/l

- acidez livre: 0.05 N HNO₃

- tempo de contato: 20'

T A B E L A N º 6

Contatos consecutivos com carvão ativo sempre fresco.
Absorção de molibdênio em função da concentração origi-
nal de urânio e do tipo de carvão ativo.

Exp. nº	(U) _o g/l	Carvão	(Mo) _f após n contatos consecutivos						
			1	2	3	4	5	6	7
32F ^M	15	Merck pó	7.2	1.2	~0.05				
49F	15	C.Erba pó	5.2	0.6	~0.05				
59	30	C.Erba pó	6.3	1.8	0.4	~0.05			
63	60	C.Erba pó	8.1	7	3.9	2.6	2.1	1.0	0.4
53	60	C.Erba pó	8.9	6.7	3.5	2.2	1.3		
27	60	Merck pó	12.3	8.4	4.2	2			
33	60	Merck pó	12.1	7.5	4.6	2.8	1.5	0.8	

- carvão fresco de cada vez.
- acidez livre: 0.05 N HNO₃
- tempo de contato: 20'
- (Mo)_o: 20 mg/l.

T A B E L A N º 7

Efeito da recirculação do carvão ativo sobre a absorção de molib-
nio.

Contato nº	Fração de molibdênio absorvido		
	U = 0	U = 15 g/l	U = 60 g/l
1	0.93	0.77	0.39
2	0.84		0.18
3	0.79	0.55	0.13
4	0.75		0.12
5	0.71	0.46	0.12
6	0.67		0.12
7	0.65		
8	0.63	0.37	
9	0.62		
10	0.61		0.12
11	0.60	0.35	
12	0.56		
13	0.56	0.33	0.095
14	0.55		
15	0.56		0.081
16	0.56		
17	0.50	0.24	0.069
18	0.58		
19	0.515		0.044
20	0.46		
21	0.45	0.19	0.016
22	0.43	0.11	
23	0.45	0.17	
24	0.41		
25	0.34	0.11	
27			
28		0.11	
29			
30		0.11	
32	0.355		
36	0.306		

- carvão ativo C. Erba (300 mesh): 20 g/l
- acidez livre: 0.05 N HNO₃
- tempo de contato: 20'
- (Mo)₀ = 100 mg/l

TABELA Nº 8

Absorção de molibdênio sobre carvão ativo
em função da concentração de carvão ativo.

Exp. nº	Carvão g/l	(Mo) _o mg/l	(Mo) _f mg/l	fração absorvida
III-19	2	20	19	0.05 ⁱⁱ
III-20	5	20	16	0.20
III-21	10	20	12.8	0.36
III-22	20	20	5.7	0.71
III-23	40	20	3.2	0.84

- nitrato de uranila: 15 g/l U
- carvão ativo C. Erba em pó
- acidez livre: 0.05 N HNO₃
- tempo de contato: 20'

* a precisão deste ponto é duvidosa (para maior exatidão, este ponto deveria ser determinado a partir da análise de molibdênio absorvido):

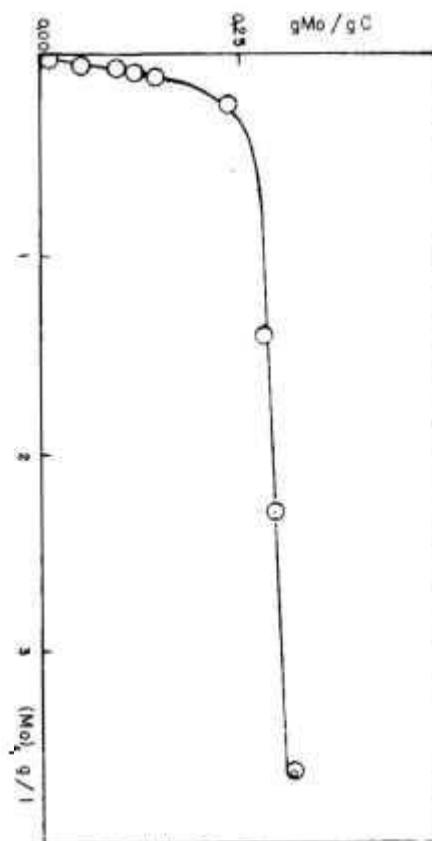


Fig. nº 1 - Absorção de molibdênio sobre carvão ativo em função da concentração de molibdênio (para as concentrações baixas de Mo ver curva "a" da figura 4).

- acidez livre: ~ 0.05 N
- carvão ativo: C. Erba em pó 20 g/l.
- urânio ausente.

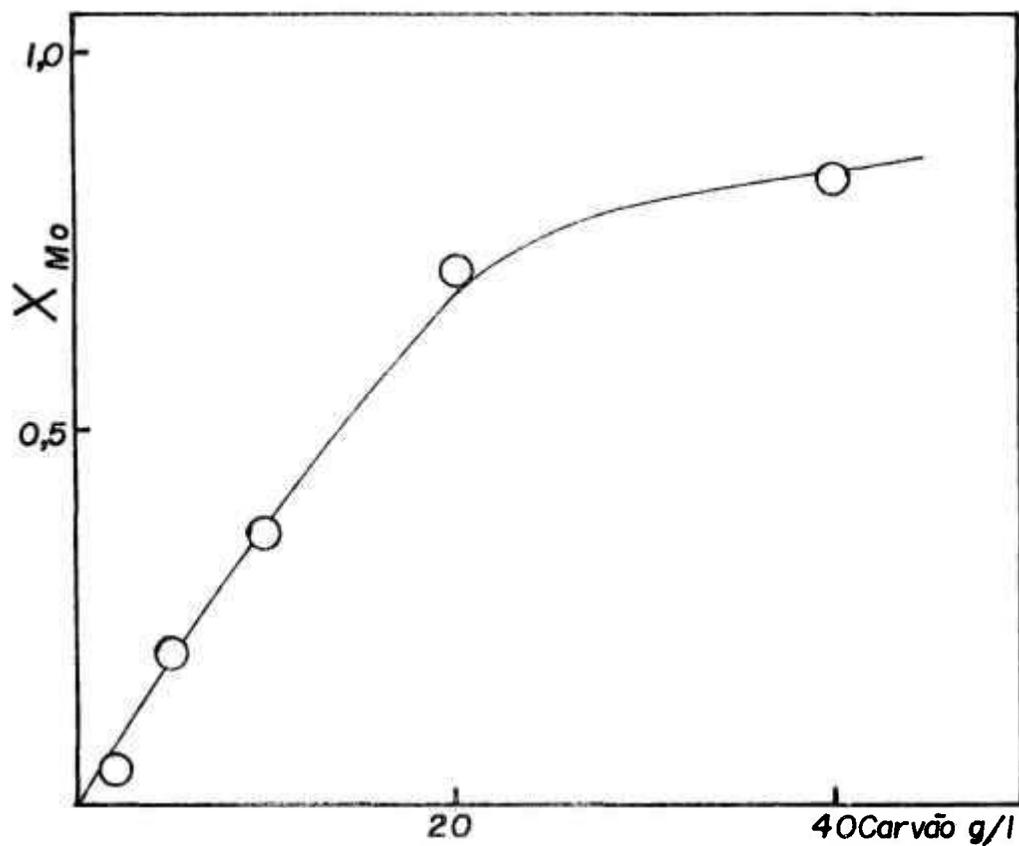


Fig. nº 2 - Influência da concentração de carvão ativo sobre a absorção de molibdênio (X_{Mo} : fração de molibdênio absorvido).

Molibdênio original:	20 mg/l de Mo
Acidez livre:	0,05 N
Urânio (nitrato):	15 g/l de U
Carvão ativo:	C. Erva em pó

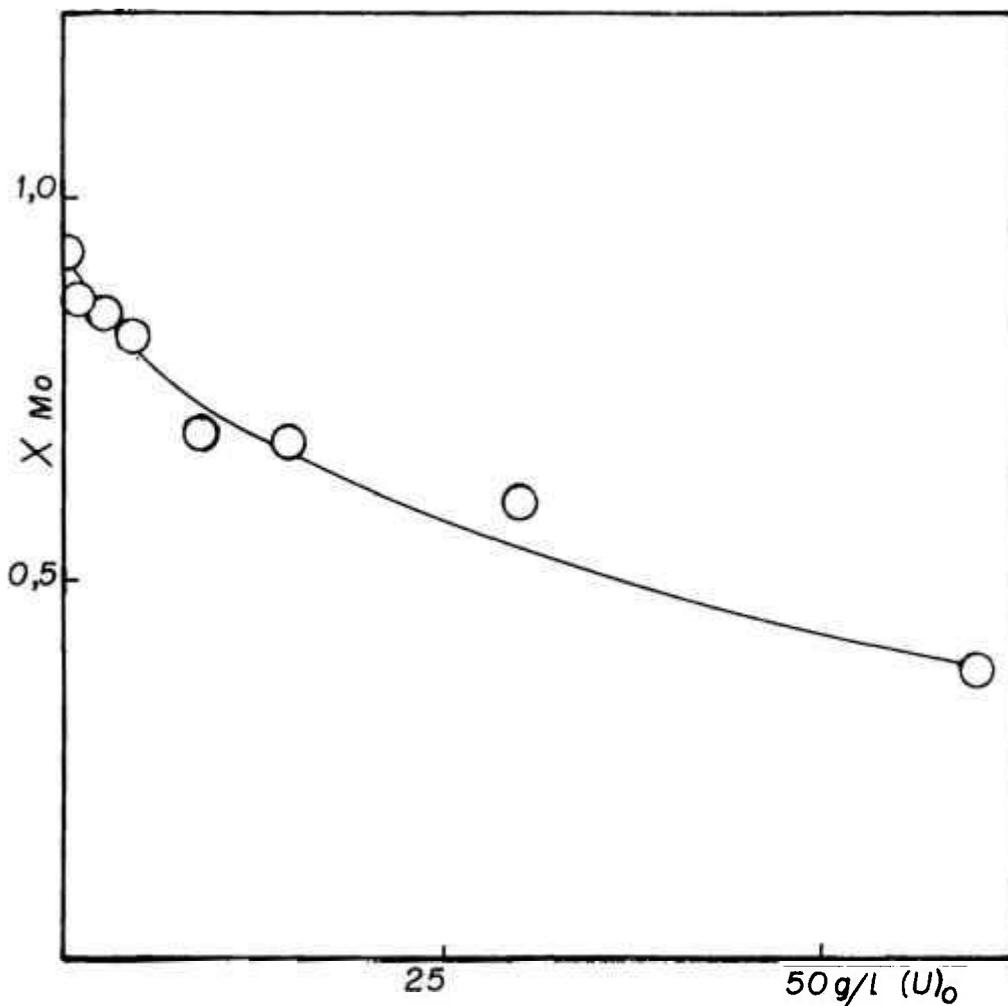


Fig. nº 3 - Influência da concentração de urânio sôbre a absorção de molibdênio pelo carvão ativo - (X_{Mo} : fração de molibdênio absorvido).

Molibdênio original: 20 mg/l Mo

Acidez livre: 0,05 N

Carvão ativo: Merck em pó 20 g/l

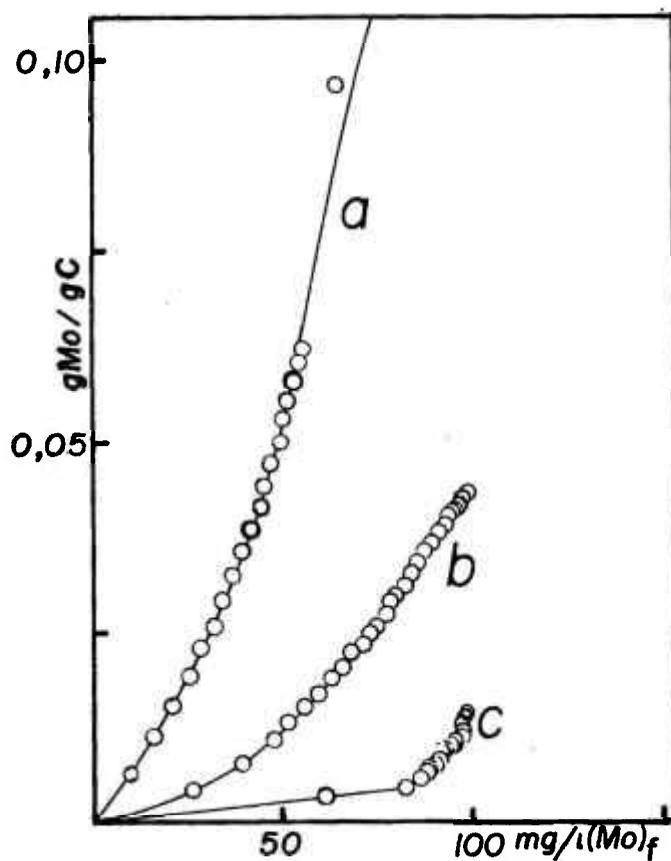


Fig. nº 4 - Absorção de molibdênio pelo carvão ativo "recirculado" sem regeneração intermediária.

- acidez livre: 0.05 N

- carvão ativo: C. Erba em pó 20 g/l

curva a: urânio ausente

curva b: urânio 15 g/l de U

curva c: urânio 60 g/l de U

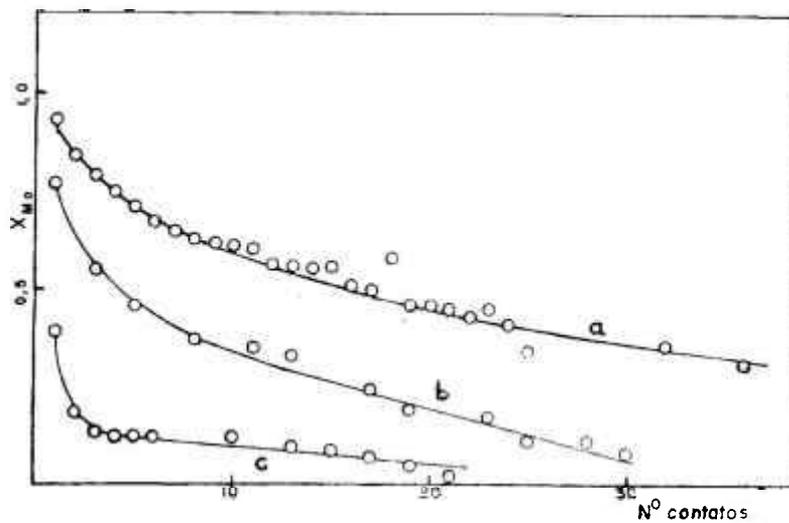


Fig. nº 5 - Absorção de molibdênio pelo carvão "recirculado", sem regeneração intermediária. (X_{Mo} : fração de molibdênio absorvido).

curva a: urânio ausente

curva b: urânio 15 g/l de U

curva c: urânio 60 g/l de U

- acidez livre: 0.05 N

- carvão ativo: C. Erba em pó 20 g/l

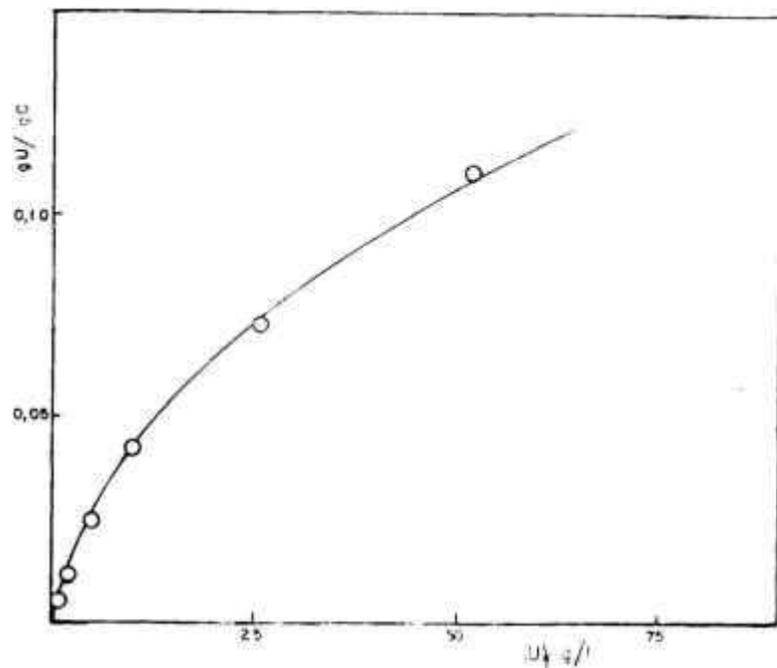


Fig. nº 6 - Absorção de urânio pelo carvão ativo.

- carvão ativo: C. Erba em pó 20 g/l
- acidez livre: 0.05 N
- solução de nitrato de uranila
- tempo de contato: 20'

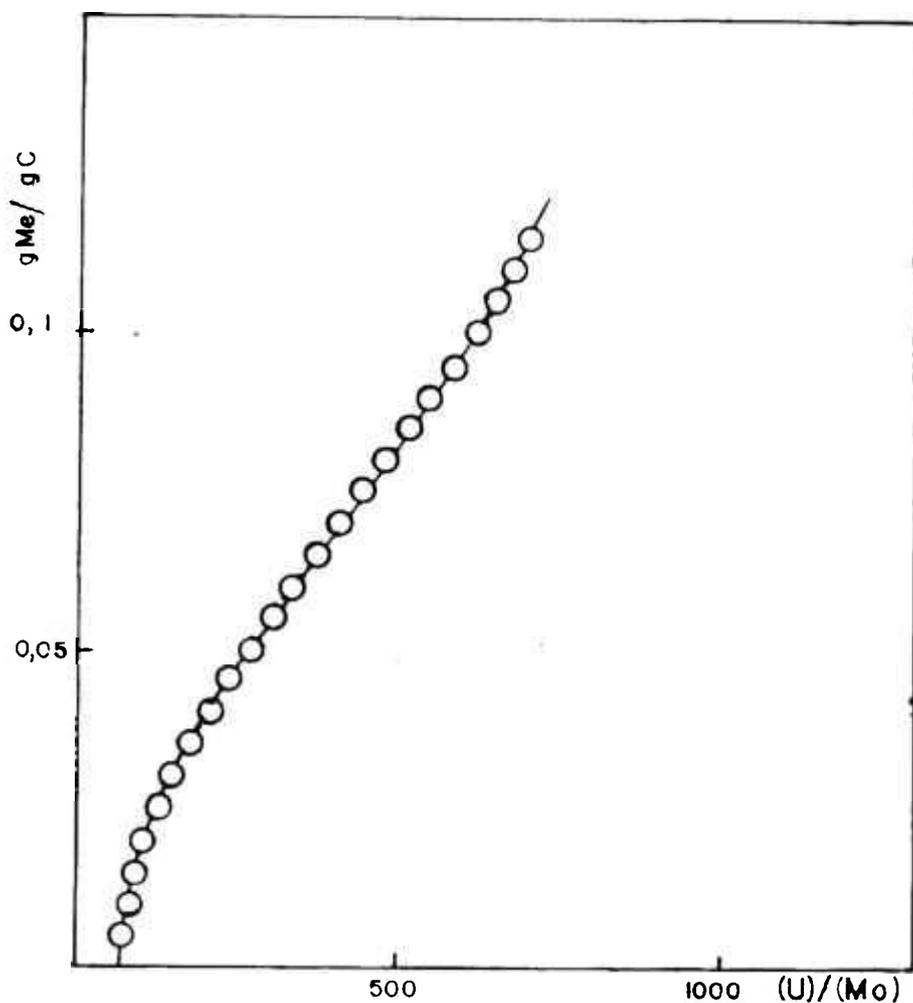


Fig. nº 1 - Relação das concentrações de urânio e de molibdênio na solução aquosa em equilíbrio com carvão carregado com igual quantidade de urânio, respectivamente molibdênio.

(Me = urânio ou molibdênio)

- carvão ativo C. Erba em pó 20 g/l
- acidez livre: 0.05 N
- tempo de contato: 20'

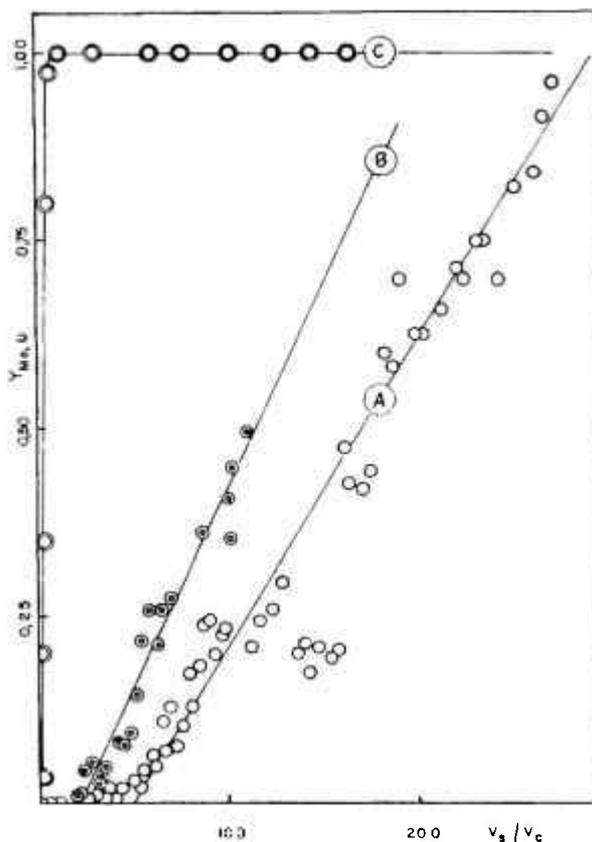


Fig. nº 8 - Absorção de molibdênio (A, B) e de urânio (C) sobre carvão ativo granulado 10/20 mesh. Diâmetro da coluna: 1.27 cm. Vazão: 1,5 - 2 l/dcm²/hora (Mo)₀ = 20 mg/l.

A. altura do carvão 23.5 cm; urânio "puro"
15 g/l U

B. altura do carvão 28.7 cm; urânio "técnico"
15 g/l U

Y_{Mo,U}: fração de molibdênio (urânio) não absorvido.

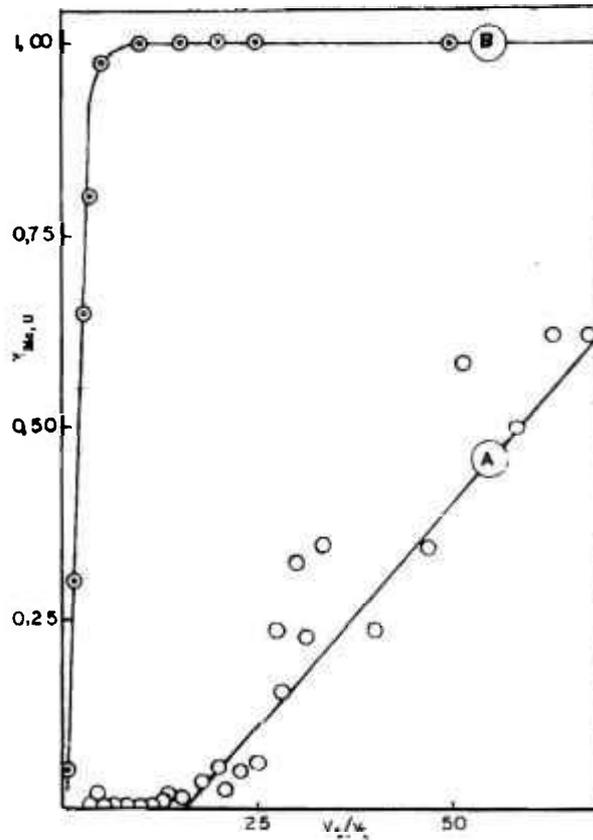


Fig. nº 9 - Absorção de molibdênio (A) e de urânio (B) sobre uma coluna de carvão ativo granulado 10/20 mesh.
 Diâmetro da coluna: 1.27 cm.
 Vazão: 1.5 - 2 l/dcm²/hora.
 $(Mo)_0 = 20$ mg/l.
 Altura do carvão: 34 cm.
 Urânio puro: 60 g/l
 $Y_{Mo, U}$: fração de molibdênio (urânio) não absorvido.