

BR 915 21 87 87

ISSN 0101-3084

CNEN/SP

ipen Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares

ESTABELECIMENTO DE UM PROCEDIMENTO RADIOQUÍMICO PARA
A OBTENÇÃO DO TITANATO DE ESTRÔNCIO

Ieda Irma Lamas Cunha e Leonardo Gondim de Andrade e Silva

IPEN - PUB - 193

PUBLICAÇÃO IPEN 193

AGOSTO/1988

SÃO PAULO

**ESTABELECIMENTO DE UM PROCEDIMENTO RADIOQUÍMICO PARA
A OBTENÇÃO DO TITANATO DE ESTRÔNCIO**

Ieda Irma Lamas Cunha e Leonardo Gondim de Andrade e Silva

DEPARTAMENTO DE FÍSICA E QUÍMICA NUCLEARES

**CNEN/SP
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
SÃO PAULO – BRASIL**

Série PUBLICAÇÃO IPEN

INIS Categories and Descriptors

B13.00

**SOLIDIFICATION
STRONTIUM
RADIOCHEMISTRY
TITANATES**

IPEN - Doc - 3056

Publicação aprovada pela CNEN em 24.09.87

Nota: A redação, ortografia, conceitos e revisão final são de responsabilidade do(s) autor(es)

ESTABELECIMENTO DE UM PROCEDIMENTO RADIOQUÍMICO PARA
A OBTENÇÃO DO TITANATO DE ESTRÔNCIO*

Ieda Irma Lamas Cunha e Leonardo Gondim de Andrade e Silva

RESUMO

Na Divisão de Radioquímica do IPEN-CNEN/SP, vem sendo desenvolvida uma linha de pesquisa que tem como objetivo estabelecer métodos radioquímicos que possibilitem a separação e a solidificação de ^{137}Cs e ^{90}Sr presentes em soluções de produtos de fissão.

Em trabalho anterior⁽¹⁾ foi apresentado um procedimento radioquímico que permite a separação de ^{90}Sr de misturas de produtos de fissão. Neste trabalho, foram estudadas as condições experimentais que permitem obter a solidificação do estrôncio, sob a forma de titanato de estrôncio, que segundo dados de literatura é uma das formas químicas mais convenientes para o uso de ^{90}Sr como uma fonte de raios beta.

ESTABLISHMENT OF A RADIOCHEMICAL PROCEDURE FOR THE
OBTAINMENT STRONTIUM TITANATE

ABSTRACT

A research that aims to develop radiochemical procedures for the separation and solidification of ^{137}Cs and ^{90}Sr from fission products solutions has been carried out at the Radiochemistry Division of IPEN-CNEN/SP.

In a previous paper⁽¹⁾, a schematic outline of the process steps for the separation of ^{90}Sr from fission products mixture was shown. In the present paper, the experimental conditions for solidification of strontium as strontium titanate have been studied. According to literature data, this compound offers the most suitable chemical form to use ^{90}Sr as beta rays source.

(*) Trabalho apresentado no II Congresso Geral de Energia Nuclear, realizado no Rio de Janeiro, de 24 a 27/04/1988.

INTRODUÇÃO

Dos muitos produtos de fissão formados na reação de fissão, alguns tem meia vida suficientemente longa e são formados com alto rendimento de fissão para serem recuperados e utilizados como fontes de radiação. Dentre os produtos de fissão destacam-se o ^{137}Cs e o ^{90}Sr , que podem ser utilizados em laboratórios de pesquisa, indústrias e em aplicações médicas. O radioisótopo ^{137}Cs é empregado como uma fonte de radiação gama, enquanto o ^{90}Sr é de interesse para aplicações que necessitam de um emissor beta puro com meia vida longa.

Na Divisão de Radioquímica do IPEN-CNEN/SP vem sendo desenvolvida uma linha de pesquisa, que tem como objetivo estabelecer métodos radioquímicos para a separação de césio e estrôncio de misturas de produtos de fissão. Em trabalhos anteriores, Cunha e Andrade e Silva⁽²⁻⁴⁾ apresentam um procedimento radioquímico para a separação de ^{137}Cs e sua posterior solidificação, sob a forma de pastilhas de fosfomolibdato de amônio (^{137}Cs -AMP), que constitui o material de partida para o uso de ^{137}Cs como fonte de radiação gama.

Dando prosseguimento ao desenvolvimento dessa linha de pesquisa, foi estabelecido um procedimento radioquímico que permite a recuperação de ^{90}Sr de soluções simuladas do Processo Purex⁽¹⁾. No presente trabalho, foram estudadas as condições experimentais para a solidificação do ^{90}Sr , com o objetivo de obtê-lo em uma forma química adequada para ser utilizado como uma fonte padrão de raios beta. O método adotado consiste na obtenção do estrôncio sob a forma de titanato de estrôncio, que segundo dados de literatura⁽⁵⁾ é uma das formas químicas mais convenientes para a obtenção de fontes beta de ^{90}Sr .

PARTE EXPERIMENTAL

Obtenção de Traçadores Radioativos

Pastilhas de 2,5 g de U_3O_8 foram irradiadas por 320 horas, sob um fluxo de nêutrons térmicos de $10^{12} \text{ ncm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, no reator do IPEN-CNEN/SP. Após um tempo de resfriamento de 4 meses, a pastilha foi dissolvida com solução de ácido nítrico 4M. Os produtos de fissão emissores de radiação gama presentes nesta solução são ^{137}Cs , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{144}Ce e ^{106}Ru . O radioisótopo ^{90}Sr foi obtido comercialmente, enquanto o ^{85}Sr foi obtido pela irradiação de 100 mg de nitrato de estrôncio durante 16 horas. O sal de nitrato de estrôncio foi dissolvido com solução de ácido nítrico 0,1 M.

Composição da Solução de Produtos de Fissão

À uma alíquota da mistura de produtos de fissão acima mencionada, contendo o urânio e os traçadores radioativos dos elementos em estudo, foram adicionados carregadores desses elementos, para que a concentração dos produtos de fissão estivessem no intervalo de 10^{-5} a 10^{-4} M. A concentração do urânio foi de 0,1 g U/litro e a acidez da solução foi ajustada em 4 M em ácido nítrico.

Determinação da Contagem dos Radioisótopos

Durante os procedimentos radioquímicos, as contagens dos radioisótopos foram determinadas usando-se um analisador multicanal (4096 canais), acoplado a um detetor de Ge-Li. Para as contagens do ^{90}Sr empregou-se o contador Geiger Muller, e as medidas do ^{85}Sr foram feitas com o emprego de um detetor

de NaI(Tl), monocanal. O urânio foi determinado pela análise de nêutrons epitérmicos⁽⁶⁾, empregando-se um detetor de cintilação de NaI(Tl), acoplado a um analisador de 400 canais.

Separação de ⁹⁰Sr da Mistura de Produtos de Fissão

A solução contendo o urânio e os produtos de fissão ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ¹⁰⁶Ru, ¹⁴⁴Ce, ⁹⁵Zr e ⁹⁵Nb, acidez 4 M em ácido nítrico, foi percolada por uma coluna de sílica gel, onde ficaram adsorvidos os elementos zircônio e nióbio. A seguir, a solução efluente da coluna de sílica gel foi percolada pela coluna de fosfato de zircônio, que é um trocador seletivo para o cé-sio⁽³⁾. Na solução efluente da coluna de fosfato de zircônio, contendo o urânio, cério, rutênio e estrôncio, ajustou-se a acidez para 7 M em ácido nítrico e procedeu-se à extração dos dois primeiros elementos com o emprego de uma solução de TBP-varsol 30% (Va = Vo). Nestas condições, o estrôncio e parte do rutênio permaneceram na fase aquosa. Para a separação do estrôncio do rutênio, ajustou-se a acidez da fase aquosa para 3,5 M em ácido nítrico e, esta solução foi percolada na coluna de pentóxido de antimônio hidratado (HAP), que possibilita a retenção seletiva do estrôncio⁽¹⁾. Para a eluição do estrôncio, empregou-se uma solução de nitrato de chumbo 1,5 M em meio de ácido nítrico 0,1 M.

A Figura 1 mostra todas as etapas necessárias a separação do ⁹⁰Sr presente em misturas de produtos de fissão.

Separação de Estrôncio do Chumbo

O estrôncio, separado do urânio e dos demais produtos de fissão, está presente com uma quantidade muito grande de chum-

bo (44 g de chumbo para 100 mg de estrôncio). Portanto, antes de se proceder a solidificação do estrôncio, este deve ser separado do chumbo, o que pode ser conseguido por meio de uma série de precipitações sucessivas. Em uma primeira fase, adicionou-se ácido sulfúrico concentrado a solução que contém o estrôncio e o chumbo, precipitando os dois elementos como sulfato. A seguir, com a adição de solução de carbonato de sódio, o precipitado de sulfato se transformou em carbonato. Finalmente, este último precipitado foi tratado com ácido clorídrico. Nesta etapa, o estrôncio passou para a solução, enquanto o chumbo permaneceu precipitado como cloreto de chumbo.

Para se determinar as melhores condições de separação do estrôncio do chumbo, vários fatores foram estudados, a saber, quantidade de reagentes (ácido sulfúrico, carbonato de sódio, ácido clorídrico), tempo e temperatura de digestão do precipitado. Para a realização destes experimentos, foram preparadas soluções contendo 100 mg de estrôncio na presença de 100 mL de uma mistura de nitrato de chumbo 1,5 M e ácido nítrico 0,1 M. Para facilidade das medidas de contagem usou-se como traçador radioativo do estrôncio, o radioisótopo ^{85}Sr , que é um emissor de raios gama e pode ser detectado por um detetor de NaI(Tl) monocanal.

Com o conjunto de resultados obtidos pode-se propor o seguinte procedimento para a separação do estrôncio do chumbo:

À solução de estrôncio eluída da coluna de HAP com 100 mL de nitrato de chumbo 1,5 M em ácido nítrico 0,1 M foram adicionados 15 mL de ácido sulfúrico concentrado. Após 1 hora de digestão do precipitado, mantendo-se a temperatura a 60°C , o precipitado foi separado por decantação e a este foram adi

cionados 100 mL de uma solução de carbonato de sódio contendo 28,3 g deste sal. Após a separação do precipitado por decantação, este foi transformado na forma clorídrica por meio de adição de 200 mL de ácido clorídrico (1:1). Em todas as precipitações, o tempo de digestão do precipitado foi de 1 hora e a temperatura de 60°C. Com este procedimento, 90% do estrôncio foi separado do chumbo; sendo que na solução de cloreto de estrôncio restaram 0,1% da quantidade de chumbo inicialmente presente na solução.

Solidificação do Estrôncio

Após a etapa de separação do estrôncio do chumbo, o estrôncio está presente em 200 mL de uma solução de ácido clorídrico 5,5 M, contendo 100 mg de carregador de estrôncio e usando como traçador radioativo de estrôncio, o radioisótopo ^{85}Sr .

Levando-se em consideração os resultados obtidos ao se estudar os vários fatores que afetam o processo de solidificação do estrôncio, para obtê-lo sob a forma de titanato de estrôncio, a saber: quantidade de carbonato, quantidade de óxido de titânio, tempo e temperatura de digestão do precipitado, pode-se propor o seguinte procedimento para a solidificação do estrôncio:

A solução clorídrica resultante da separação estrôncio - chumbo foi levada a secar para remover o excesso de ácido e retomada em 50 mL de água. A esta solução foram adicionados 1 g de carbonato de amônio e 1 g de óxido de titânio. Após um tempo de digestão de 1 hora, a mistura de $\text{SrCO}_3\text{-TiO}_2$ foi filtrada e calcinada a 1100°C para ocorrer a formação do titanato de estrôncio (SrTiO_3).

A porcentagem de estrôncio retida no sólido $\text{SrCO}_3\text{-TiO}_2$ foi de 99%. Ao se calcinar este sólido a 1100°C , para a obtenção do titanato de estrôncio, ocorreu nesta etapa uma perda de 10% do estrôncio.

A Figura 1 mostra todas as etapas envolvidas na solidificação do ^{90}Sr .

CONCLUSÃO

A solidificação do estrôncio pelo método aqui proposto mostrou ser um método eficaz para a obtenção do estrôncio sob a forma sólida de titanato de estrôncio, que pode ser usado como fonte padrão para calibração de equipamentos de contagem de raios beta. Além disso, com a sequência de passos indicada na Figura 1, elimina-se da mistura de produtos de fissão ^{137}Cs e ^{90}Sr , que têm meias vidas longas, simplificando a disposição dos constituintes remanescentes da solução.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ANDRADE E SILVA, L.G. & CUNHA, I.I.L. Estabelecimento de um método radioquímico para a separação de ^{90}Sr de misturas de produtos de fissão. In: SBPC, 39ª Reunião Anual, Brasília 12 a 18 Julho, 1987. (a ser publicado na Rev. Ciênc. e Cultura).
2. CUNHA, I.I.L. & ANDRADE E SILVA, L.G. Estabelecimento de um método radioquímico para a separação de ^{137}Cs de misturas de produtos de fissão. In: QUÍMICA, 16º Congresso Latino Americano realizado no Rio de Janeiro, out. 14-20, 1984. (Separata).

3. CUNHA, I.I.L. & ANDRADE E SILVA, L.G. Solidificação de soluções radioativas de ^{137}Cs . In: ENERGIA NUCLEAR : Anais do 1º Congresso Geral, realizado no Rio de Janeiro, 17-20 Março, 1986. Associação Brasileira de Energia Nuclear, 1986. v.2, p.209.
4. CUNHA, I.I.L. & ANDRADE E SILVA, L.G. Recovery of ^{137}Cs from acidic fission products solutions. J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters, 104(5):293, 1986. ===
5. SHOR, R.; LAFFERTY, R.H.; BAKER, P.S. ^{90}Sr heat sources. Isot. Radiat. Technol., 8(3):260, 1971. =
6. ATALLA, L.T. & LIMA, F.W. Determination of uranium in thorium matrices by epithermal neutron activation analysis. J. Radioanal. Chem., 20:607, 1974. ==

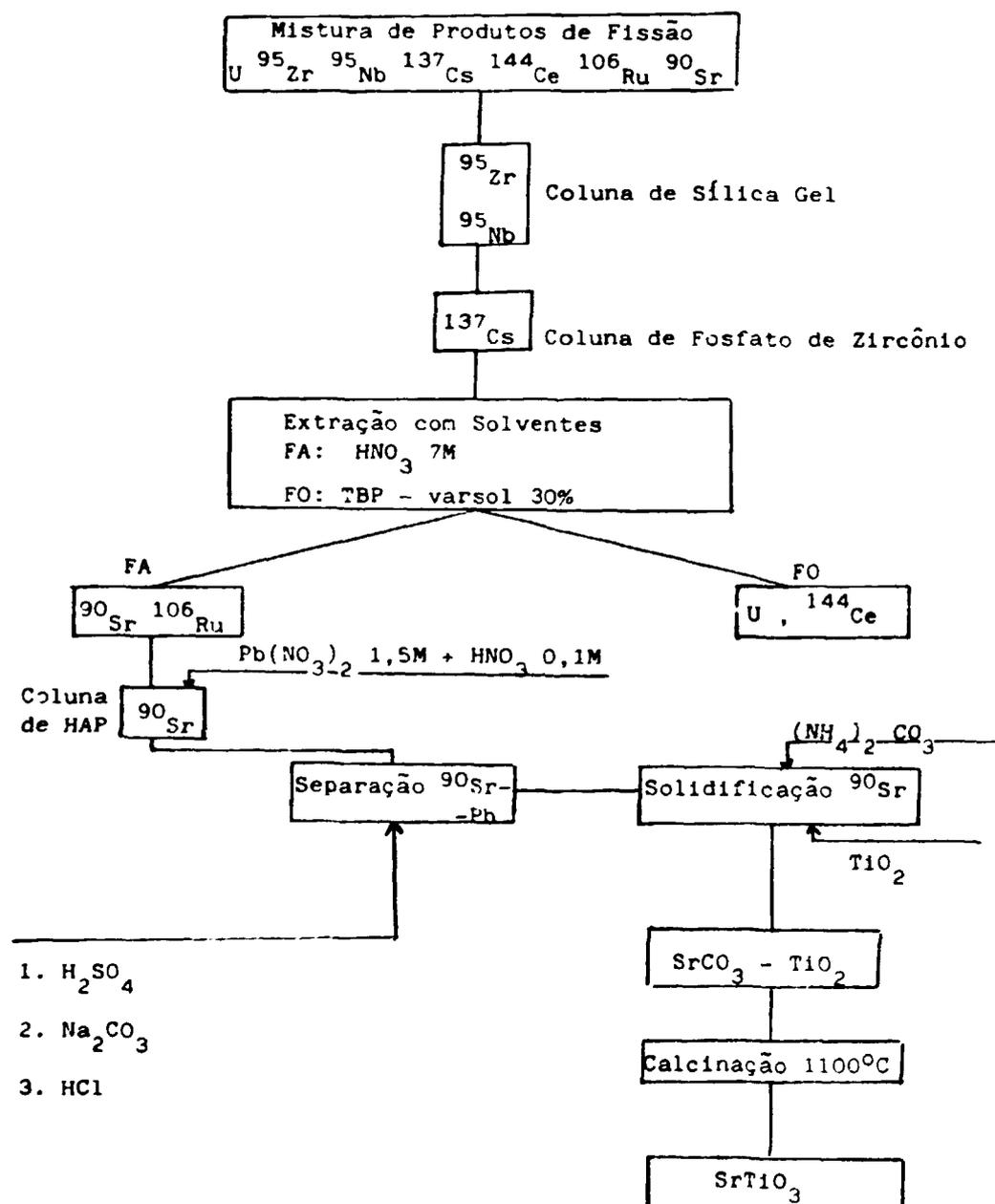


Figura 1 - Recuperação e Solidificação do ^{90}Sr de Misturas de Produtos de Fissão.