

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

SECRETARIA DA INDÚSTRIA, COMÉRCIO, CIÊNCIA E TECNOLOGIA

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

OPERAÇÃO DE UMA UNIDADE SEMI-INDUSTRIAL
DE PRODUÇÃO DE UO_3

Shigueaki Baba

Dissertação apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares como parte dos requisitos para a obtenção do grau de "Mestre na Área de Concentração em Reatores Nucleares de Potência e Tecnologia do Combustível Nuclear.

1
Orientador: Dr. Alcídio Abrão



SÃO PAULO

1982

OPERAÇÃO DE UMA UNIDADE SEMI-INDUSTRIAL DE PRODUÇÃO DE UO_3

SHIGUEAKI BABA

RESUMO

Estudou-se a transformação de nitrato de urânio em diuranato de amônio (DUA) usando-se amônia gasosa como reagente. O DUA foi filtrado, secado e decomposto termicamente tendo-se como produto final o trióxido de urânio (UO_3).

Visou-se, neste estudo, a aquisição de experiência no campo da tecnologia de preparação de UO_3 numa unidade de processo contínuo (semi-industrial) e à determinação das condições operacionais adequadas para obtenção deste produto, de modo a projetar-se e instalar-se uma unidade em regime contínuo para produção de UO_3 em escala industrial (100 kg de U/h).

Estudou-se a influência dos seguintes parâmetros na qualidade do UO_3 : a) No reator de precipitação: concentração de nitrato de urânio na alimentação, pH da suspensão de DUA na descarga, temperatura de precipitação e tempo de residência da suspensão de DUA; b) No filtro rotativo: velocidade do tambor, período de oscilação do agitador da suspensão de DUA na bacia, concentração de DUA na suspensão, temperatura e pH da suspensão, elemento filtrante, lâmina des-tacadora de torta, distribuição do vácuo nos gomos do tambor; c) No forno de cinta: tempo de residência da torta na zona de secagem e na zona de decomposição térmica, perfil de temperatura no forno, umidade da torta de DUA na entrada, vazão de ar

de reação na zona de decomposição térmica e sua temperatura, distribuição da torta na cinta e características de torta.

As melhores condições de operação foram obtidas correlacionando-se o efeito dos parâmetros operacionais so bre a produção e as características mecano-físico-químicas do UO_3 .

OPERATION OF A SEMI-INDUSTRIAL UNIT FOR THE PRODUCTION OF UO_3

SHIGUEAKI BABA

ABSTRACT

This work discusses the precipitation of ammonium diuranate (ADU) from uranyl nitrate using ammonia gas as precipitant, its filtration, dewatering and conversion to nuclear grade uranium trioxide. The ADU was filtered using a rotary drum filter and dried into a continuous belt conveyor tunnel furnace.

Experiments were made to find suitable technological conditions to obtain UO_3 with chemical and mechanical characteristics appropriated to feed the UF_4 Pilot Plant.

To reach this aim the following parameters were studied:- uranyl nitrate concentration, precipitation temperature, residence time and final pH of the ADU pulp; filter element characteristics, rotation speed and vacuum distribution in the rotary drum filter; residence time, temperature and water content of UO_3 in the continuous belt conveyor tunnel furnace.

The best operational conditions recommended are: uranyl nitrate concentration: 100 g U/L, ADU pH precipitation: 9, temperature of the pulp inside the reactor 60-85°C, residence time: 40 minutes; ADU pulp concentration: 100 g U/L; temperature of ADU in the filter: 30-60°C; pH of the ADU-pulp in the filter: 9; rotation speed: 0,072-0,090 rpm; vacuum conditions: 15-24 inches Hg column; residence time of ADU/ UO_3 cake in the furnace: 4 hours.

SUMÁRIO

	Página
CAPÍTULO I - CONSIDERAÇÕES GERAIS	1
1. Introdução	1
2. Generalidades sobre a transformação do concentrado em UO_3 nuclearmente puro	3
3. Linha para processamento de urânio no CEQ	5
CAPÍTULO II - DIURANATO DE AMÔNIO NUCLEARMENTE PURO E SUA TRANSFORMAÇÃO EM UO_3	10
1. Tecnologia para produção de diuranato de amônio	10
2. Trióxido de urânio	23
CAPÍTULO III - OPERAÇÃO DA UNIDADE DE UO_3 - PRODUÇÃO DE UO_3	26
1. Equipamentos	26
2. Produção de UO_3 a partir da solução de nitrato de urânio 100 g de U/L e NH_3 gasoso	50
3. Matérias primas	54
4. Utilidades	55
5. Métodos analíticos	56
CAPÍTULO IV - OPERAÇÃO DA UNIDADE DE PRODUÇÃO DE UO_3	58
1. Determinações preliminares à partida	58
a. Determinação da concentração de urânio na solução aquosa de nitrato de urânio	58

b. Determinação de vazões de alimentação do reator químico	62
2. Estudos dos parâmetros que influenciam a qualidade e a produção do UO_3	69
3. Pré-operação para produção experimental de UO_3	71
a. Ensaio para a verificação do funcionamento dos equipamentos	72
b. Produção de DUA/ UO_3 sem controle de qualidade de produto	75
c. Otimização dos parâmetros operacionais na produção de DUA/ UO_3	87
CAPÍTULO V - PROGRAMAÇÃO DA PRODUÇÃO DE DUA - CONTROLE DOS PARÂMETROS	114
1. Cálculo de vazão de nitrato de urânio	114
2. Cálculo de vazão de amônia	114
3. Temperatura de precipitação	115
4. pH de precipitação	115
5. Condição de vácuo na formação e enxugamento da torta no filtro	115
6. Período do agitador de suspensão de DUA na bacia do filtro	116
7. Cálculo da velocidade de tambor do filtro rotativo	116
8. Elemento filtrante	117
9. Perfil de temperatura no forno de cinta rolante	117
10. Tempo de residência do forno	118
11. Altura da camada da torta na cinta	118
12. Pontos de amostragem para análises. Controle de qualidade	119
13. Produção de DUA seco como alternativa para a operação da unidade piloto de UO_3	120

	Página
14. Matérias primas, insumos e utilidades	121
15. Pessoal	122
16. Produção acumulada de DUA/UO ₃	122
CAPÍTULO VI - CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES	125
1. Conclusões	125
2. Recomendações	128

CAPÍTULO I

CONSIDERAÇÕES GERAIS

INTRODUÇÃO

Em 1973, com a crise de petróleo, outros tipos de energia tornaram-se viáveis. Assim, a política de auto-suficiência em energia passou a ser prioritária e a busca de energia alternativa tornou-se necessária. O investimento no setor nuclear, por parte do governo, pequeno antes da crise, tornou-se importante e o ciclo de combustível à base de urânio e tório passou a ser motivo de estudo e preocupação por parte das autoridades.

No ciclo de combustível à base de urânio incluem-se a prospecção e o tratamento de minério, a purificação de concentrados de urânio, a produção de UO_3 , UF_4 e UF_6 , e enriquecimento em Urânio-235, a fabricação dos elementos combustíveis e seu retratamento após o uso nos reatores.

No Centro de Engenharia Química (CEQ) do Insti

tuto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) de São Paulo existem instalações piloto e de demonstração que transformam o diuranato de sódio (DUS) impuro em UF_6 nuclearmente puro para alimentar, futuramente, unidades de enriquecimento isotópico. Essas instalações são: 1) Unidade de Purificação, que utiliza a técnica de extração com solventes, transformando o concentrado de urânio na forma de diuranato de sódio impuro em solução aquosa de nitrato de urânio nuclearmente puro; 2) Unidades de produção de UO_3 e UF_4 ; 3) Usina piloto de produção experimental de UF_6 .

Em princípios de 1978 iniciou-se a pré-operação da Unidade Semi-industrial Contínua de DUA/ UO_3 , já montada e instalada no CEQ. Durante os anos de 1978 e 1979 a Unidade sofreu adaptações e as primeiras operações num regime de 8 horas coroaram-se de êxito, conseguindo resultados satisfatórios. Estabeleceu-se, no início de 1980, nesta Unidade, a operação em escala de demonstração em regime contínuo de 24 horas/dia, para estudar as características de UO_3 para alimentação na Unidade de UF_4 . Em meados do mesmo ano utilizou-se este tipo de UO_3 nos reatores redução-fluoretação de UO_3 , tipo leito móvel - L, do CEQ. De modo geral, apesar de vários problemas, na mesma hora contornados, a redução de UO_3 em UO_2 foi satisfatória, demonstrando a boa qualidade de UO_3 para aquele fim.

Demonstrou-se, assim, a possibilidade de produção contínua de UO_2 no reator de leito móvel.

2. GENERALIDADES SOBRE A TRANSFORMAÇÃO DO CONCENTRADO EM UO_3 NUCLEARMENTE PURO

A linha de processamento de urânio, desde o concentrado a UO_3 puro, compreende as seguintes fases (figura 1):

a) Purificação de Urânio. Envolve duas fases principais: (I) dissolução ácida do concentrado de urânio e obtenção de uma solução de nitrato de urânio impura; (II) purificação - preparação de uma solução de alta pureza nuclear¹³.

Define-se o "concentrado de urânio" (yellow - cake na literatura de língua inglesa) como um produto bruto de urânio, com um mínimo de 65% em U_3O_8 , podendo ser constituído por diuranato de sódio (DUS, $Na_2U_2O_7$), trióxido de urânio (UO_3), diuranato de amônio (DUA, $(NH_4)_2U_2O_7$), diuranato de magnésio (DUM, MgU_2O_7) ou octóxido de urânio (U_3O_8).

b) Preparação de UO_3 . A obtenção de UO_3 a partir de uma solução aquosa de nitrato de urânio nuclearmente puro consiste em cinco fases principais: (I) obtenção de suspensão de DUA, de tricarbonato de amônio e urânio ou de peróxido de urânio, em condições operacionais adequadas; (II) obtenção de torta úmida (no filtro); (III) secagem e decomposição térmica de torta; (IV) embalagem e armazenamento de UO_3 (este, por ser higroscópico, deve ser embalado num recipiente à prova de umidade); (V) retirada de amostras.

Pode-se utilizar outro processo para fabricar UO_3 que consiste na concentração, por evaporação, de uma solução de nitrato de urânio e sua posterior decomposição térmica.

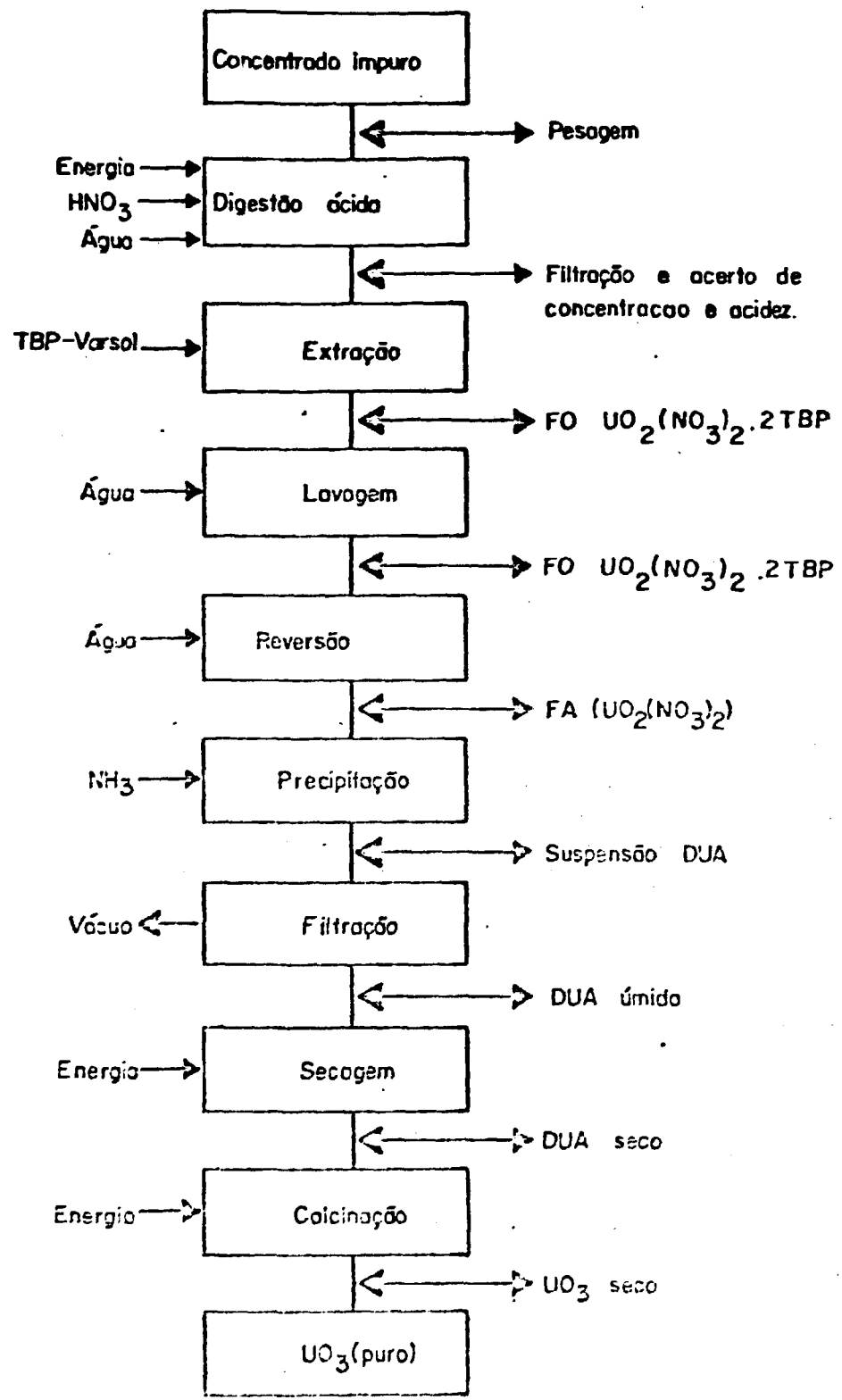


Figura 1: Etapas principais dos processos de fabricação de UO₃ nuclearmente puro.

3. LINHA PARA PROCESSAMENTO DE URÂNIO NO CEQ

Mais pormenorizadamente, faz-se, a seguir, uma descrição das diversas fases, tomando-se por base as instalações semi-industriais do CEQ/IPEN.

A instalação semi-industrial de purificação é dividida em 2 setores: tratamento do concentrado de urânio e purificação de urânio.

Setor de tratamento de concentrado de urânio

O concentrado de urânio, obtido pelo tratamento industrial de monazita ou de outras fontes, é o diuranato de sódio, de estequiometria aproximada $\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7$, contendo, entre outras impurezas: sódio, tório, terras raras, ferro, fósforo e silício.

Primeiramente faz-se a dissolução do diuranato de sódio bruto com ácido nítrico concentrado e, em seguida, digestão ácida, com a finalidade de destruir a matéria orgânica e insolubilizar a sílica.

A reação representativa é:



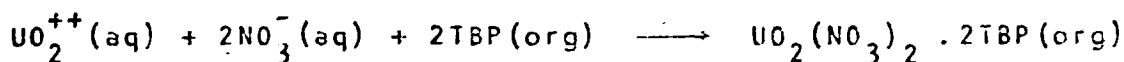
Após a digestão, procede-se à filtração a vácuo, obtendo-se uma solução límpida e estável de nitrato de urânio, que terá concentração e acidez livre acertada antes de ser encaminhada ao setor de purificação.

Purificação de Urânio

A purificação por extração com solventes baseia-se nas propriedades de certos solventes orgânicos extraírem preferencialmente o nitrato de urânio e não os outros nitratos e a facilidade com que o nitrato de urânio é revertido à fase aquosa quando a fase orgânica entra em contacto com a água. No CEQ-IPEN, o contacto das fases é feito em colunas pul- sadas de pratos perfurados, utilizando-se como fase orgânica uma solução de 35% fosfato de tri-n-butila (TBP)-varsol¹³.

A purificação é feita em três colunas:

a) Extração. Contacto entre a solução de nitrato de urânio impuro (fase aquosa) e a mistura TBP-varsol (fase orgânica), com fluxos em contracorrente. O nitrato de urânio é extraído seletivamente para a fase orgânica, segundo a reação:

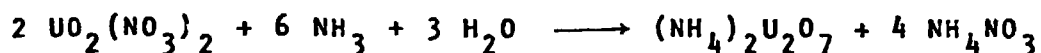


b) Lavagem. A fase orgânica contendo urânio (saída da coluna de extração) é lavada com uma pequena quantidade de água desionizada (fase aquosa), a fim de remover as impurezas que não foram eliminadas totalmente na extração.

c) Reversão. Transferência do urânio contido na fase orgânica lavada, para uma fase aquosa (água desionizada). A fase orgânica, já sem urânio, será usada novamente na extração após tratamento adequado e acertada a composição solvente-diluente.

Precipitação de Diuranato de Amônio

O processo utilizado no CEQ-IPEN é contínuo, utilizando-se gás amônia como agente precipitante, tendo-se como produto uma suspensão de DUA, segundo a reação:



Separação da torta úmida de DUA

A suspensão de DUA é filtrado a vácuo num filtro contínuo obtendo-se torta de DUA úmida (50%).

Secagem da torta de DUA

A torta úmida de DUA é submetida à secagem. Esta operação pode ser feita em estufas (processo estático), ou em fornos do tipo cinta (processo contínuo). Este último está em uso no CEQ.

Termodecomposição do DUA para obtenção do UO_3

O DUA é submetido a um tratamento térmico controlado (max 350°C) para a obtenção de UO_3 . No CEQ essa operação é feita no forno de cinta móvel.

A precipitação, filtração, secagem e decomposição térmica são importantes parâmetros cujo controle é altamente desejável. O estudo desses parâmetros e seu controle na unidade de demonstração em uso no IPEN é a meta dessa dissertação.

Preparação de UO_2

Como informação adicional para a primeira fase do ciclo de combustível mencionaremos a produção de UO_2 e UF_4 como produtos intermediários para fabricação de UF_6 . Faz-se a transformação de UO_3 em UO_2 por redução com hidrogênio. Este pode ser obtido por craqueamento da molécula NH_3 ou usado como mistura sintética hidrogênio mais nitrogênio. A redução se faz em processos contínuos, utilizando-se das mais variadas técnicas, como leito fluidizado e leito móvel, entre outras²².

As propriedades físicas de UO_3 determinam as velocidades e a eficiência do processo de redução, além de terem grande influência nas propriedades físicas de UO_2 formado²².

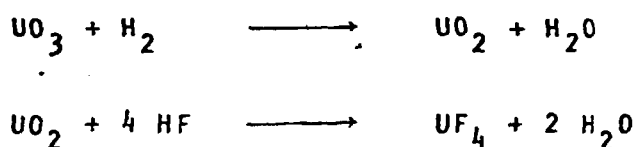
A composição do produto de partida (umidade por exemplo) e a temperatura de redução de UO_3 , por hidrogênio originado do craqueamento de NH_3 , bem como a distribuição de temperatura ao longo do reator de redução, são importantes na operação e nas propriedades físicas e químicas de UO_2 resultante²².

Produção experimental de UF_4

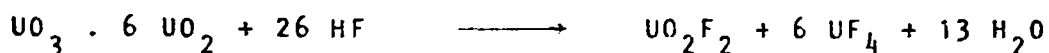
O tetrafluoreto de urânio é usado como um composto intermediário na produção de urânio metálico e de hexafluoreto de urânio (UF_6). Os fatores que determinam o teor de UF_4 de um produto são muitos e inter-relacionados de modo complexo, sendo que o tipo de material de partida pode ser consi

derado como a primeira variável. Além da temperatura do leito de sólidos reagentes ter um efeito importante na velocidade e complementação das reações, o comportamento de um UO_3 depende do volume da amostra (vazões), do tipo de reator e da maneira pela qual se processam a redução e a fluoridretação¹⁰:

As reações principais são¹²:



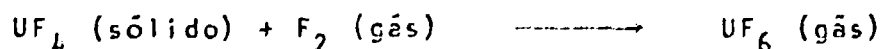
As reações secundárias são¹⁰:



Produção experimental de UF_6

O hexafluoreto de urânio é obtido a partir de reação de UF_4 (tetrafluoreto de urânio) com flúor elementar, em condições operacionais adequadas. O flúor é produzido pelo processo de eletrólise de HF na própria usina e submetido a um tratamento especial, visando a eliminação de impurezas provenientes da eletrólise (principalmente HF). Após a purificação, o flúor reage com UF_4 (reação exotérmica) para a obtenção de UF_6 . Este é purificado por passagem forçada em filtro de monel sinterizado, coletado e armazenado.

A reação principal¹⁴:



$$H = -60 \text{ kcal/mol}$$

CAPÍTULO II

DIURANATO DE AMÔNIO NUCLEARMENTE PURO E SUA TRANSFORMAÇÃO EM UO_3

1. TECNOLOGIA PARA PRODUÇÃO DE DIURANATO DE AMÔNIO

Os diuranatos têm um papel relevante na tecnologia dos combustíveis nucleares. O diuranato de amônio nuclearmente puro é um produto intermediário importante, do qual se produz trióxido de urânio (UO_3). Em princípio, diversos compostos podem ser usados como material de partida na produção de UO_3 . No Centro de Engenharia Química usa-se DUA para produção de UO_3 e isto deve-se à linha adotada pelo CEQ na conversão de DUS a UF_6 .

De acordo com o processo no qual é submetido o DUA, este deve apresentar certas especificações, entre elas umidade, densidades solta e batida, área específica, tamanho de cristalito e grau de compactação.

A exigência técnica mais observada no CEQ é a característica mecânico-físico-química do DUA seco e do UO_3 cor

respondente para ser usado como carga na unidade de UF_4 (leito móvel).

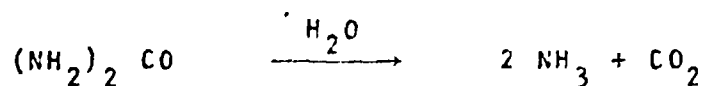
Na preparação de DUA existem várias linhas que envolvem a reação entre a solução aquosa de íon uranilo (nitrato e sulfato) e os reagentes amoniacaais (gás amônia não diluído, gás amônia diluído com ar, solução aquosa diluída ou concentrada de hidróxido de amônio, e uréia).

Diuranato de amônio a partir de nitrato de uranilo

Prepara-se o diuranato de amônio pela adição de hidróxido de amônio ou amônia gasosa à solução de nitrato de uranilo.

Precipita-se o urânio por elevação de pH da solução. A coloração do precipitado vai de amarelo ao alaranjado e sua composição estequiométrica é mal definida.

Uma outra técnica usa a hidrólise de uréia para a precipitação de DUA, sendo a amônia fornecida pela reação:



A tecnologia de precipitação do DUA, embora praticada há muitos anos, é ainda um assunto controvertido, pois a maneira de obtê-lo varia de uma instalação para outra. Utiliza-se o processo contínuo ou descontínuo para a sua obtenção, com um ou dois reatores em série. Atualmente, na Refinaria de Malvesi, França, a precipitação é feita com NH_3 gaso

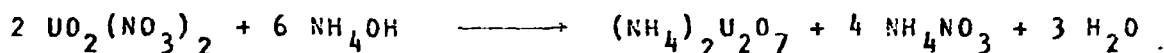
so em um único estágio contínuo. Na linha adotada pelo C.F.Q. para produção de DUA utiliza-se NH_3 gasoso não diluído como agente precipitante, em processo contínuo com um só estágio de precipitação.

Mecanismos da reação de nitrato de urânio com hidróxido de amônio

Vários mecanismos tentam explicar a formação de DUA a partir das soluções aquosas de nitrato de urânio.

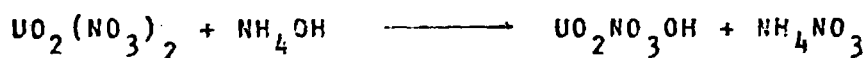
Vuillemeij²⁴ apresenta a seguinte reação esquemática para explicar as fases de precipitação:

Reação Global:



Etapas de reação:

a) Formação de um nitrato de urânio básico:



b) Precipitação de hidróxido de urânio



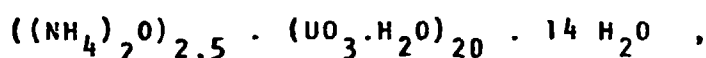
c) Formação de DUA



Segundo Deptula¹¹, estudos potenciométricos e analíticos mostraram que a polimerização de UO_2^{++} para

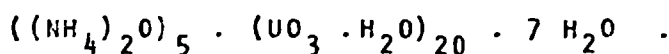
$UO_2((OH)_2UO_2)_4^{++}$ é o primeiro estágio da reação entre nitrato de urânio e amônia. O íon $UO_2((OH)_2UO_2)_4^{++}$ reage com NH_4^+ para formar uranato de amônio. Assim, o desenvolvimento da reação depende do modo pelo qual amônia é adicionada. Se a amônia é adicionada vagarosamente forma-se precipitado filtrável com a composição hipotética $((NH_4)_2O)_5 \cdot (UO_3 \cdot H_2O)_{20} \cdot 13 H_2O$.

Uma adição rápida de amônia conduz à formação de precipitado filtrável com a composição:

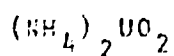
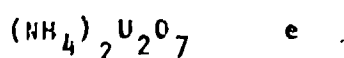
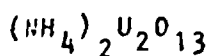
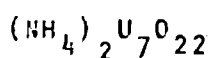
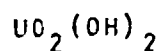
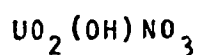


que facilmente hidroliza.

Na adição rápida com excesso de amônia forma-se o composto:

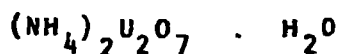
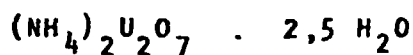


Ipolitova e colaboradores¹⁸ estudaram a reação entre o nitrato de urânio e o hidróxido de amônio usando os métodos potenciométrico e condutométrico. Verificaram vários produtos que se apresentam com as seguintes composições:



A predominância de uma das formas depende do pH final da reação.

Constataram ainda a presença de dois hidratos:



Bril⁶ fez um resumo das propriedades do DUA precipitado com amônia. Concluiu-se pela formação de um precipitado de coloração amarelo-alaranjado de composição química mal definida e a relação NH_3/U no DUA variando de 0,3:1 até 0,5:1, conforme o pH do líquido sobrenadante no fim da precipitação. A reação entre íon urânio e hidróxido de amônio pode precipitar um sal hidratado, difícil de filtrar, apresentando-se sob a forma de massa pastosa. Para conseguir um DUA de modo a sobrepujar esta dificuldade torna-se necessário definir as condições de precipitação que assegurem uma característica de filtrabilidade satisfatória. A condição para se obter um DUA de boa filtrabilidade depende dos parâmetros envolvidos durante a precipitação, tanto para a precipitação descontínua como contínua (concentração do urânio, concentração dos reagentes, temperatura de precipitação, pH de precipitação e velocidade de adição dos reagentes).

Precipitação descontínua de DUA

Efetua-se a precipitação descontínua de DUA em equipamentos convencionais, onde são admitidos as duas soluções, nitrato de urânio e de hidróxido de amônio, ou a solução de nitrato de urânio e o gás NH_3 , com temperatura controlada, até a formação de diuranato de amônio.

a) Precipitação com hidróxido de amônio

Da literatura consultada verifica-se que utilizando este tipo de agente precipitante, deve-se levar em consideração os fatores relatados a seguir e que são antagônicos entre si sob alguns aspectos.

Gentil e Lister^{14,20} utilizaram como agente precipitante hidróxido de amônio 2,6 N para o nitrato de urânio de 100 g de U/L, resultando como produto final um DUA que após as operações subseqüentes resultou num produto sinterizado (UO_2) de densidade final elevada. Esses autores deram preferência à adição de hidróxido sobre o nitrato de urânio porque, caso contrário, obtinha-se um precipitado de difícil secagem e um DUA muito duro.

Watson, Runnals e Bourns^{25,23,5} adicionaram hidróxido de amônio concentrado (13 M) sobre uma solução de nitrato de urânio de 300 g de U/L e obtiveram uma densidade elevada no produto final (UO_2), porém o DUA formado apresentou uma filtrabilidade menos favorável do que aquele obtido com uma solução diluída de urânio.

Watson e Bourns^{25,5} observaram, de uma maneira geral, que para concentrações de 200 a 300 g de U/L e precipitando-se o urânio por processo descontínuo, a densidade final de UO_2 aumenta com o aumento de concentração de hidróxido de amônio. Estes mesmos autores concluíram que o aumento na temperatura de precipitação, de 20 a 60°C, provoca igualmente uma elevação na densidade de produto final (UO_2). Não puderam, entretanto, confirmar satisfatoriamente este fato em virtude da baixa reprodutividade apresentada nos experimentos,

mas ficou patente a melhor filtrabilidade para o precipitado obtido em temperaturas próximas a 60°C .

Bourns⁵ precipitou o DUA adicionando rapidamente hidróxido de amônio concentrado (13 M) sobre a solução de nitrato de urânio, obtendo-se partículas finas e um UO_2 com densidade mais elevada após a sinterização.

Ainscough e Olfield¹ informaram que pouca ou nenhuma relação foi encontrada entre as condições de precipitação do DUA e as densidades dos compactados. São de opinião que variações introduzidas durante a moagem ou prensagem do compactado apresentam maior influência do que qualquer efeito causado por diferenças entre o tamanho de pós obtidos variando-se as condições operacionais de precipitação.

b) Precipitação com amônia (NH_3)

Usando-se o gás NH_3 como agente precipitante, consideram-se os mesmos fatores descritos no item anterior observando-se apenas as divergências verificadas com relação à aplicação dos precipitantes.

- Os resultados obtidos pela precipitação com NH_3 são mais reprodutíveis do que os obtidos com NH_4OH ⁶, provavelmente porque as características do DUA precipitado com o gás pouco dependem das condições de precipitação.

- Solução de nitrato de urânio com até 100 g de U/L tratada com amônia gasosa produz um DUA que após transformação resulta num UO_2 sinterizado de densidade elevada^{25, 5}.

- A filtrabilidade do diuranato de amônio independe da concentração das soluções de nitrato de urânio¹⁹.

- Verificou-se que a densidade de UO_2 obtido de um diuranato de amônio preparado a partir de nitrato de urânio tratado com NH_3 independe da temperatura de precipitação⁶.

- Observou-se que, à medida que a temperatura de precipitação era elevada, o DUA formado apresentava uma granulação maior^{25,5}.

- As poucas observações encontradas na literatura corrente não permitem que se chegue a uma conclusão sobre a existência de maiores vantagens do uso de NH_3 como precipitante na obtenção do diuranato de amônio a partir de soluções de nitrato de urânio.

Precipitação contínua do DUA

a) Precipitação com hidróxido de amônio

O interesse em efetuar-se a operação de precipitação do diuranato de amônio de modo contínuo reside no fato de se ter uma economia de processo mais favorável do que a quela obtida na precipitação descontínua. Operando-se continuamente haverá maior segurança na realização de precipitação, utilizando-se menor volume útil do reator químico, com as vantagens inerentes ao menor custo do equipamento, aliados aos menores custos operacional e de manutenção.

Geralmente, a precipitação contínua do diurano de amônio é feita por intermédio do bombeamento ininterrupto das soluções de nitrato de urânio e hidróxido de amônio diretamente dentro do tanque de precipitação, com agitação vigorosa para manter em suspensão o precipitado em formação.

O pH da suspensão é medido continuamente e mantido no valor desejado, por meio do ajuste da vazão de alimentação da solução de NH_4OH . Recolhe-se o material transbordante na bacia do filtro. Mantém-se constante^{9,26,25} a concentração do nitrato de urânio na solução de alimentação. Normalmente, a reação contínua de precipitação do DUA pode ser feita em um reator químico (1 estágio) ou em dois reatores em série (dois estágios). Na realidade, essa maneira de precipitação realizada em dois estágios corresponde à precipitação realizada em um estágio onde ocorrem os processos de neutralização de acidez livre e precipitação de DUA na solução de nitrato de urânio. Em decorrência disso, atualmente, é mais comum o uso de precipitação de DUA em um estágio, pois há economia de custo fixo, de manutenção e de operação.

As investigações realizadas por alguns pesquisadores com relação à precipitação contínua do DUA, considerando-se os mesmos parâmetros da precipitação descontínua, mostraram que o único fator que influiu apreciavelmente sobre as características de filtrabilidade e sobre a densidade final de UO_2 correspondente, era o pH final de precipitação. No entanto, as conclusões apresentadas em relação a esse parâmetro diferem de um trabalho para outro.

Yatabe e Watson²⁸ afirmaram que o pH final de precipitação com um valor considerado como ótimo está compor-

endido entre 7 e 8.

Vuilleme²⁴, em seus experimentos de precipitação contínua de DUA, com um ou dois estádios, manteve um pH final ao redor de 9.

Curtis⁹, usando NH_4OH diluído (2 M) no estudo relativo às condições de filtrabilidade do DUA, para o processamento do ^{233}U a partir de solução de nitrato de urânio até o UO_3 , manteve o pH de precipitação em 5,0; o precipitado era lavado no próprio filtro com uma solução de NH_4OH 0,2 M, de modo a garantir um pH maior do que 7 nas águas de lavagem.

Verifica-se, dos vários trabalhos consultados, que a influência do pH de precipitação do diuranato de amônio pelo processo contínuo sobre a densidade de dióxido de urânio (densidade teórica = $10,96 \text{ g/cm}^3$) é decisiva. Quando se faz a precipitação do DUA na faixa de pH 2,5 - 4,0, dele se produz um UO_2 com densidade final que diminui com aumento de pH. Com pH compreendido entre 4 e 5, a densidade do UO_2 passa por um mínimo de 9 g/cm^3 ; entre pH 5 e 6,5, verifica-se um aumento brusco na densidade que se mantém, entretanto, independente do pH, quando esse último ultrapassa 7⁶.

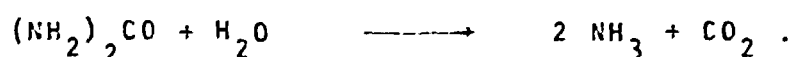
b) Precipitação com NH_3 gasoso

Não foram feitos maiores comentários sobre a precipitação contínua do DUA com NH_3 , porque na consulta à literatura, encontra-se apenas uma única citação do processo contínuo utilizando gás de amônia. Este é o processo utilizado em Malvesi, na França⁵, onde o nitrato de urânio com 100g

de U/litro, pré-aquecido a 60°C, é tratado com excesso de amoníaco gasoso (sem diluição com ar), num estágio apenas, em contínuo. A suspensão de DUA contendo 0,4 a 0,5 M de álcali livre alimenta diretamente filtros contínuos rotativos. O precipitado não é lavado.

c) Precipitação com uréia

Neste tipo de precipitação utiliza-se uréia como agente precipitante³. A uréia apresenta os requisitos necessários para este tipo de precipitação, a saber: precipitação lenta, fácil controle de pH e decomposição hidrolítica de maneira satisfatória em NH₃ e CO₂, conforme a reação¹⁵:



A uréia é o reagente ideal para processo hidrolítico sendo completamente solúvel em água, de fácil controle de taxa de hidrólise e de reação rápida entre 90-100°C. A hidrólise pode ser rapidamente interrompida no pH desejado, resfriando-se os reagentes à temperatura inferior à hidrólise (menor que 90°C). A amônia proveniente da hidrólise provoca um aumento lento de pH, acarretando uma precipitação progressiva do DUA. O precipitado é facilmente filtrável.

Esse tipo de precipitação é utilizado pela AB Atomenergi (Suécia), na linha de fabricação de óxido de urânio (UO₃) e urânio metálico³.

Produção de DUA no CEQ

No CEQ, o DUA é obtido por processo descontínuo ou contínuo, a partir de soluções nuclearmente puras de nitrato de urânio, provenientes do processo de extração por solventes. O programa da operação caminha no sentido de se obter UO_3 com características adequadas para preparação de UF_4 no reator tipo leito móvel com capacidade nominal para 14 Kg de UF_4 /hora. Pode-se preparar DUA por processo descontínuo ou em batelada. Esse processo é adequado para preparar UO_3 para transformação em UO_2 cerâmico, sendo obtido já na forma de pó. Este, por outro lado, não pode ser usado na alimentação da unidade de UF_4 sem antes sofrer o processo de pelotização.

Maiores detalhes para operação da unidade de precipitação/filtração/secagem/calcinção contínuas de DUA serão discutidos no terceiro capítulo "Operação da unidade de produção de UO_3 ". Será discutido também a manutenção da mesma.

Considerações sobre a sinterização do UO_2 obtido a partir do DUA

De acordo com a literatura, existem observações que permitem estabelecer uma correlação entre a densidade final do dióxido de urânio sinterizado e suas outras propriedades ou mesmo sal de urânio original (DUA), a partir do qual, por redução, obtém-se o pó de UO_2 ⁶. Estas observações traduzem-se por uma série de informações que são fornecidas pelos trabalhos já publicados. Entre elas destacam-se:

- As propriedades finais de UO_2 , a saber: su perfície específica, tamanho médio de partícula e densidades solta e batida, dependem das condições de precipitação do material de partida (DUA)^{25,8,17,4,2}.

- A precipitação contínua do DUA com NH_4OH pro duz um dióxido de urânio que pode ser sinterizado, alcançando uma densidade superior a 10 g/cm^3 .

- A sinterização de UO_2 pode ser prevista pe los valores da superfície específica dos pós²¹.

- DUA com densidade batida inferior a $1,4 \text{ g/cm}^3$ tem grande possibilidade de fornecer UO_2 sinterizado de den sidade maior do que 10 g/cm^3 ^{6,5}.

- Na precipitação contínua do DUA com NH_4OH o pH é o principal fator e este influi, de forma apréciável, so bre as características de filtração do DUA formado e sobre a densidade final do UO_2 sinterizado³. O pH é medido na saí da do reator de precipitação.

- Pó de UO_2 com diâmetro de partícula de 1 mícron ou menos pode ser sinterizado rapidamente obtendo - se óxidos de densidades superiores a 95% do valor teórico ($10,96 \text{ g/cm}^3$)⁷.

- A preparação do diuranato de amônio por pro cessos contínuos usando NH_4OH oferece alguma vantagem para produção econômica de elementos combustíveis (UO_2) e a pre n sagem do UO_2 pode ser feita a frio, sem aglomerantes orgânicos²³.

2. TRIOXIDO DE URÂNIO

PREPARAÇÃO DE UO_3

Desnitração de nitrato de urânio

O processo de desnitração realizado em temperatura controlada, envolve duas etapas: a) concentração da solução de nitrato de urânio por evaporação até a composição aproximada do nitrato de urânio hexahidratado; b) desidratação e desnitração do hexahidrato a quente, dando UO_3 . O mecanismo da desnitração ocorre em dois estádios, segundo as equações:



Dependendo das condições de desnitração, que pode ser feita à pressão atmosférica ou em vácuo, o UO_3 anidro pode se apresentar sob 4 tipos diferentes²¹.

a) Amorfo: é obtido sob condições nas quais os gases de decomposição são rapidamente renovados do sistema.

b) Tipo III: é o tipo mais comum e é produzido pela reação do produto de decomposição (UO_3) com a água, formando hidratos cristalinos ($UO_3 \cdot nH_2O$) que são posteriormente decompostos formando UO_3 .

c) Tipo I e II: são obtidos por desnitração rápida em presença de álcool etílico ou ácido acético.

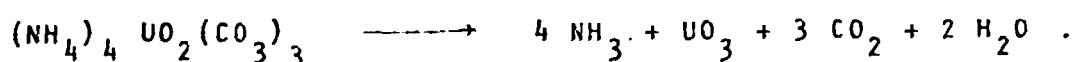
Decomposição térmica de ácido peroxiurânico

O processo de decomposição de $UO_4 \cdot 2 H_2O$ (ácido peroxiurânico) por calcinação ao ar a $400-500^{\circ}C$ baseia-se na perda simultânea de oxigênio e água, de acordo com a reação:



Decomposição térmica do tricarbonato de amônio e uranilo

Este sal tem menor conteúdo de urânio que o diuranato, mas tem um teor maior de amônio, o que pode ser utilizado com vantagem na sua auto-redução. Decompõe-se facilmente por aquecimento, segundo a reação:



Decomposição térmica de diuranato de amônio

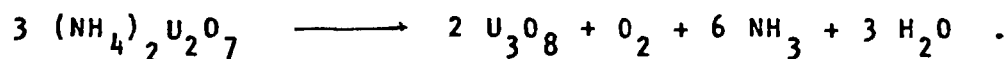
O DUA, quando aquecido, decompõe-se em óxidos de urânio, cuja composição depende da atmosfera e da temperatura de decomposição. A $300^{\circ}C$, em presença de ar, ele se decompõe dando UO_3 , de acordo com a reação:



Mas, acima de $450^{\circ}C$, o UO_3 transforma em U_3O_8 , de acordo com a reação:



Portanto, em temperaturas acima de 450°C a decomposição do DUA dá-se da seguinte maneira:



As informações apontadas serviram como ponto de partida para a operação da unidade de precipitação, filtração, secagem e calcinação contínua de DUA. Usou-se NH_3 para precipitar o diuranato a partir de uma solução de nitrato de urânio nuclearmente puro obtida na instalação de purificação por extração por solvente com TBP-varsol em colunas pulsadas.

CAPÍTULO III

OPERAÇÃO DA UNIDADE DE UO_3 - PRODUÇÃO DE UO_3

1. EQUIPAMENTOS

Para melhor visualização, neste trabalho, a Unidade de Produção de UO_3 foi dividida em três partes: precipitação de DUA com NH_3 , filtração de DUA/formação de torta e secagem/calцинаção de DUA a UO_3 .

Precipitação de DUA com NH_3

A figura 2 apresenta, esquematicamente, os equipamentos para a precipitação contínua do diuranato de amônio na unidade de demonstração do IPEN.

Assim tem-se:

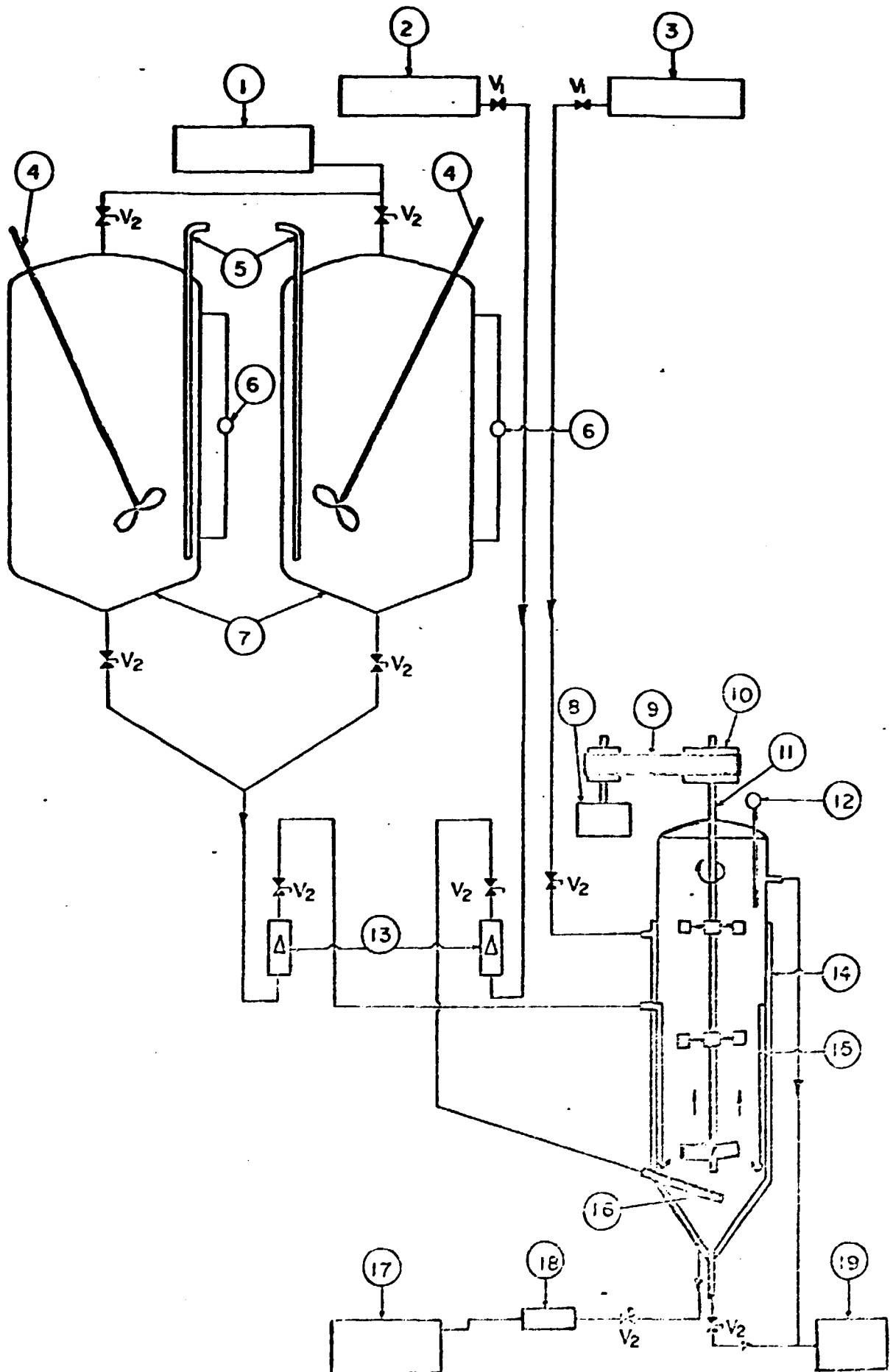


Figura 2: Esquema para precipitação contínua de Oxalato de Cério

Figura 2: Discriminação

- 1: Entrada de Nitroto de uronilo**
- 2: Entrada de Amônia**
- 3: Entrada de vapor de água**
- 4: Agitador**
- 5: Tubo Mariotte**
- 6: Visor de nível**
- 7: Tonque de alimentação**
- 8: Motor**
- 9: Correia**
- 10: Polia de redução**
- 11: Agitador**
- 12: Termômetro**
- 13: Rotâmetro**
- 14: Camisa externa**
- 15: Camisa interna**
- 16: Dispositivo com orificio**
- 17: Condensado**
- 18: Purgador**
- 19: Saída de DUA para o filtro**
- V₁: Válvula esfera**
- V₂: Válvula agulha**

- Sistema de armazenamento da solução aquosa de nitrato de urânio

- Tanque de armazenamento

- . material armazenado: solução aquosa de nitrato de urânio com acidez livre: $\approx 0,04 M$ em HNO_3 e urânio = 80-120 g U/L.
- . material de construção do tanque: chapa aço inox AISI - 304 L - espessura 1/8 polegada.
- . Quantidade: 2 unidades.
- . Capacidade total: 2600 L.
- . Dimensões:
 - Diâmetro = 1,20 m
 - Altura = 1,00 m.
- . Acessórios:
 - Medidor de nível
 - Tubo Mariotte
 - Sistema de agitação
 - motor: 2 HP e 500 rpm
 - reductor: 1:3,55.
- . Interligação com:
 - Unidade de Purificação de U
 - material: tubo de aço inox AISI - 304 L - 1/2 polegada
 - válvula esfera, aço inox AISI - 304 L - 1/2 polegada.
 - Reator da precipitação
 - material: tubo de aço inox AISI-304 L - 1/2 polegada.
 - Medidor de vazão: rotâmetro
 - Válvula agulha 1/2 polegada - Aço Inox AISI - 304 L.

- Sistema de armazenamento de NH_3

- Conjunto de cilindros de armazenamento de NH_3 (Figura 3)
 - . Quantidades de cilindros: 6 unidades
 - . Capacidade total: 240 Kg de NH_3

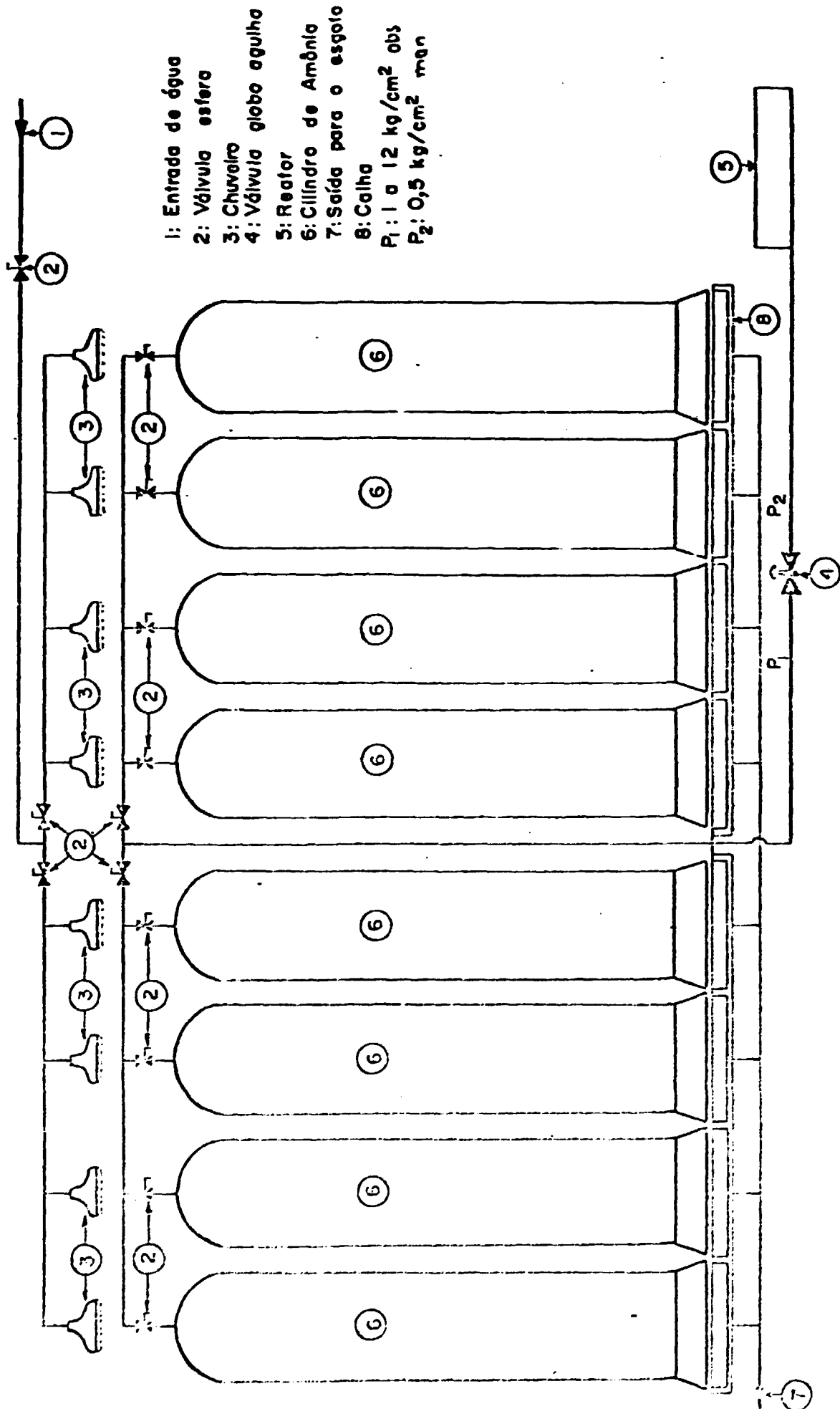


Figura 3: Esquema do posto de cilindros de NH_3 .

- Sistema de aquecimento (Figura 3): chuveiros com água a 20-25°C.

- Sistema - reator de precipitação
 - Vaso de reação
 - . Quantidade: 1 unidade
 - . Capacidade útil: 56 L
 - . Dimensões:
 - Diâmetro: 300 mm
 - Altura: 1000 mm
 - . Material de construção: aço inox 304 L - espessura 1/8 polegada
 - . Sistema de agitação:
 - Motor: 1/2 HP e 1675 rpm
 - Redutor: sistema polia - 1:4

- Sistema de alimentação de nitrato de urânio
 - Tubo de aço inox AISI 304 L - 1/2 polegada
 - Medidor de vazão: rotâmetro 0-6 L/min
 - Controle manual de vazão: válvula agulha 1/2 polegada - aço inox AISI 304 L

- Sistema de alimentação de NH₃ gasoso (Figura 3)
 - Tubo de aço inox AISI 304 L - 1/2 polegada
 - Válvula reguladora de pressão (Figura 3)
 - Medidor de vazão (rotâmetro) 0 - 120 L/min (Figura 2)
 - Controle de vazão - manual - válvula 1/2 polegada, tipo agulha (Figura 2)

- Sistema de aquecimento da solução no reator
 - Camisa: capacidade de 5 litros
 - Controle de vazão - manual - válvula de 1/2 polegada
 - Sistema de condensado com purgador de vapor

- Sistema de descarga de DUA
 - Tubo de aço inox AISI 304 L - 1 polegada.

Filtração do DUA

A figura 4 apresenta, esquematicamente, os equipamentos para a filtração de DUA na unidade de demonstração do IPEN.

Assim tem-se a relação de equipamentos:

- Filtro
 - Tipo: tambor rotativo, com vácuo e ar comprimido
 - Elemento filtrante: lona de nylon ou de algodão.

- Sistema de acionamento de tambor
 - Motor: 1 HP - 1125 rpm
 - Redutor: varinot

- Sistema de agitação de suspensão da bacia do filtro
 - Motor: 1 HP - 1725 rpm
 - Redutor: varinot

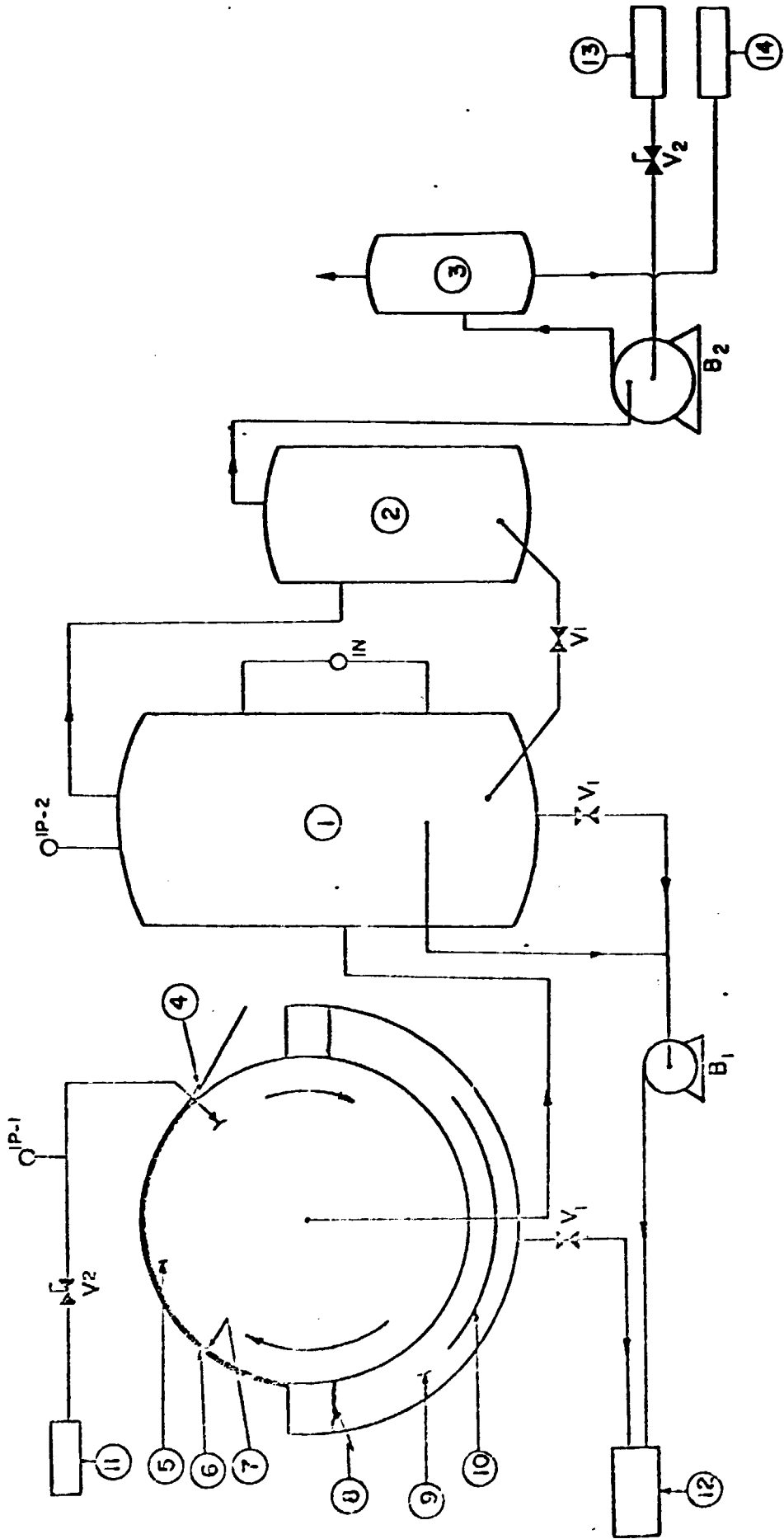


Figura 4: Esquema para filtração de DUA.

Figura 4: Discriminação

- 1: Retentor de filtrado**
- 2: Desumidificador**
- 3: Silenciador**
- 4: Destocador**
- 5: Tambor**
- 6: Torto de DUA**
- 7: Elemento filtrante**
- 8: Nível de DUA**
- 9: Suspensão de DUA**
- 10: Agitador**
- 11: Entrada de ar**
- 12: Tanque de sedimentação**
- 13: Reservatório de água**
- 14: Saída para o esgoto**
- V₁: Válvula esfera**
- V₂: Válvula agulha**
- B₁: Bomba do filtrado**
- B₂: Bomba de vácuo**
- IP-1: Manômetro**
- IP-2: Vacuômetro**
- IN-1: Visor de nível**

- Sistema de filtrado

- Vaso de separação filtrado/vapor d'água
 - . Capacidade: 35 litros
 - . Visor de nível
- Bomba de recalque de filtrado
 - . Motor: 3/4 HP
 - . Vazão: 2 L/min
- Desumificador
 - . Capacidade: 30 litros
- Sistema de decantação
 - . 4 tanques de capacidade de 20 litros cada, dispostos em série
- Painel de controle
 - . Indicador e variador de rotação de tambor de filtro.
 - . Indicador e variador de rotação de agitador de suspensão de DUA na bacia do filtro.
 - . Indicador de corrente que passa pela bobina do motor da bomba de vácuo.
 - . Botão liga/desliga do motor de acionamento do tambor de filtro.
 - . Botão liga/desliga do motor de acionamento do agitador da suspensão de DUA na bacia do filtro.
 - . Botão liga/desliga do motor de bomba de vácuo.
 - . Botão liga/desliga da bomba de recalque do filtrado.
- Bomba de vácuo: tipo anel líquido
 - . Motor: 5 HP
 - . Vácuo: 22 polegadas de coluna de mercúrio
 - . Interligação com sistema de água industrial para formar anel líquido e refrigerar o sistema.

- Sistema de ar/destacador de torta do elemento filtrante
 - . Filtro de ar
 - . Medidor de pressão do ar..

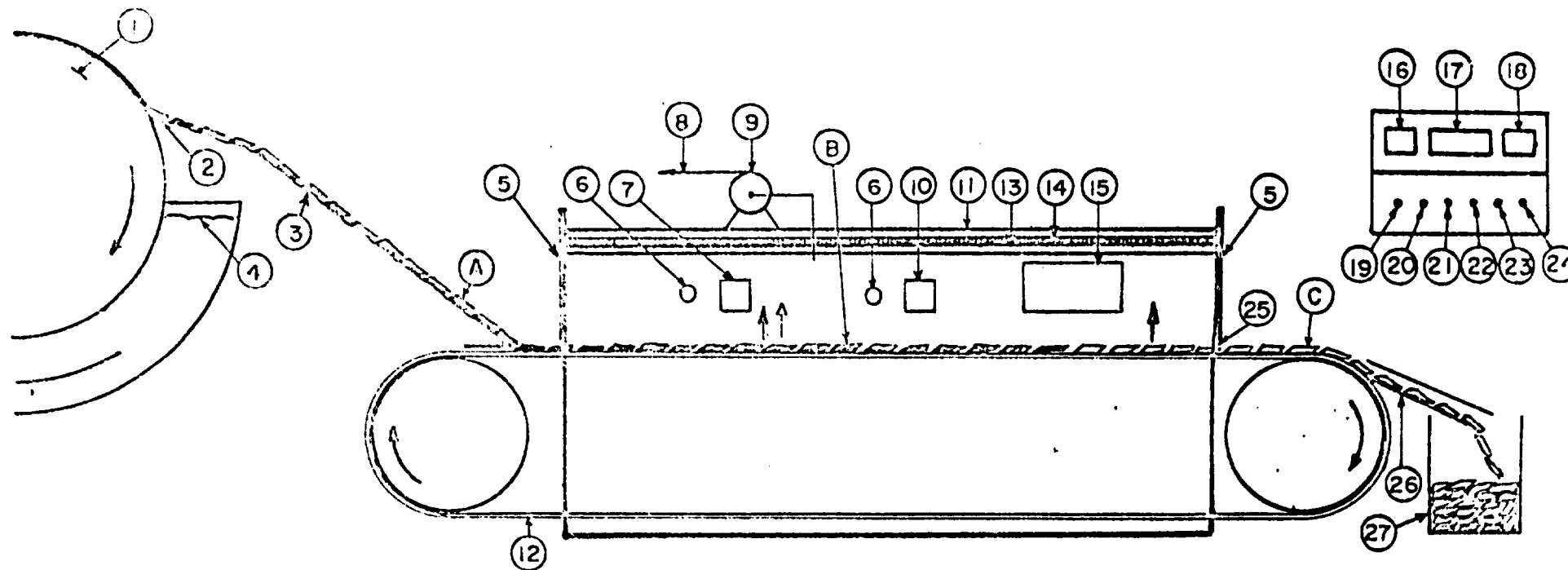
Secagem/decomposição térmica de DUA

A figura 5 apresenta, esquematicamente, os equipamentos para a secagem e decomposição térmica de DUA na unidade de demonstração do IPEN.

Assim tem-se a relação de equipamentos:

- Forno
 - Tipo túnel com cinta transportadora
 - comprimento: 6,17 metros
- Cinta transportadora
 - Motor: 1 HP
 - Redutor: regulável
- Exaustor do gás de reação do DUA no forno
 - Motor: 2 HP
 - Capacidade: 2 m³/h.
- Sistema de secagem por aquecimento elétrico
 - Sistema 1: controla a temperatura da 1ª zona de secagem
 - Sistema 2: controla a temperatura da 2ª zona de secagem
 - Sistema 3: controla a temperatura do forno na zona de decomposição térmica da torta de DUA a UO₃. O controle é

Figura 5: Desenho esquemático do forno com cinta móvel.



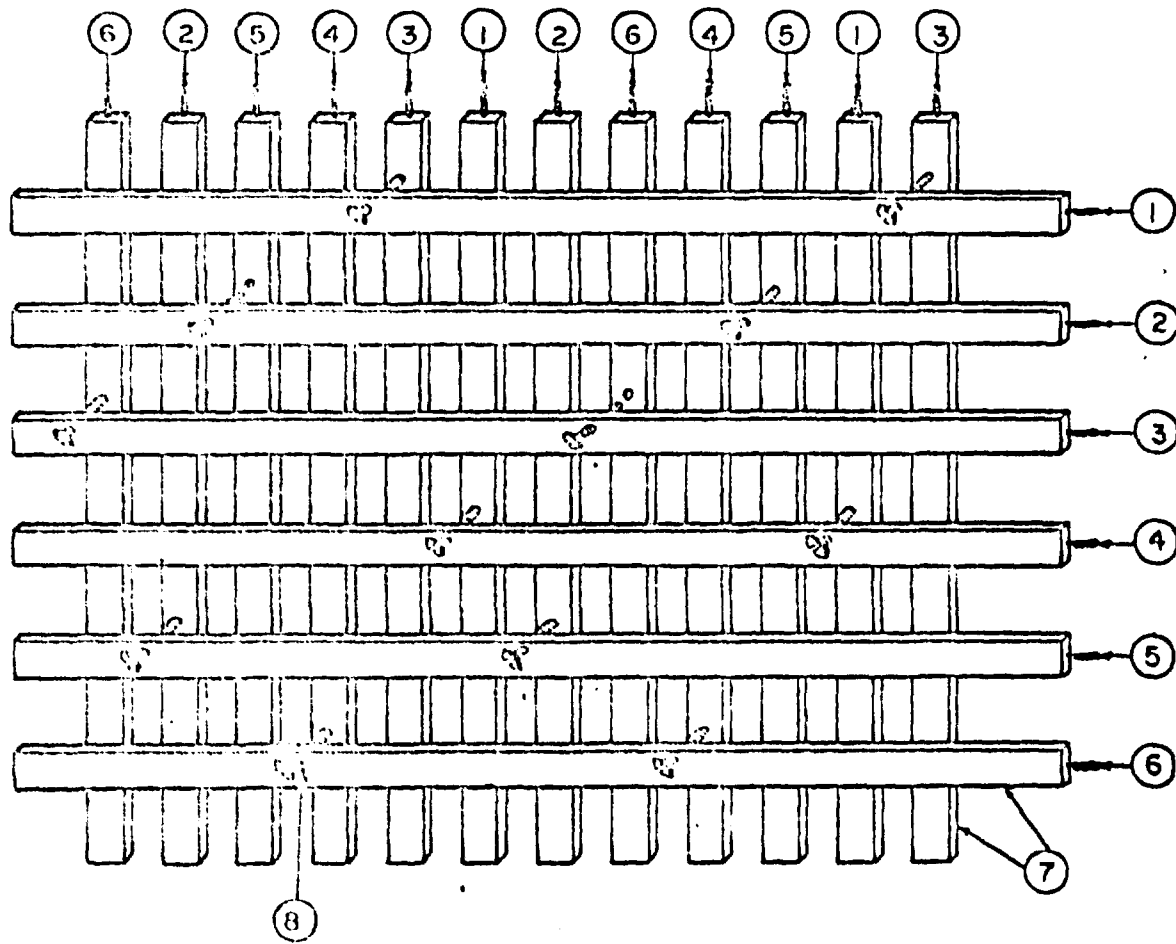
A: DUA úmido
 B: DUA seco
 C: UO_3 seco
 1: Tambor do filtro

2: Destacador
 3: Plano inclinado
 4: Nivel da DUA
 5: Chapa móvel
 6: indicador de temperatura
 7: Regulador local de temperatura na primeira zona de secagem
 8: Saída de gases

9: Exaustor
 10: Regulador local de temperatura na segunda zona de secagem
 11: Gabinete do forno
 12: Cinta móvel
 13: Resistência
 14: Refratário
 15: Controle de resistências
 16: Amperímetro
 17: Regulador de temperatura final
 18: Voltímetro
 19: Lig./Des. de força

20: Lig./Des. de acionamento da cinta
 21: Lig./Des. do exaustor
 22: Lig./Des. da resistência da zona de decomposição térmica
 23: Lig./Des. da corrente para a resistência da segunda zona de secagem
 24: Lig./Des. da corrente para a resistência da primeira zona de secagem
 25: Entrada de ar
 26: Descarregadora com penela
 27: Tambor
 $\uparrow = NH_3$ $\uparrow = Vapor$

Figura 6: Esquema do controle manual da faixa de temperatura do forno, na zona de decomposição térmica.



- 1: Sistema de resistência 1
- 2: Sistema de resistência 2
- 3: Sistema de resistência 3
- 4: Sistema de resistência 4
- 5: Sistema de resistência 5
- 6: Sistema de resistência 6
- 7: Barras de cobre
- 8: Parafuso de contato

feito na caixa com sistema de resistências que podem ser interligadas ou desligadas. É possível manter o forno dentro de uma faixa de temperaturas, o que não seria possível, se a ligação da resistência fosse única.

Assim tem-se na figura 6 a apresentação esquemática do sistema de controle de temperatura do forno na zona de calcinação.

- Painel de controle automático

- Chave liga/desliga da força elétrica.
- Chave liga/desliga da resistência elétrica da 1ª zona de secagem.
- Chave liga/desliga da resistência elétrica da 2ª zona de secagem.
- Chave liga/desliga da resistência elétrica da zona de decomposição térmica de DUA a UO_3 .
- Indicador/controlador da temperatura de zona de decomposição térmica de DUA a UO_3 .
- Indicador de voltagem e amperagem.

- Porta de entrada/saída do forno

- Descarga da torta do forno

- Plano inclinado com peneira com malha de 2 mm.
- Vibrador

- Tambor de armazenamento

Uma vez apresentada a relação de equipamentos e esquema de precipitação, filtração, secagem e calcinação de DUA, temos as fotografias dos equipamentos que constituem a unidade (Fig.

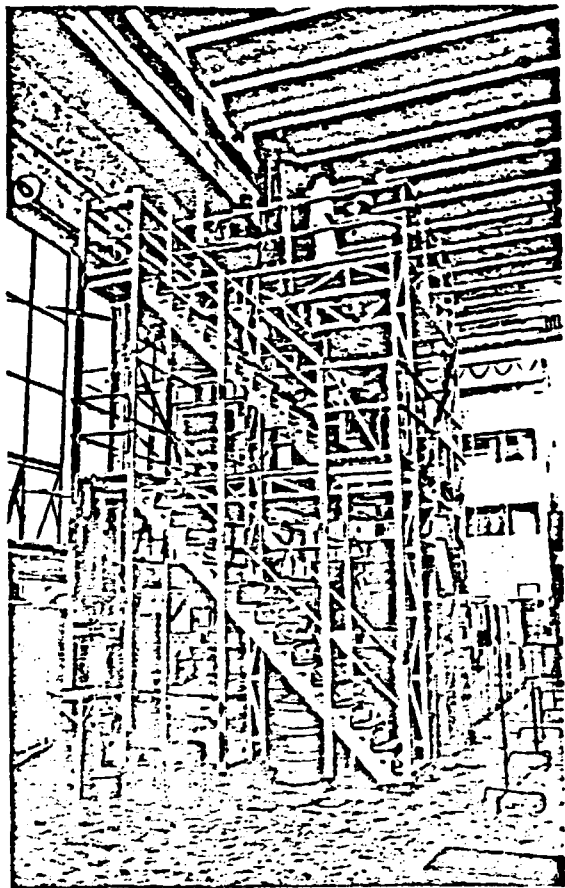


Figura 7: Vista geral da unidade de produção de UO_3 .

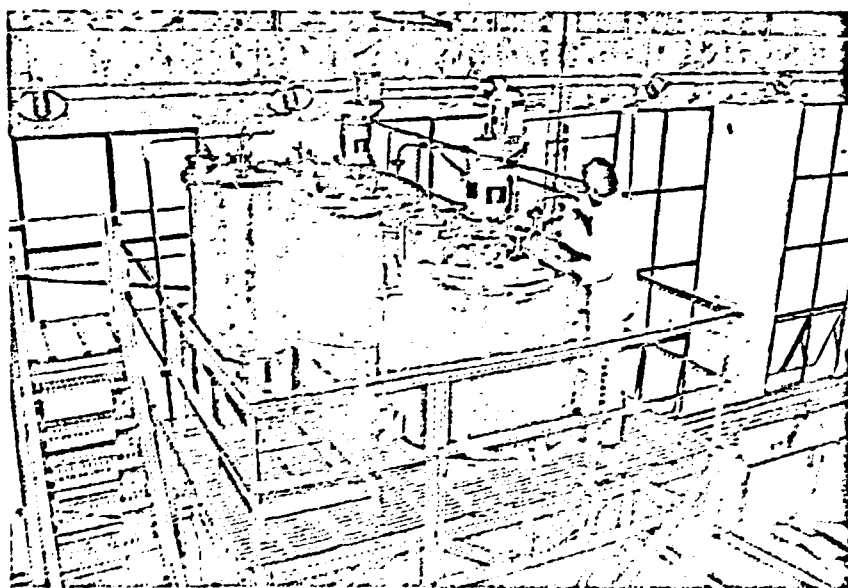


Figura 8: Tanques de alimentação com nitrato de urânio.

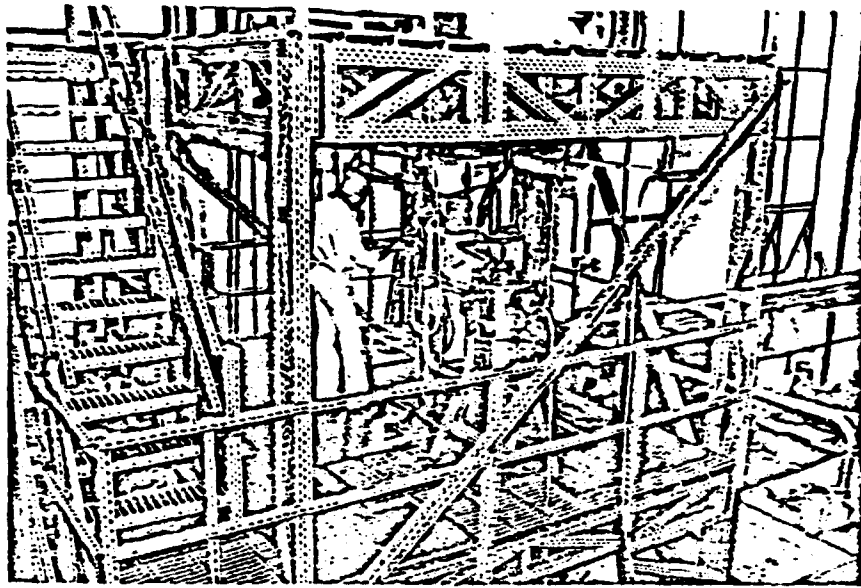


Figura 9: Reator de precipitação de DUA.

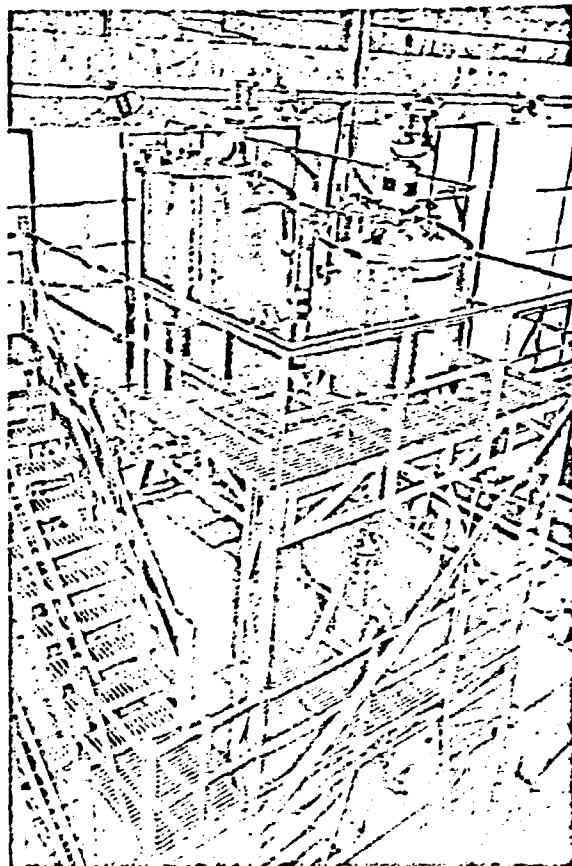


Figura 10: Tanques de alimentação de nitrato de urânio e reator de precipitação de DUA com amônia.

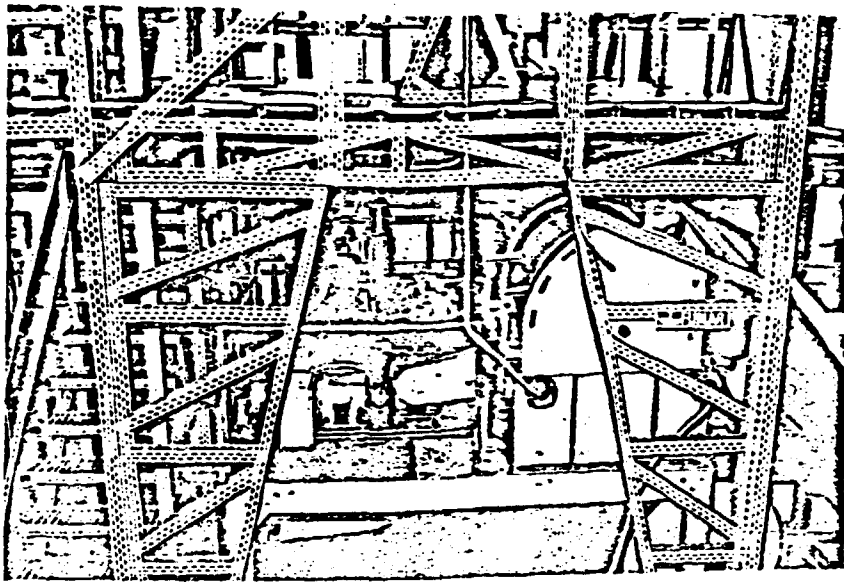


Figura 11: Filtro rotativo, motor de acionamento do agitador de suspensão na bacia e bomba de vácuo com silenciador.

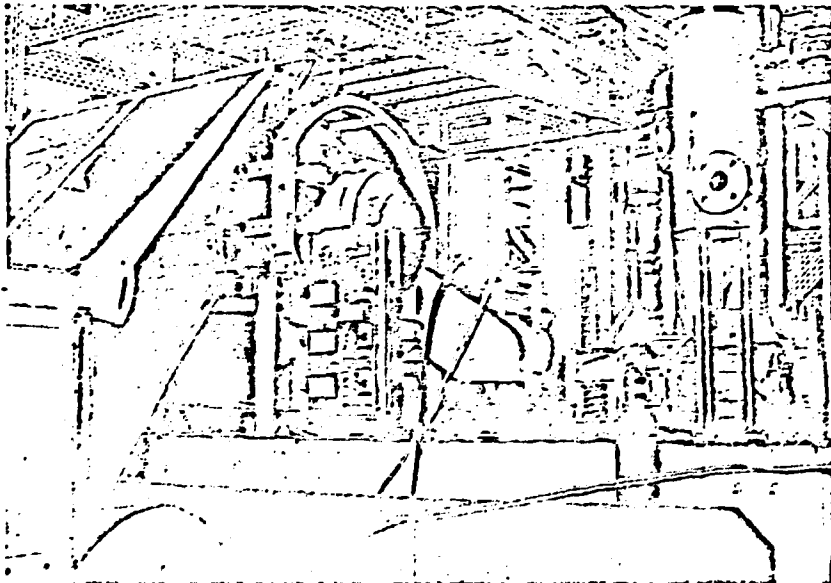


Figura 12: Filtro rotativo com plano inclinado, motor de acionamento de tambor, painel de controle, bomba de transferência do filtrado e vaso separador do água de arraste.

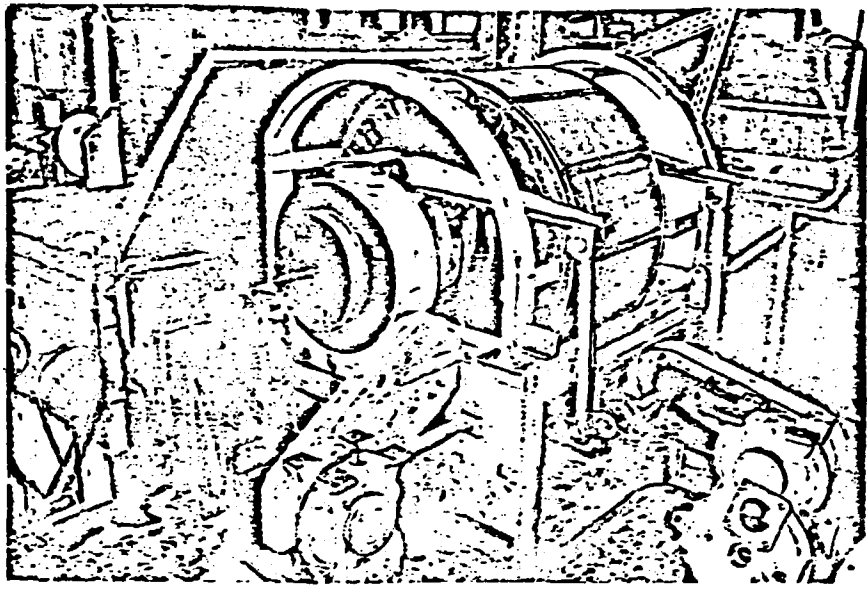


Figura 13: Filtro rotativo com válvula (parte móvel) e parte fixa (no chão), forno com exaustor.

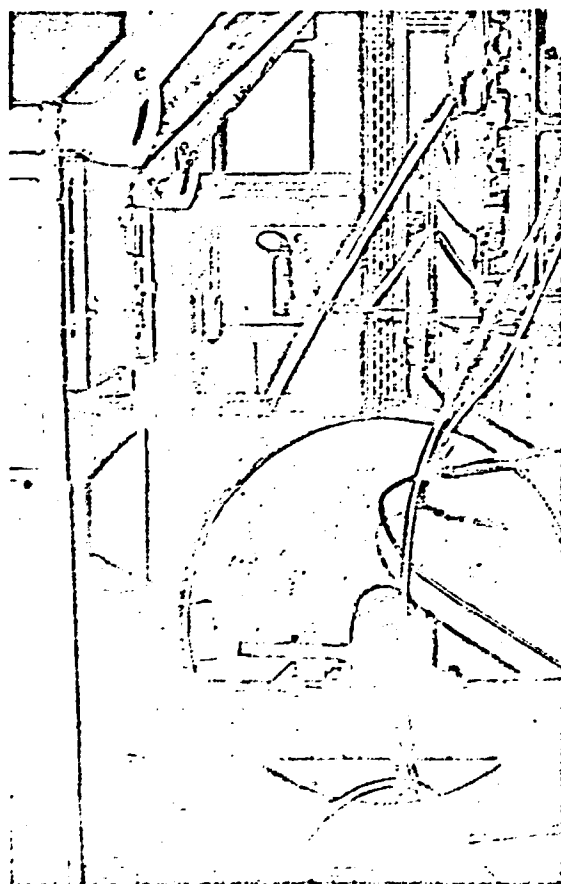
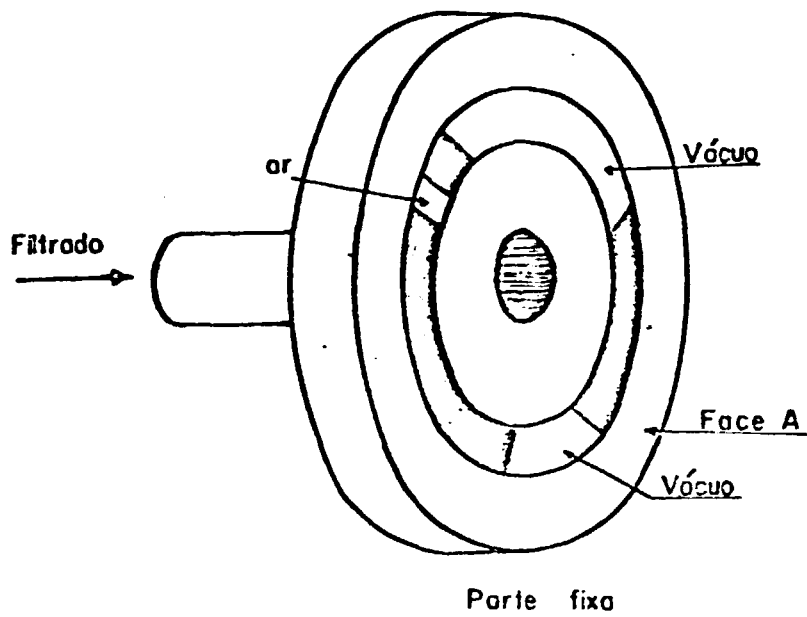


Figura 14: Cinto rolante e porta de entrada do forno, plano inclinado e painel de controle de filtro.



Faces A e B se sobrepõem.

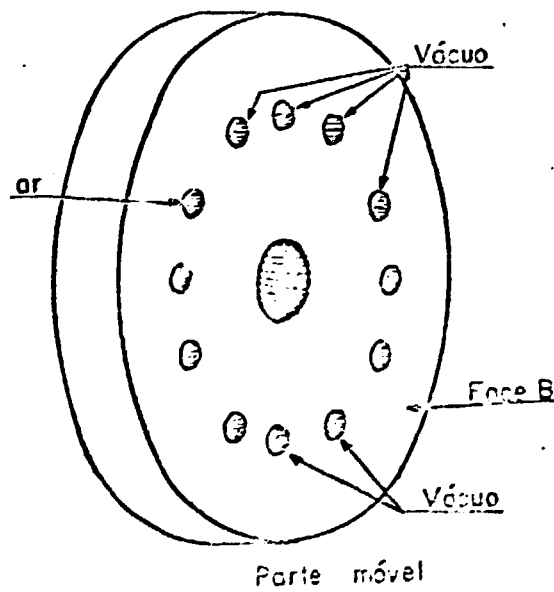
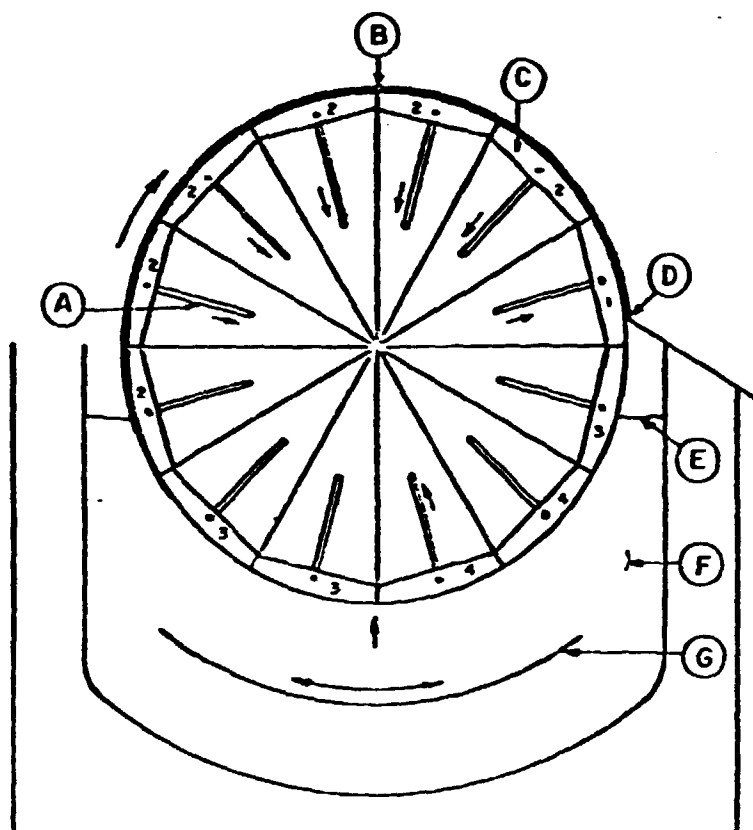
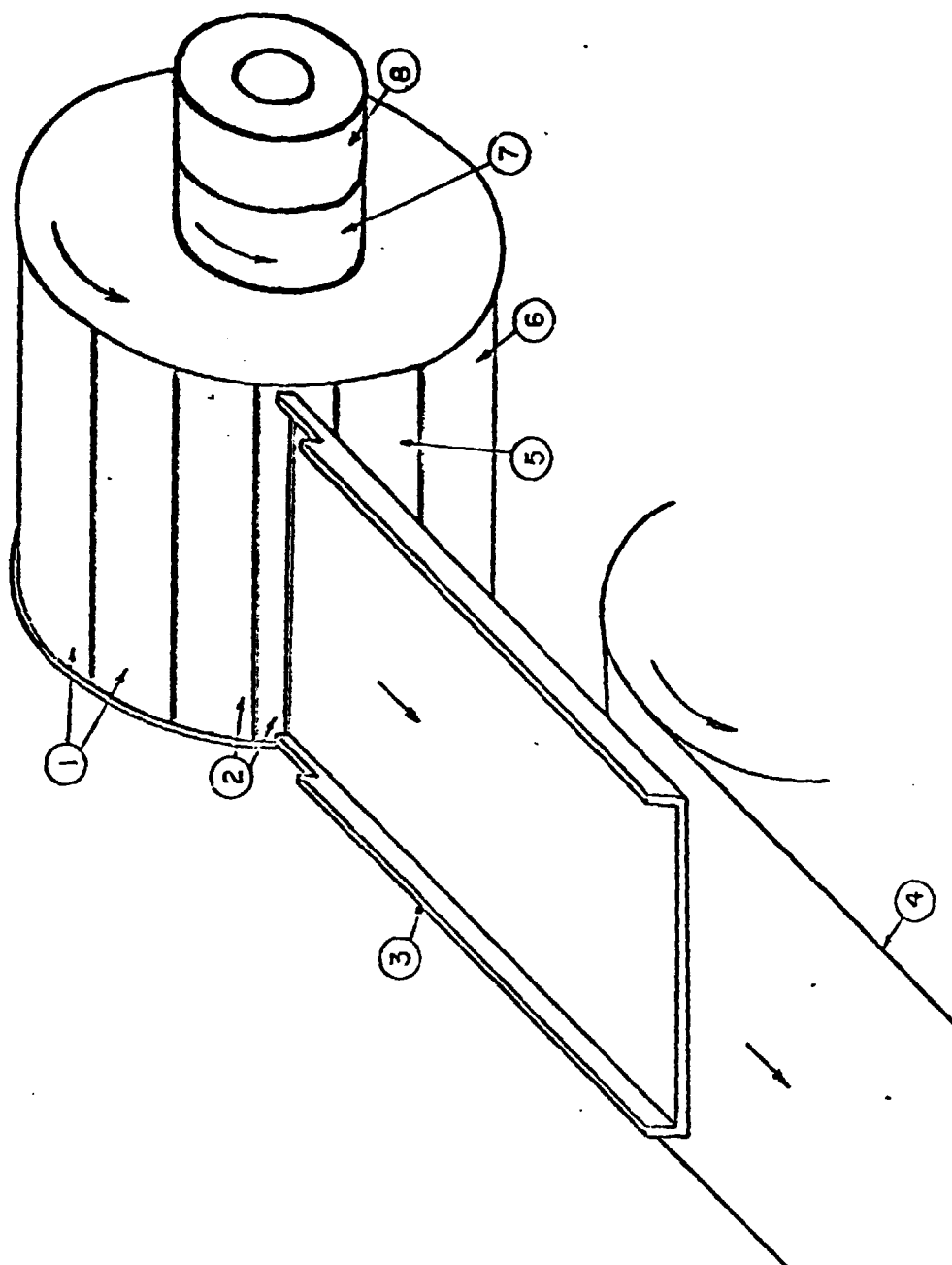


Figura 15: Diagrama da válvula.



- A: Tubo de ligação, gomo e sistema de vácuo
- B: Torta de DUA
- C: Caixa para vácuo ou ar comprimido
- D: Lâmina de teflon destacadora da torta do elemento filtrante
- E: Nível da suspensão de DUA
- F: Suspensão de DUA
- G: Agitador da suspensão de DUA na bacia do filtro
- 1: Gomo de destacamento de torta
- 2: Gomo de enxugamento de torta
- 3: Gomo neutro
- 4: Gomo de formação de torta

Figura 16: Esquema do filtro com agitador da suspensão, bacia e gomos formadores, enxugadores e destacadore de torta.



- 1: Gomo para enxugamento da torta (ligado ao vácuo)
- 2: Gomo para deslaminamento da torta (ligado ao ar comprimido)
- 3: Plano inclinado - Descarga da torta do filtro para a cinta
- 4: Cinta
- 5: Gomo neutro - Sem ligação
- 6: Gomo para formação de torta (ligado ao vácuo)
- 7: Válvula parte móvel
- 8: Válvula parte fixa

Figura 17: Desenho esquemático do tambor do filtro com válvula, destacadador, plano inclinado e cinta.

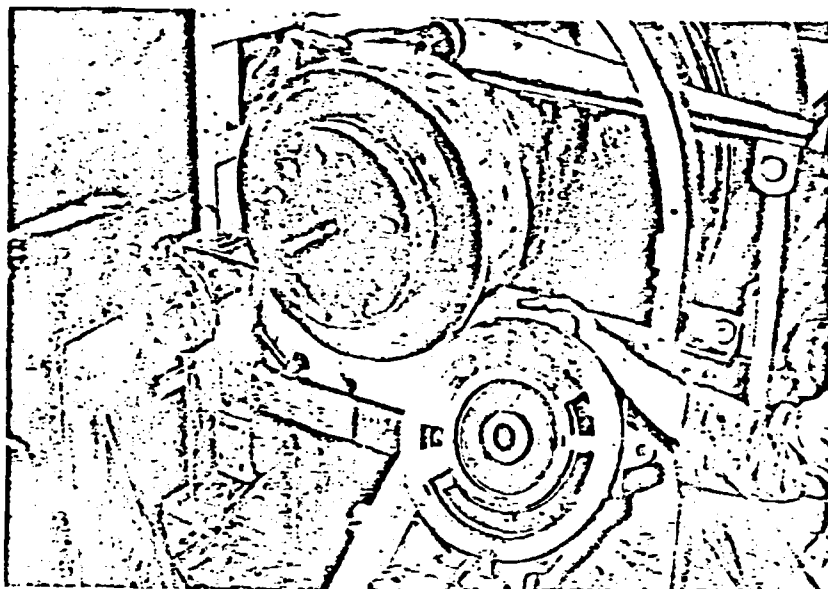


Figura 18: Válvula de controle de vácuo e ar comprimido. Parte fixa e parte móvel (desmontada).

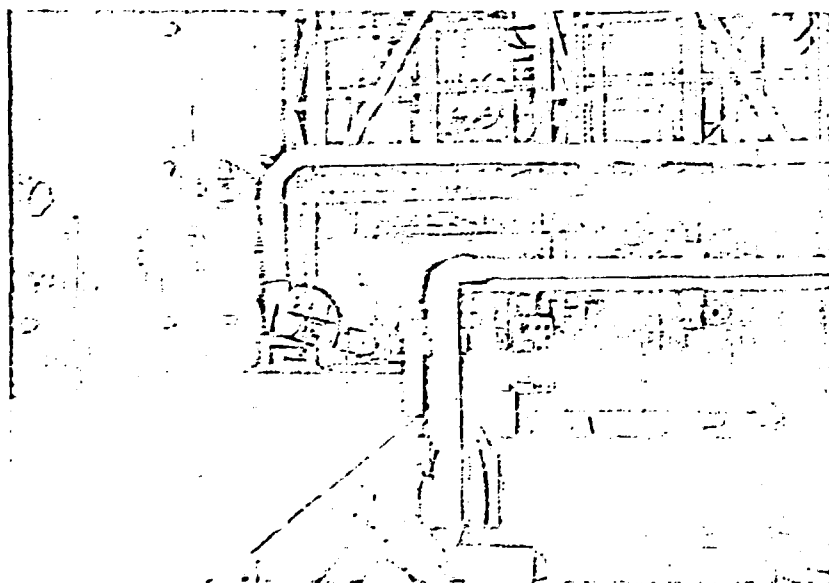


Figura 19: Forno e sistema de exaustão e cabo de carga de eletricidade.

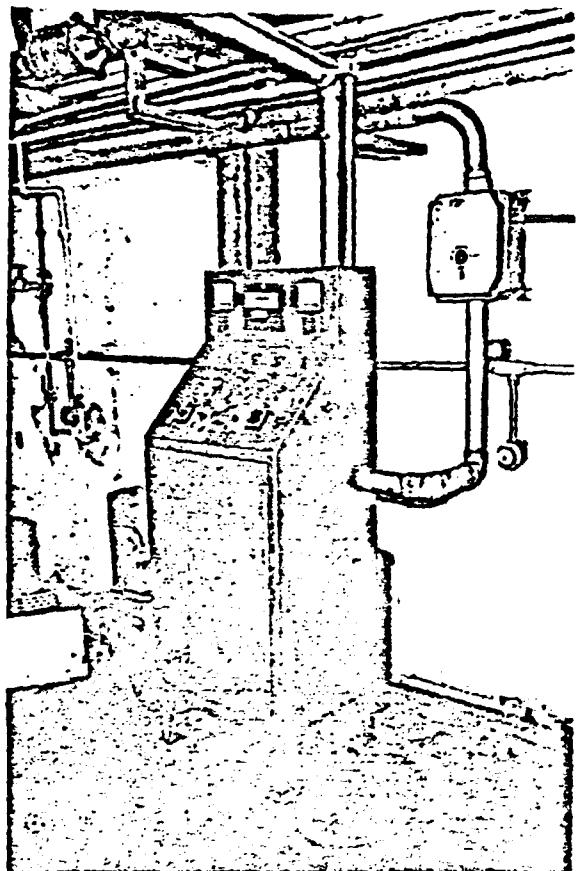


Figura 20: Painel de controle do forno e linha de suprimento de insumos.

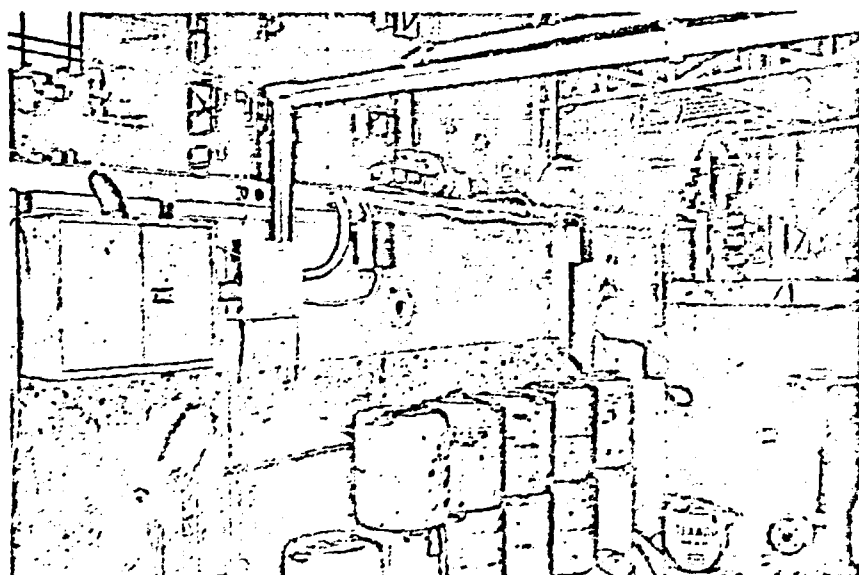
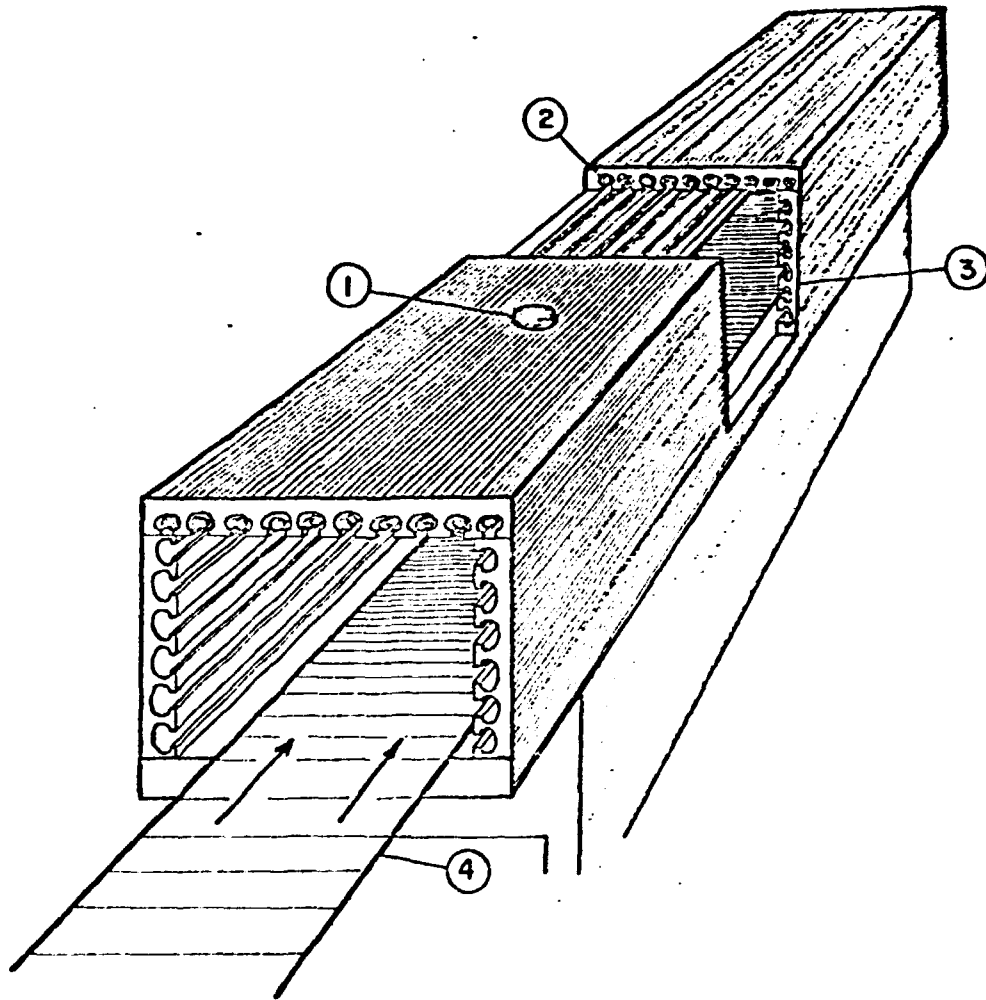


Figura 21: Forno com sistema de exaustão, dispositivos de controle local de temperaturas na zona de secagem / de torta e caixa de controle de ligação a resistências. Tambor de armazenamento.



- 1: Sistema de firogem forçada
- 2: Sistema de resistência
- 3: Corte transversal do forno
- 4: Cinto

Figura 22: Esquema do forno com cinto.

PRODUÇÃO DE UO_3 A PARTIR DA SOLUÇÃO DE NITRATO DE URANILO 100 gU/L E NH_3 GASOSO

A solução de nitrato de urânio é transferida a unidade de purificação de urânio com solventes para a unidade de produção de DUA por uma bomba centrífuga, até encher os tanques de armazenamento e alimentação (capacidade de 2600 litros) do setor de precipitação de DUA com NH_3 . A operação deve ser feita, de tal maneira, que encha, ao mesmo tempo, os 2 tanques para melhorar a homogeneização da solução.

Alimenta-se a solução no reator de precipitação, gravitacionalmente. A pressão na saída do tanque é praticamente uniforme e constante durante a operação da unidade, garantindo-se vazão uniforme e constante na alimentação da solução no reator de precipitação. O tubo Mariotte instalado no tanque (figura 2) é responsável pela manutenção da pressão atmosférica na altura da saída da solução do tanque. A vazão da solução é medida no rotâmetro (figura 9) e controlada manualmente por uma válvula globo agulha instalada à jusante do rotâmetro (ver figuras 2 e 9).

A solução de nitrato de urânio entra no reator, aquecida à temperatura de processo na camisa interna onde recebe calor pela parede comum à camisa externa, onde é alimentado a vapor de água a $120^{\circ}C$. A vazão de vapor é controlada manualmente por uma válvula. A passagem da camisa interna (projetada para um tempo de residência da solução de 5-8 minutos) para o reator é suficientemente pequena, para que a solução de nitrato de urânio alimentado abaixo do pã de agitador se dê na temperatura da suspensão.

NH_3 gasoso armazenado em dois conjuntos de 4 cilindros (massa total de 160 quilos quando totalmente carregados), num pátio, providos de um sistema de chuveiros para aquecimento dos mesmos quando há possibilidade de congelamento (expansão de NH_3 de 12 kg/cm^2 para $0,5 \text{ kg/cm}^2$). O objetivo é manter vazão constante na linha de alimentação. A válvula reguladora de pressão (ver figura 3) localizada a jusante no sistema de alimentação e armazenamento, mantém a pressão constante na linha. A vazão de NH_3 é medida no rotâmetro (figura 2) e controlada manualmente pela válvula agulha localizada a jusante, num valor pré-fixado e a alimentação do H_3 no reator se dá através de um dispositivo perfurado tendo em vista a dispersão de gás na suspensão de DUA. O ponto de alimentação está na parte inferior, sob o agitador (figura 2).

Os dois reagentes (solução de nitrato de urânio e NH_3) são agitados com finalidade de proporcionar contacto entre ambos formando-se sucessivamente os produtos intermediários (UO_2OHNO_3 , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 2 \text{UO}_2(\text{OH})_2$, $\text{UO}_2(\text{OH})_2$, $(\text{NH}_4)_2 \text{U}_2\text{O}_{22}$, $(\text{NH}_4)_2 \text{U}_4\text{O}_{13}$, $(\text{NH}_4)_2 \text{U}_2\text{O}_7$, $(\text{NH}_4)_2 \text{UO}_2$ e NH_4NO_3). A velocidade de rotação do agitador e a altura do reator são projetados no sentido de melhorar a área do contacto para haver reação completa. A suspensão de DUA transborda-se pela abertura localizada na parte superior do reator onde são medidos as temperaturas e pH. A vazão necessária de NH_3 , indicada para uma certa vazão de nitrato de urânio no rotâmetro, é controlada usando pH como parâmetro. O controle vazão de vapor mantém a temperatura de suspensão no valor desejado.

A suspensão de DUA transborda para a bacia do filtro e sua vazão deve ser suficiente para manter o nível na bacia, pois o gomo que se localiza, naquele instante, na parte

inferior do tambor deve estar ligeiramente mergulhado para permitir a formação de torta no elemento filtrante (figura 16). O agitador mantém uniformizada a suspensão e evita a classificação da mesma segundo tamanho de partículas e teor de DUA, permitindo uma formação uniforme e contínua. O tambor de filtro é constituído de doze gomos. Um deles funciona como formador de torta ligado ao vácuo, sete como enxugadores ligados ao vácuo, 3 como neutros sem ligação e 1 como destacador ligado ao sistema de ar comprimido.

A formação de torta se dá no gomo localizado na parte inferior do tambor e mergulhado na suspensão e à medida que o tambor gira no sentido horário esse gomo passa a ser neutro, secador e destacador, respectivamente. A torta enxugada e destacada cai no plano inclinado para a cinta do forno (figura 14 e 17). A válvula controladora de vácuo e ar comprimido é constituída de duas partes: uma móvel, com movimento do tambor e outra é fixa e ligada à linha de vácuo e de ar comprimido (figura 8). Tanto a parte móvel como a fixa tem forma cilíndrica (figura 18). A face externa da primeira é ligada ao sistema de vácuo e ar comprimido. Esta face possui friso de forma circular concêntrica em relação ao eixo do tambor do filtro que é preenchido parcialmente, tal que a parte livre é ligada à linha de vácuo e ar comprimido. A parte móvel possui doze furos circulares que atravessam o sólido e são paralelos ao eixo. Cada um deles está ligado ao gomo através de um tubo. Existe possibilidade de permutações nas funções dos gomos, como controlar a vazão de ar ou a intensidade do vácuo, isto é, podem alterar as condições operacionais do filtro rotativo (figura 18).

A torta formada no filtro, ainda úmida (52% de umidade) é alimentada na cinta móvel (velocidade 5 vezes menor que a velocidade tangencial do tambor). O forno recebe energia radiante infravermelha dos conjuntos de resistências localizados na parte interna da parede e no teto do forno e a região interna à mesma se aquece. A torta de DUA, à medida que percorre o forno sobre a cinta, vai perdendo água livre, amônia e água estrutural, produzindo UO_3 seco. O primeiro conjunto de resistências é responsável pela secagem de DUA. O segundo termina a secagem e o terceiro conjunto é responsável pela decomposição térmica de DUA.

No painel (figura 20) estão chave liga/desliga de corrente para os três conjuntos, porém os controles de corrente são independentes para os três casos. O controle de temperatura na região de secagem de torta é feita pelo dispositivo de controle localizado na parte externa da parede. Para o controle de temperatura na zona de decomposição térmica do DUA existe uma caixa com ligações de tal modo que se podem ligar parcial ou totalmente as resistências à fonte de corrente (figura 21).

O forno possui duas aberturas, uma onde entram tortas e outra onde entra o ar da reação e sai a torta. O exaustor localizado no teto do forno na primeira zona de secagem estabelece a corrente de gases no forno, faz a tiragem forçada e supre o ar para reação.

A torta de UO_3 descarregada do forno cai na peneira com aberturas de 2 mm e a torta de maior tamanho cai no tambor de armazenamento. Os finos são recolhidos no outro recipiente.

3. MATÉRIAS PRIMAS

Urânio

O urânio está, inicialmente, na forma de solução aquosa de nitrato de urânio.

Origem:- coluna de reversão da unidade de purificação de urânio com solventes no sistema TBP-nitrato de urânio¹³.

Análise química da solução de nitrato de urânio:

U	70 - 120 g/L
Si	60 - 160 ppm/U
P	10 ppm/U
Fe	26 - 50 ppm/U
Mo	2 ppm/U
pH	1,8 - 2,2

(ppm = parte por milhão)

Amônia (NH₃)

Em cilindros de 40 kg de NH₃.

Procedência:- Usina Colombina, São Paulo.

4. UTILIDADES

- Vapor d'água

Pressão de linha = 1 a 3 kg/cm²

Temperatura = 100 a 130°C

- Água desionizada

Origem:- setor de desionização da água industrial.

Descrição do setor de desionização de água

O sistema é composto de:

- a) Filtro de lona para impurezas mais grosseiras.
- b) Filtro de cartucho para impurezas mais finas.
- c) Filtro de carvão ativado para eliminação de cloro e materiais orgânicos.
- d) Vaso com resina catiônica e aniônica misturadas, para eliminação de substâncias iônicas dissolvidas como Ca⁺⁺, Mg⁺⁺.

Água Industrial

Origem:- água da rede municipal de São Paulo.

Ar comprimido

Sistema de compressor.

capacidade: 1,2 Nm³/min

pressão: 3,5 kg/cm².

Elettricidade

127 e 220 volts.

Vácuo

Fornecida pela bomba de vácuo do sistema de filtração. Capacidade de vácuo já descrito na página 35 .

5. MÉTODOS ANALÍTICOS

Apresenta-se aqui apenas um resumo de alguns métodos rotineiros no Laboratório Analítico do CEQ.

Urânio

O método para determinação de urânio em DUA nuclearmente pura baseia-se na calcinação direta do sal a 900°C, durante uma hora, resfriando-se em dessecador e pesagem do U_3O_8 .

Silício

Faz-se a determinação espectrofotométrica de silício em urânio por meio do complexo reduzido de ácido silico-molibdico, na fase orgânica composta de uma mistura de álcool amílico e acetato de etila, na proporção de 2:1. Faz-se a redução com solução de cloreto estanoso e a determinação espectrofotométrica em 810 nm, utilizando-se como referência uma prova branca dos reagentes.

Fósforo

O método usado para a determinação de microquantidades de fósforo em urânio envolve inicialmente extrair

ção com uma mistura de álcool amílico e acetato de butila. A seguir utilizam-se métodos colorimétricos baseados principalmente no desenvolvimento de coloração azul do complexo de fósforo com molibdênio (azul de molibdênio). Utiliza-se o cloreto estanoso como redutor.

Molibdênio

O molibdênio foi determinado espectrofotometricamente pelo método da redução do molibdênio com cloreto estanoso em presença de sulfato ferroso como catalizador. O complexo colorido de molibdênio pentavalente com tiocianato de amônio é extraído com acetato de butila e medido em $\lambda=470$ nm.

Ferro

O ferro é determinado aproveitando-se a coloração apresentada pelo complexo o - fenantrolina - ferroso após redução a Fe^{++} , em meio clorídrico. A coloração vermelha intensifica-se em $pH = 2,5 - 3,0$ e a medida espectrofotométrica é feita em 515 nm. Como solução de referência utiliza-se uma amostra sem a adição da o - fenantrolina. Desta mesma forma é feita a calibração utilizando-se soluções de cloreto de uranilo em concentração aproximada de 1 g de U/litro e adição de solução padrão de ferro em concentrações variadas, com um volume final de 25 ml.

Boro

O método baseia-se na determinação espectrofotométrica de boro com a extração de tetrafluorborato de nono-metiltiomina em 1-2 dicloro-etano.

CAPÍTULO IV

OPERAÇÃO DA UNIDADE DE PRODUÇÃO DE UO_3

1. DETERMINAÇÕES PRELIMINARES À PARTIDA

Descrevem-se aqui apenas os poucos controles analíticos necessários ao conhecimento dos engenheiros de operação de usina.

a) Determinação da concentração de urânio na solução aquosa de nitrato de urânio

Para dar partida à operação da unidade de produção de UO_3 deve-se fixar as condições operacionais. A determinação da concentração de U na solução de nitrato de urânio (alimentação do reator de precipitação de DUA com NH_3) é a primeira providência a ser tomada. A partir da mesma fixam-se os demais parâmetros. Durante a operação faz-se necessária a determinação rápida de urânio nas soluções aquosas. Escolheu-se um método para determinação de nitrato de urânio

que se baseia na determinação de densidade da solução. Esta determinação pode ser conseguida com uma coleção de densímetros. É um método fácil, barato e rápido. Em vista disso, procurou-se estudar mais detalhadamente o método.

Em primeiro lugar verificou-se que a concentração de ácido livre e a temperatura influenciam na densidade da solução, assim sendo mantiveram-nas constantes durante a determinação.

Em seguida, para facilitar o estudo coletaram-se séries de dados. Os procedimentos, para tal fim, são os seguintes:

1) Providenciaram-se 5 litros de solução aquosa de nitrato de urânio a 120 g de U/litro, previamente analisada no laboratório analítico.

2) Prepararam-se 5 porções de 1 litro cada, diluindo-se até a concentração desejada. Prepararam-se soluções de 60, 80, 90, 100 e 120 g de U/litro, tendo-se em vista que a solução de nitrato de urânio é um produto da unidade de purificação, e que a sua concentração varia de 60 a 120 g de U/litro, sendo a mais comum aquela de 100 g de U/litro.

3) Acertou-se a concentração de ácido livre em 0,04 N em todas as amostras.

4) Durante a determinação, mantiveram-se as soluções termostatizadas à temperatura constante de 20°C.

5) Utilizaram-se densímetros para determinação da densidade.

A Tabela 1 mostra a correlação densidade vs concentração. A Figura 23 mostra a mesma correlação.

TABELA 1 - Concentração de nitrato de urânio em função de densidade

Solução de nitrato de urânio nuclearmente puro	
Concentração	Densidade
g de U/L	g/cm ³
60	1,090
80	1,110
90	1,120
100	1,130
120	1,150

Para comprovar a utilidade da curva, ensaiou-se o método numa série de experimentos, variando-se a concentração de HNO_3 livre de 0 a 0,08 M, mantendo-se a temperatura constante em 20°C. Verificou-se que o erro cometido na determinação de concentração de nitrato de urânio foi, em média, menor que 2%. Os parâmetros operacionais ajustados a partir dessa determinação na operação contínua da unidade foram os mais corretos possíveis, considerando-se que a mesma ocorreu normalmente. Verificou-se assim que há uma linearidade da concentração vs densidade quando se mantém fixas a temperatura da solução e a concentração de HNO_3 livre. O uso deste gráfico para a determinação rotineira de concentração de ni-

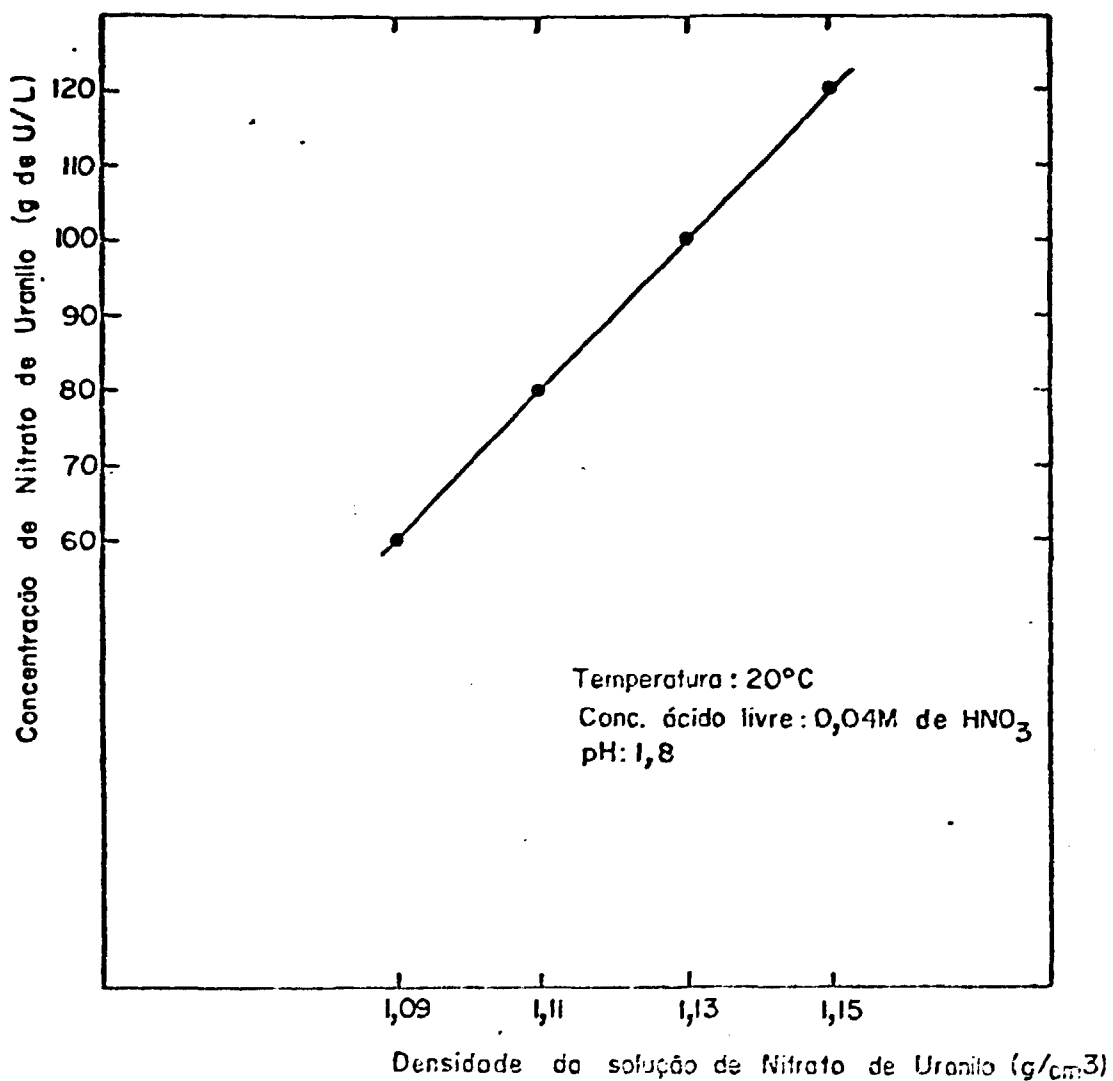


Figura 23: Concentração da solução de Nitrató de Uranilo em g de U/L vs. Densidade da solução em g/cm³.

trato de urânio é fácil e muito conveniente numa unidade de purificação.

b) Determinação de vazões de alimentação do reator químico

Determinação da vazão de nitrato de urânio

Calcula-se a vazão volumétrica de nitrato de urânio em L/min para a alimentação do reator de precipitação, conhecendo-se o tempo de residência adequado da suspensão no reator e o volume útil do mesmo com agitação.

Relação usada na determinação é $v = V/T$ em L/min (relação 1). Sendo:

v = vazão volumétrica da solução de nitrato de urânio (L/min)

V = volume real ocupado pela suspensão de diuranato durante o funcionamento do reator de precipitação, expresso em (L)

T = tempo de residência (minuto) da suspensão de DUA no reator de precipitação.

Por ser facilmente controlada no rotâmetro com auxílio de uma válvula, a vazão volumétrica passa a ser um parâmetro muito importante na operação.

Calcula-se a vazão mássica da solução aquosa de nitrato de urânio em g de U/litro, conhecendo-se a vazão volumétrica da solução de nitrato de urânio em (L/min) e sua concentração em g de U/litro.

$$\text{Então: } m = v \cdot C \quad (\text{Relação 2})$$

onde:

m = vazão mássica da solução aquosa de nitrato de urânio em g de U/min.

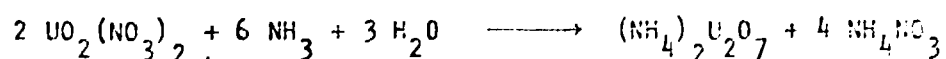
C = concentração da solução de nitrato de urânio em g de U/litro.

Observações: de modo geral não se conhece o tempo de residência adequado antes de completar o estudo da operação. Baseando-se nos experimentos de precipitação de DUA em batelada e nas referências^{5,25,6,26}, constatou-se que o tempo de residência adequado varia de 10 a 60 minutos. Deve-se observar que o reator de precipitação foi projetado para o tempo de residência de 42 minutos (13,5 kg de U/hora de produção).

Vazão volumétrica de NH₃

Obtém-se a vazão de alimentação de NH₃ gasoso, em litro de NH₃ por minuto, no processo de precipitação de DUA por três maneiras diferentes.

- Pelo cálculo estequiométrico, usando-se a equação da reação:



Fazendo-se o balanço estequiométrico da equação acima obtém-se um consumo de 0,214 kg de NH₃ por quilo-grama de U.

A fim de colocá-lo em prova, fez-se uma série de 5 precipitações mantendo-se esta relação, com precipitação em regime descontínuo. O pH médio obtido foi de 7,0 ± 0,2.

Repetiu-se o experimento em regime contínuo e o pH variou de 5,0 a 8,4.

Como foi observado, há dificuldade em manter a vazão de NH_3 constante na operação contínua da unidade de precipitação de DUA, principalmente quando a vazão é estequiométrica, pois quando se opera em pH próximo de 7 há uma variação brusca de pH com uma pequena variação da vazão de NH_3 . Além disso, o fator real de controle é a vazão volumétrica, a qual depende da temperatura e da pressão de NH_3 na linha, isto é, para vazão volumétrica constante há variação de vazão mássica de NH_3 .

- Pela utilização de uma família de curvas de precipitação com NH_3 gasoso:- para se ter uma idéia das quantidades de NH_3 consumidas durante a precipitação contínua de DUA, decidiu-se fazer uma verificação por meio de precipitação de nitrato de uranilo no próprio reator e de modo descontínuo, pois como foi explicado acima, é muito difícil controlar o pH em torno de 7. Visou-se estabelecer com este experimento os dados de partida relativos ao consumo de NH_3 no reator químico, para posterior cálculo da vazão de NH_3 alimentado continuamente.

Experimentos:

Reagentes

- .2000 litros da solução aquosa de nitrato de uranilo de 120 g de U/L
- .4 cilindros de $\text{NH}_3 = 160 \text{ kg}$
- . água desionizada

Material

- . instalação da unidade de produção contínua UO_3
- . balança capacidade 150 kg
- . pHmetro portátil
- . copo de 1000 mL
- . copo de 25 mL
- . copo de 50 mL
- . papel de pH Universal

Procedimento

a) Alimentou-se o reator químico de precipitação com 50 litros de uma solução aquosa de nitrato de uranilo de 120 g de U/litro.

b) Aqueceu-se a solução de nitrato de uranilo a $60^{\circ}C$, mantendo-a agitada a 400 rpm.

c) Alimentou-se o NH_3 lentamente borbulhando-o diretamente na solução sob agitação.

d) Esperou-se o pH atingir os valores 5, 6, 7, 8 e 9, parando-se e anotando-se o consumo de NH_3 (por pesagem) para cada valor de pH.

e) Repetiram-se os mesmos procedimentos para soluções de 100, 90, 80 e 60 g de U/litro.

f) Com os resultados dos experimentos fez-se a Tabela 2 e a Figura 24.

TABELA 2 - Consumo de NH_3 na precipitação de DUA em função de pH final e da concentração de urânio. Nitrito de urânio: $v = 10$ litros.

pH da suspensão	Nitrito de urânio (g U/L)			Consumo de NH_3 (kg)
	120	100	80	
5	0,160	0,156	0,122	0,100
6	0,200	0,196	0,156	0,116
7	0,240	0,200	0,160	0,120
8	0,246	0,224	0,182	0,138
9	0,292	0,264	0,233	0,180

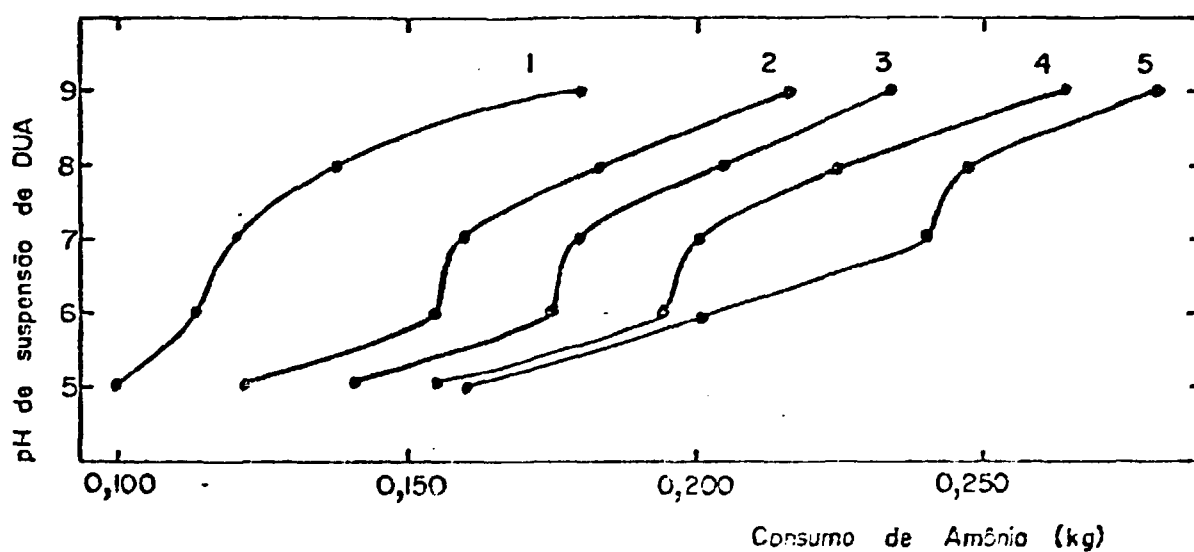


Figura 24: Consumo de Amônia em função de pH final da suspensão de DUA.

Volume de solução de Nitrato de urânio: 10 litros

Concentração de Nitrato de urânio em gU/L:

1: 60

2: 80

3: 90

4: 100

5: 120

Obteve-se assim um consumo de amônia da ordem de 0,2 kg de NH_3 para 1 kg de U, para $\text{pH} = 7$.

- Pelo uso de pHmetro na saída de DUA do reator de precipitação:- obteve-se o consumo de NH_3 monitorando os valores de pH da suspensão de DUA saída do reator. Deixou-se atingir o equilíbrio para cada pH considerado. Em $\text{pH} = 7$ obteve-se um consumo médio de 0,2 kg de NH_3 por kg de U.

Resultado

Usando-se três procedimentos diferentes para a obtenção do consumo de NH_3 no reator de precipitação, para valor de pH igual 7, encontrou-se, em média, 0,2 kg de NH_3 por kg de U.

Obtém-se a vazão volumétrica usando a relação:

$$v_{\text{NH}_3} = \frac{m \times R \times T}{M \times P} \quad (\text{relação 3})$$

onde:

- v_{NH_3} = vazão volumétrica de NH_3 em (L/min)
- m = vazão mássica de NH_3 em kg de NH_3 /hora
- R = constante Universal dos gases
- T = temperatura de NH_3 no rotâmetro em ($^{\circ}\text{K}$)
- M = massa molecular de NH_3
- P = pressão de NH_3 no rotâmetro em (atm).

A vazão volumétrica de NH_3 é um parâmetro de controle muito importante. É medida por um rotâmetro localizado na linha de alimentação antes de entrar no reator e controlada no valor pré-estabelecido com auxílio de uma válvula.

2. ESTUDO DOS PARÂMETROS QUE INFLUENCIAM A QUALIDADE E A PRODUÇÃO DO UO_3

Procurou-se relacionar e conhecer os parâmetros que podem influenciar a qualidade e a produção de UO_3 . Para isso estudaram-se os manuais de operação do filtro e do forno e usaram-se os dados obtidos nos experimentos realizados na unidade de produção descontínua de DUA.

Para facilitar os estudos, agruparam-se os parâmetros por setor de processo que compõem a unidade de produção UO_3 .

Precipitação contínua de DUA com NH_3

- Concentração de urânio da solução aquosa de nitrato de urânio de alimentação.
- pH da suspensão de DUA na descarga do reator.
- Temperatura da suspensão de DUA na descarga do reator.
- Tempo de residência da suspensão de DUA no reator.
- Excesso de NH_3 sobre vazão estequiométrica na alimentação do reator.
- Velocidade (rpm) do agitador de suspensão de DUA no reator.

Filtro contínuo e seu sistema de vácuo

- Velocidade (rpm) do tambor de filtro rotativo.
- Período do agitador da suspensão de DUA na bacia do filtro.
- Temperatura da suspensão de DUA na bacia do filtro.

- pH da suspensão de DUA na bacia do filtro.
- Teor de urânio na suspensão de DUA em g de U por litro na bacia do filtro.
- Tempo de residência da suspensão de DUA na bacia.
- Tipo de tecido (porosidade e material) do elemento filtrante.
- Material e espessura do destacadador da torta do elemento filtrante.
- Lavagem da torta de DUA com água ou solução aquosa de nitrato de amônio no elemento filtrante.
- Distribuição do vácuo nos gomos do tambor de filtro e o valor do vácuo aplicado (no setor de formação e enxugamento da torta) no tambor de filtro.
- Zona (%) do elemento filtrante do tambor de filtro imerso na suspensão de DUA.
- Vazão e pressão de ar no gomo na zona de destacamento da torta do elemento filtrante.

Secagem da torta de DUA - Forno de Cinta

- Tempo de residência da torta de DUA sobre a cinta na zona de secagem do forno contínuo.
- Perfil de temperatura (na direção perpendicular e na direção paralela) na zona de secagem do forno.
- Umidade da torta de DUA na entrada do forno.
- Vazão e temperatura do ar na zona de secagem do forno.
- Distribuição da torta de DUA na cinta do forno.
- Altura da torta de DUA na cinta do forno.
- Espessura da torta de DUA.

Decomposição térmica de DUA

- Tempo de residência da torta seca de DUA na zona de decomposição térmica do forno.
- Perfil de temperatura na zona de decomposição térmica de DUA do forno (na direção perpendicular e/ou na direção paralela ao movimento da torta de DUA/ UO_3).
- Vazão de ar e sua temperatura inicial na zona de decomposição térmica do forno.
- Característica da torta de DUA na zona de decomposição térmica do forno.
- Espessura da torta na zona de decomposição térmica de DUA do forno.
- Distribuição da torta na cinta do forno.
- Altura da camada da torta na cinta.

3. PRÉ-OPERAÇÃO PARA PRODUÇÃO EXPERIMENTAL DE UO_3

É uma atividade programada e desenvolvida antes de iniciar a operação propriamente dita da unidade. É uma adequação da unidade para produção de UO_3 de características apropriadas à finalidade de produto. Inclui-se aqui a coleta de dados para a operação. No caso da unidade de produção de UO_3 , a pré-operação desenvolveu-se em 3 fases: a) ensaios para a verificação do funcionamento dos equipamentos que compõem a unidade de produção de UO_3 ; b) produção de DUA/ UO_3 sem controle de qualidade do produto; c) otimização dos parâmetros operacionais.

a) Ensaio para a verificação do funcionamento dos equipamentos

Colocou-se em funcionamento cada um dos equipamentos da unidade sem preocupação alguma com a produção de UO_3 . Comparou-se o desempenho dos equipamentos, das ligações elétricas e hidráulicas com as especificações do projeto. As mudanças ocorridas por equipamentos foram:

No sistema bomba/tubulação do transporte de nitrato de urânio nuclearmente puro na forma de solução aquosa diluída do tanque de armazenamento da unidade de purificação de urânio para os tanques de armazenamento da unidade de produção de UO_3 . A solução de nitrato de urânio é bombeada de um prédio para o outro, usando-se uma linha de aço inoxidável de aproximadamente 36 metros de extensão.

Fez-se manutenção na carcaça da bomba de recalque de nitrato de urânio da unidade de purificação para a unidade de produção de UO_3 com finalidade de eliminar os vazamentos da mesma, evitando-se assim perdas para esgoto ou contaminação de nitrato com impurezas.

Trocou-se a tubulação e as válvulas inadequadas na linha de sucção da bomba por outras de menor perda de carga, evitando-se a ocorrência de cavitação da bomba.

Retirou-se a válvula de retenção na descarga da bomba, eliminandose perda de carga concentrada na mesma, evitando-se assim diminuição da capacidade de transporte do sistema.

Trocou-se a tubulação de 1 polegada de PVC por tubulação de 3/4 polegada de aço INOX AISI 304 e soldaram-se as uniões eliminando-se a possibilidade de ocorrer vazamentos na linha com conseqüente perda de urânio para o esgoto (sabe-se da baixa resistência mecânica de PVC e sua fragilidade perante a vibração e pressão transmitida pela bomba).

Na unidade de precipitação contínua de DUA com NH_3 :

- Retirou-se de operação a bomba usada na alimentação de nitrato de urânio na forma de solução aquosa no reator de precipitação de DUA com NH_3 , eliminando o erro no controle de vazão no rotâmetro. A bomba transmitia vibração no rotâmetro e a vazão desenvolvida pela mesma era irregular, dificultando a fixação do parâmetro.

Retirou-se de operação o pré-aquecedor da solução de nitrato de urânio, evitando-se assim a perda de carga e transmissão de turbulência que dificultava a fixação de vazão.

Instalou-se uma válvula para tomada de amostras para medida manual do pH.

Eliminou-se o contacto metal-metal no agitador da suspensão de DUA, no reator de precipitação, usando-se anel de teflon, e evitando-se, assim, a contaminação da suspensão por-ferro.

Instalou-se um purgador na linha de condensado do vapor de água, economizando-se vapor.

No sistema de alimentação da amônia providenciou-se a instalação de pátio para cilindros de amônia, bem junto à unidade, encurtando-se a linha de alimentação e evitando-se o vazamento de NH_3 e diminuindo sensivelmente a perda de carga na linha.

Os problemas decorrentes do congelamento de cilindros foram sanados providenciando-se: a) instalação de sistema de aquecimento do cilindro de NH_3 com água industrial (temperatura ambiente), formada de conjunto de chuveiros dirigidos sobre o topo de cilindro; b) aumento de capacidade de amônia no pátio de armazenamento. Um dos resultados observados foi a melhoria na continuidade de operação e maior facilidade do controle dos vários parâmetros.

No sistema de filtro e vácuo:

- Eliminou-se o sistema de lavagem de torta de DUA formada no elemento filtrante com água ou solução de nitrato de amônio, pois o filtro não comportava a zona de lavagem. Evitou-se, assim, a produção de torta de DUA muito úmida. Num filtro melhor projetado seria útil este sistema de lavagem, pois aumentaria a flexibilidade do filtro.

- Instalou-se, à jusante do sistema de vácuo um sistema de sedimentadores, aumentando-se o tempo e a área de sedimentação e evitando-se a perda de urânio para o esgoto.

No sistema forno de secagem/decomposição térmica de DUA:

- Retiraram-se da circulação as bandejas usadas para transportar a torta no forno. Instalou-se, assim, um novo sistema carga/descarga da torta. Antes da modificação a torta caía na bandeja e esta era colocada diretamente sobre a cinta transportadora. Atualmente, a torta cai diretamente na cinta, facilitando a operação e economizando um operador que era encarregado da carga/descarga das bandejas.

A modificação acima permitiu melhorar o perfil de temperatura no forno, melhorando e controlando a circulação de ar no mesmo.

b. PRODUÇÃO DE DUA/UO₃ SEM CONTROLE DE QUALIDADE DO PRODUTO

Feita a manutenção nos equipamentos, colocada a unidade dentro da especificação de projetos e resolvidos os problemas que impediam seu funcionamento, procurou-se estudar os parâmetros operacionais visando a formação de torta sem se preocupar com controle de qualidade da mesma.

Experimento 1

Objetivo: obtenção de torta na descarga do filtro.

Condições operacionais:

Adotaram-se, para iniciar o primeiro experimento, as condições operacionais da unidade de produção de DUA (regime descontínuo). Elas são:

- pH da suspensão de DUA na saída do reator de precipitação: > 9 .

- Temperatura da suspensão de DUA no reator de precipitação: 60°C .
- Rotação do agitador da suspensão de DUA no reator: 760 rpm.
- Relação (NH₃/U) = 3,6 .
- Tempo de residência da suspensão de DUA no reator: 43 min.
- Vazão de nitrato de urânio na alimentação do reator: 2 L/min.
- Vazão de NH₃ (1 atm e 20°C) na alimentação do reator: 81 L/min.
- Concentração de nitrato de urânio na solução de alimentação do reator: 100 g de U/litro.
- Velocidade do tambor do filtro: 0,072 rpm.
- Período do agitador da suspensão de DUA na bacia do filtro: 3 segundos.
- Vácuo aplicado na zona de secagem/formação de torta: 13 polegadas de mercúrio..
- Polpa de DUA na bacia do filtro na zona de formação de torta: 100 g de U/litro de suspensão.
- Elemento filtrante usado no tambor: uma só camada de lona de nylon. Nome comercial: REMAE 1098.
- pH da suspensão de DUA na bacia de filtro: 8,9.
- Destacador da torta: lâmina de teflon de 3 mm de espessura.
- Lavagem da torta: não houve.
- Pressão de ar na zona de destacamento da torta do elemento filtrante = 0,2 kg/cm².
- Temperatura da suspensão na bacia: 35°C.

Os resultados do experimento estão na Tabela

TABELA 3 - Correlação umidade da torta de DUA com sua espessura, produção e presença de urânio no filtrado

Operação nº	Torta de DUA na descarga do filtrado			Filtrado
	umidade (%)	espessura da torta (mm)	produção de DUA kg U/h	presença de urânio
1	53	5,5	8,4	positivo
2	53	4,9	7,8	positivo
3	51	4,8	8,1	positivo
4	50	4,5	7,9	negativo
5	52	4,8	7,9	negativo
6	53	4,7	8,3	negativo

Ensaio de urânio: reação de toque com ferrocianeto

Para a realização do experimento II, tornou-se necessário a conversão da velocidade do tambor do filtro indicado no painel para a velocidade real, o que é feito operando-se o filtro com carga e determinando a velocidade real para cada uma das velocidades indicadas no painel.

A conversão da velocidade real para a tangencial é feita pela relação:

$$V_t = \pi \cdot D \cdot V \quad (\text{Relação 4})$$

onde:

V_t = velocidade tangencial do tambor (cm/min)

D = diâmetro do tambor do filtro em (cm)

Os resultados das conversões estão na Tabela 4.

TABELA 4 - Velocidade tangencial do tambor do filtro em função dos valores rpm indicados no painel

Velocidade do tambor de filtro rotativo		Velocidade tangencial do tambor do filtro rotativo
Indicado no painel	real	
(rpm)	(rpm)	(cm/min)
100	0,0210	6,03
200	0,0370	10,62
300	0,0550	15,80
400	0,0720	20,67
500	0,0900	25,67
600	0,1111	31,90
700	0,1260	36,18
800	0,1470	42,41
900	0,1680	48,24

Experimento II

Influência de vácuo aplicado na zona de enxugamento/formação de torta.

Condições experimentais:

Vácuo aplicado: 5 a 22 polegadas de Hg.

Outros parâmetros: iguais aos do experimento I.

Os resultados do experimento II estão na Tabela 5.

Tabela 5 - Correlação entre vácuo aplicado nos gonos de tambor do filtro, espessura e umidade da torta de DUA.

Vácuo Aplicado em (pol Hg)	Torta de DUA úmida na descarga do filtro	
	Espessura em (mm)	Umidade em (%)
5	1,3	64
6	1,6	55
7	1,7	59
8	1,9	54
9	2,2	53
10	2,4	52
11	3,3	50
12	4,0	52
13	4,2	52
14	4,3	51
15	4,4	51
16	4,9	50
17	4,6	48
18	4,7	51
20	4,9	52
21	5,2	50
22	4,1	51

Experimento III. Estudo de influência da velocidade do tambor na formação da torta.

Condições operacionais:

Rotação do tambor de filtro: 0,021 a 0,1470 rpm

Outros parâmetros: iguais aos do experimento I

Os resultados do experimento III estão na tabela 6.

Tabela 6 - Correlação entre a velocidade do filtro rotativo, espessura e umidade da torta de DUA.

Velocidade do tambor de filtro (rpm)	Torta de DUA na descarga do filtro rotativo	
	Espessura (mm)	Umidade (%)
0,0210	7,8	48
0,0370	6,9	51
0,0460	7,0	51
0,0550	6,6	50
0,0635	6,2	51
0,0720	4,8	51
0,0810	4,2	53
0,0900	2,8	51
0,1005	1,7	55
0,1111	1,2	59
0,1165	Não formou torta	Massa muito úmida
0,1260	Não formou torta	Massa muito úmida
0,1470	Não formou torta	Massa muito úmida

Depois de terminados os três primeiros experimentos, analisaram-se os resultados, visando uma realização mais segura dos próximos experimentos.

No experimento I verificou-se que, controlando os parâmetros adotados no mesmo, pode-se obter a torta de DUA na descarga do filtro. Entretanto, não houve preocupação no sentido de otimização dos parâmetros para se obter maior produção.

Nos experimentos II e III estudaram-se as influências do vácuo aplicado e a velocidade do filtro rotativo, respectivamente, na qualidade da torta.

Analisando-se o resultado do experimento II (tabela 5) verificou-se que a espessura e a umidade da torta, na descarga do filtro, são praticamente constantes, quando os valores do vácuo aplicado no gomo do tambor do filtro ultrapassaram 16 polegadas na coluna de mercúrio. Obtiveram-se os melhores resultados em relação à espessura (maior valor) e umidade (menor valor) da torta quando o vácuo aplicado variou de 16 a 22 polegadas na coluna de mercúrio. Concluiu-se que o vácuo a ser aplicado no próximo experimento deverá ser maior que 16 polegadas (Hg).

Uma vez escolhido o valor de vácuo aplicado, analisaram-se os resultados do experimento III (tabela 6). Verificou-se que a velocidade de filtro rotativo poderia operar entre valores 0,0210 e 0,1111 rpm para a obtenção da torta.

Uma vez adquirido melhor conhecimento da operação do filtro, o próximo objetivo passou a ser a obtenção da produção máxima de DHA no filtro.

Fazendo-se o balanço do material no tambor do filtro chegou-se à relação:

$$PD = \pi \cdot D \cdot L \cdot E \cdot V \cdot \rho \cdot X \quad (\text{relação 5})$$

onde:

- PD - Produção de DUA na descarga do filtro em kg/hora
 D - Diâmetro do tambor do filtro em m
 L - Largura do tambor do filtro em m
 E - Espessura da torta no tambor do filtro em m
 V - Velocidade do filtro rotativo em rph (rotação por hora)
 ρ - Densidade da torta úmida no tambor do filtro em kg/m^3
 X - Teor de DUA na torta em kg de DUA por kg de torta.

Definiu-se X como $(1 - U)$, onde U é a umidade da torta.

Analisando-se a relação 5, verifica-se que a produção de urânio no filtro depende de quatro variáveis ou sejam: espessura, densidade e umidade da torta e velocidade do filtro rotativo. Diâmetro e largura do tambor do filtro são constantes.

O próximo passo seria o estudo dessas variáveis. Verificou-se que na prática a densidade e umidade da torta são virtualmente constantes quando há produção de DUA no filtro. Adotou-se o valor médio para essas variáveis. Assim a produção depende consideravelmente da espessura da torta e velocidade do filtro rotativo.

Pela tabela 6 verificou-se que a espessura da torta depende da velocidade do filtro rotativo; assim pode-se considerar que a produção depende só do parâmetro velocidade do filtro rotativo, fator facilmente controlável pelo operador. Então tem-se produção de torta somente como função da velocidade do filtro rotativo. Para obtenção da produção máxima traçou-se a curva que correlaciona a produção de DUA

no filtro e a velocidade do tambor rotativo. Usou-se a relação 5 para cálculo da produção da torta no filtro. Os resultados estão na figura 25.

Experimento IV - Ensaio de verificação de conclusões dos experimentos anteriores.

Condições operacionais

Vácuo aplicado nos gomos do tambor rotativo do filtro = 22 polegadas de coluna de mercúrio.

Velocidade do tambor rotativo do filtro: 0,0635 rpm

Outros parâmetros: iguais aos do experimento I

Os resultados estão na tabela 7.

Tabela 7 - Correlação da umidade da torta de DUA com sua espessura, produção e presença de urânio no filtrado.

Operação	Torta de DUA na descarga do filtro			Filtrado
	Umidade (%)	Espessura da torta (mm)	Produção da torta (kg U/h)	Presença de Urânio mg U/litro
1	53	4,7	10,40	< 20
2	48	4,9	10,60	< 20
3	52	4,9	10,70	< 20
4	55	5,5	10,90	< 20

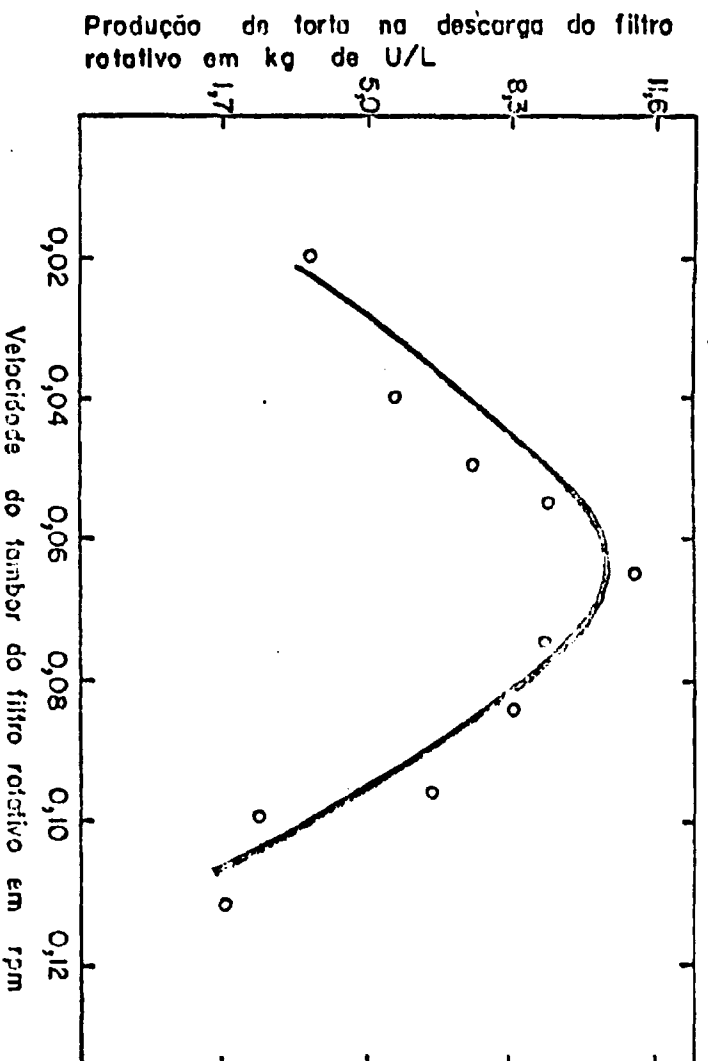


Figura 25: Correlação entre a velocidade do tambor do filtro rotativo e a produção de DUA na descarga do filtro.

Experimento V - Obtenção de UO_3

Conhecida a produção de DUA na descarga do filtro, estudou-se a sua transformação em torta de UO_3 no forno contínuo.

Concluiu-se que a altura da torta e o tempo de residência tinham influência decisiva na secagem ou na calcinação de DUA.

Fixaram-se as condições operacionais do forno baseados nas operações da unidade descontínua de DUA e os manuais do forno.

Condições operacionais

Largura de camada da torta de DUA na entrada do forno: 50 cm

Altura da camada da torta de DUA na entrada do forno: 3 cm

Tempo de residência da torta de DUA/ UO_3 no forno: 2 horas.

Temperaturas de forno

Temperatura I = Temperatura no ponto a 75 cm da entrada:
120°C

Temperatura II = Temperatura no ponto a 263 cm da entrada:
120 a 320°C

Temperatura III = Temperatura no ponto a 479 cm da entrada:
120 a 450°C.

Outros parâmetros: iguais aos do experimento IV.

Os resultados estão na tabela 8.

Tabela 8 - Secagem do DUA em função do gradiente de temperatura do forno e da espessura da torta

Temperatura °C			DUA úmido entrada do forno		DUA/UO ₃ na saída do for- no (descarga)	
I	II	III	Espessura (mm)	Umidade (%)	Espessura (mm)	cor
90	120	120	5,0	56	4,5	amarelado
108	180	200	5,0	56	4,0	amarelo
112	260	350	4,8	52	3,7	amarelo
120	300	410	4,8	52	3,7	alaranjado
120	320	450	4,8	52	3,7	castanho

c. OTIMIZAÇÃO DOS PARÂMETROS OPERACIONAIS NA PRODUÇÃO DE DUA/UO₃

Estudadas e conhecidas as condições operacionais adequadas para a formação contínua da torta de DUA/UO₃ na unidade de produção, procurou-se otimizá-la de modo que o produto obtido fosse adequado para a alimentação das unidades de produção de UF₄ (CEQ) e UO₂ (CMN).

Produção de UO₃ para preparação de UF₄.

Na primeira tentativa de otimização dos parâmetros operacionais fixou-se como objetivo a obtenção de UO₃ com as seguintes características:

- . Espessura da torta de UO₃: 2 mm
- . Cor de UO₃: Alaranjado tijolo brilhante
- . Umidade da torta: < 4%
- . Resistência ao toque da grafita HB - 0,5 mm.

O ensaio deve ser com lapizeira tipo Pentel P205 de modo que o tamanho da ponta seja de 5 mm e deverá ser tocada perpendicularmente à superfície da torta, com toque bem leve. Convencionou-se dar os seguintes conceitos aos resultados deste ensaio de teste: má, regular e boa.

A escolha dessas características deveu-se às observações nos experimentos anteriores.

Além da importância dos três primeiros itens tem-se que considerar o teste de resistência, que embora seja muito subjetivo, pode indicar a probabilidade de a torta

qualificada de boa ser separada e alimentada como matéria prima na unidade de UF₂ e a torta qualificada de má ou regular ser armazenada para uso futuro.

Experimento VI - Obtenção de torta com as 4 características indicadas na página 67.

Estudou-se neste experimento a influência de velocidade do tambor rotativo, da altura da camada da torta na cinta no forno e a temperatura da zona de decomposição térmica na qualidade do produto.

Condições operacionais:

Velocidade do filtro rotativo: 0,021 a 0,1185 rpm

Temperatura I : 200°C

Temperatura II : 280 a 300°C

Temperatura III: 350 a 410°C

Altura da camada da torta DUA/UO₃ na cinta do forno = 1,5 a
3,0 cm

Largura da camada de torta na cinta do forno: 50 cm

Outros parâmetros: iguais aos do experimento V.

Os resultados estão na tabela 9.

Tabela 9 - Características de torta de DUA/UO₃ em função da velocidade do tambor do filtro rotatório, da altura da camada de DUA e da temperatura no ponto a 479 cm da entrada do forno

Velocidade do tambor do filtro (rpm)	Altura da camada da torta de DUA (cm)	Temperatura III (°C)	Descarga da torta de DUA/UO ₃ no forno		
			Espessura (mm)	cor	Resistência ao toque de grafita
0,0210	3,0	410	8,4	marron	mã
0,0685	3,0	410	2,8	alaranjado	mã
0,0720	3,0	410	2,5	alaranjado	regular
0,0900	3,0	410	2,3	alaranjado	regular
0,1000	3,0	410	2,1	alaranjado	regular
0,1111	3,0	410	2,0	alaranjado	regular
0,1190	3,0	410	1,5	alaranjado	boa
0,0720	2,5	410	2,5	alaranjado	regular
0,0810	2,5	410	2,3	alaranjado	boa
0,0900	2,5	410	2,1	alaranjado	boa
0,0720	2,0	410	2,4	alaranjado	boa
0,0810	2,0	410	2,3	alaranjado	boa
0,0900	2,0	410	2,0	alaranjado	boa
0,0900	2,0	350	2,3	amarelado	mã
0,0685	2,0	380	3,2	alaranjado	boa
0,0900	1,5	350	2,2	alaranjado	mã
0,1111	2,0	350	1,8	alaranjado	boa
0,1000	2,0	350	2,0	alaranjado	boa

Experimento VII - Influência do tempo de residência no forno sobre a qualidade da torta de DUA/ UO_3 . Descarga da torta no forno em função da altura da camada de torta na cinta.

Condições operacionais :

Velocidade de tambor de filtro rotativo: 0,09 rpm

Temperatura I. : 200°C

Temperatura II : 300°C

Temperatura III : 410°C

Tempo de residência do forno: 1 a 4 horas

Altura da camada da torta na cinta do forno: 1,5 a 3 cm.

Outros parâmetros: iguais aos do experimento VI

O tempo de residência de 4 horas foi conseguido passando-se duas vezes a torta no forno.

Os resultados estão na tabela 10.

Tabela 10 - Características de torta de DUA/UO₃ em função de tempo de residência no forno e da espessura da torta úmida.

Tempo de residência da torta (min)	Altura da torta na cinta (cm)	Descarga da torta de DUA/UO ₃		
		Espessura (mm)	Cor	Resistência ao toque (grafita)
60	3,0	2,1	amarela	boa
90	3,0	2,2	amarela	boa
120	3,0	2,1	alaranjado	boa
240	3,0	2,0	alaranjado	boa
60	2,5	2,3	alaranjado	boa
120	2,5	2,1	alaranjado	boa
90	2,5	2,2	alaranjado	boa
60	2,0	2,3	amarela	boa
60	1,5	2,0	alaranjado	boa

Experimento VIII - Influência do pH da suspensão de DUA (reator de precipitação) na qualidade de UO_3 na descarga do forno.

Condições operacionais:

pH da suspensão de DUA na descarga do reator: 5 a 9

Vazão da solução de nitrato de urânio : 1,2 L/min.

Tempo de residência no forno : 2 horas

Altura da camada da torta na cinta do forno : 3 cm

Outros parâmetros: iguais aos do experimento VII

Variou-se a vazão de NH_3 , controlada no rotâmetro, entre 26,5 L/min. (para pH = 5) e 45 L/min. (para pH = 9).

Os resultados estão na tabela II.

Tabela II - Características da torta de DUA/ UO_3 em função do pH da suspensão, espessura e umidade.

pH da suspensão de DUA	Torta de DUA na descarga do filtro rotativo		Torta de DUA/ UO_3 na descarga do forno		
	Espessura (mm)	Umidade (%)	Espessura (mm)	Cor	Resistência do toque
5,0	torta	pastosa	n.d.	amarela	mã
5,5	torta	pastosa	n.d.	amarela	mã
6,0	torta	pastosa	n.d.	amarela	mã
6,5	torta	pastosa	n.d.	amarela	mã
7,0	torta	pastosa	n.d.	amarela	mã
7,0	2,8	61	2,3	amarela	mã
7,5	2,7	53	2,2	alaranjada	boa
8,0	2,8	51	2,4	alaranjada	boa
8,5	2,6	48	2,0	alaranjada	boa

n.d. = não determinada.

Experimento IX - Influência da temperatura da suspensão de DUA no reator e na bacia do filtro sobre a qualidade de UO_3 na descarga do forno.

Condições operacionais:

pH da suspensão de DUA na saída do reator: > 9

Temperatura da suspensão de DUA no reator: 30 a 90°C

Temperatura da suspensão de DUA na bacia do filtro: 30 a 80°C

Outros parâmetros: iguais aos do experimento VIII.

Os resultados estão na tabela 12.

Tabela 12 - Características da torta de DUA/ UO_3 em função da temperatura de suspensão de DUA (reator e bacia do filtro), da espessura e umidade.

Temperatura da suspensão de DUA		Torta de DUA na descarga do filtro		Torta de DUA/ UO_3 na descarga do forno		
No reator (°C)	Na bacia do filtro (°C)	Espessura (mm)	Umidade (%)	Espessura (mm)	Cor	Resistência ao toque (grafita)
30	30	2,3	58	1,8	alaranjada	mã
35	32	2,7	56	2,0	alaranjada	mã
40	35	2,8	53	2,1	alaranjada	regular
45	40	2,8	51	2,0	alaranjada	regular
50	43	2,7	52	2,3	alaranjada	boa
55	41	2,6	51	2,1	alaranjada	boa
60	43	2,5	50	2,2	alaranjada	boa
70	45	2,6	52	2,1	alaranjada	boa
80	47	2,5	51	2,0	alaranjada	boa
90	48	2,6	52	2,0	alaranjada	boa
96	Arraste da suspensão devido a vaporização da água no reator					
60	50	2,7	51	2,1	alaranjada	boa
60	80	não se formou torta no filtro rotativo				

Experimento X - Influência da velocidade do tambor do filtro rotativo e do elemento filtrante na produção de DUA úmido.

Condições operacionais:

Velocidade do tambor do filtro rotativo: 0,021 a 0,111 rpm

Temperatura da suspensão de DUA no reator: 60°C

Temperatura da suspensão de DUA na bacia do filtro: 40°C

pH da suspensão de DUA na saída do reator: >9

Outros parâmetros: iguais aos do experimento IX

Elementos filtrantes: 1 só lona de nylon REMAE-1098, duas camadas sobrepostas de lona de nylon-REMAE-1098 e 1 só lona de algodão.

A lona de nylon REMAE 1098 foi experimentada e aprovada no laboratório quanto à retenção de finos da suspensão de DUA. Assim, foi recomendada e usada na operação de filtro. Usou-se 1 só lona. Após aproximadamente quatro meses de operação constatou-se a passagem de DUA para o filtrado. Verificaram-se pequenos furos no elemento filtrante. Tendo em vista evitar reposição freqüente de elemento filtrante, operou-se com duas camadas sobrepostas de lona de nylon REMAE 1098.

Também, operou-se com 1 só lona de algodão.

Os resultados estão na tabela 13.

Tabela 13 - Produção de torta úmida na descarga do filtro em função da velocidade do tambor rotatório.

Tambor do Filtro	Elemento filtrante do filtro rotatório								
	lona de nylon REMAE 1098						lona de algodão		
	Uma só lona			Duas camadas de lona			Uma só lona		
	Velocidade (rpm)	Espessura (mm)	Umidade (%)	Produção kg U/h	Espessura (mm)	Umidade (%)	Produção kg U/h	Espessura (mm)	Umidade (%)
0,021	7,5	52	5,06	6,8	55	3,97	5,8	52	4,7
0,037	6,3	53	7,63	5,9	54	6,20	5,3	51	7,78
0,055	5,8	52	10,25	5,3	53	8,47	4,9	51	10,70
0,072	4,8	53	11,31	4,4	53	9,20	4,1	51	8,95
0,090	3,0	55	9,17	2,1	55	5,25	2,1	52	7,35
0,111	1,3	52	4,63	não se formou torta			1,3	49	4,10

Adotou-se a alternativa de 1 sô lonã de nylon REMAE 1098 como elemento filtrante para os próximos experimentos por ser esta a alternativa que oferece maior produção e melhor qualidade do produto. Optou-se pela troca do elemento filtrante cada 4 meses de operação.

Experimento XI - Obtenção do perfil de temperatura na superfície da camada de DUA/ UO_3 ao longo do forno contínuo (cinta).

Condições operacionais:

Velocidade do tambor do filtro rotativo: 0,090 rpm

Outros parâmetros: iguais aos do experimento XI.

O produto e o ar para reação são aquecidos por meio de calor gerado nas resistências elétricas localizadas no teto e nas paredes laterais.

O gás de reação, o vapor de água e excesso de ar são succionados pelo exaustor localizado no teto de forno, na posição intermediária da zona de secagem. A tiragem forçada de gás no forno promove aparecimento de corrente de ar e gás, na zona de decomposição térmica, e de vapor de água, na zona de secagem da torta sempre no sentido da zona exaustão.

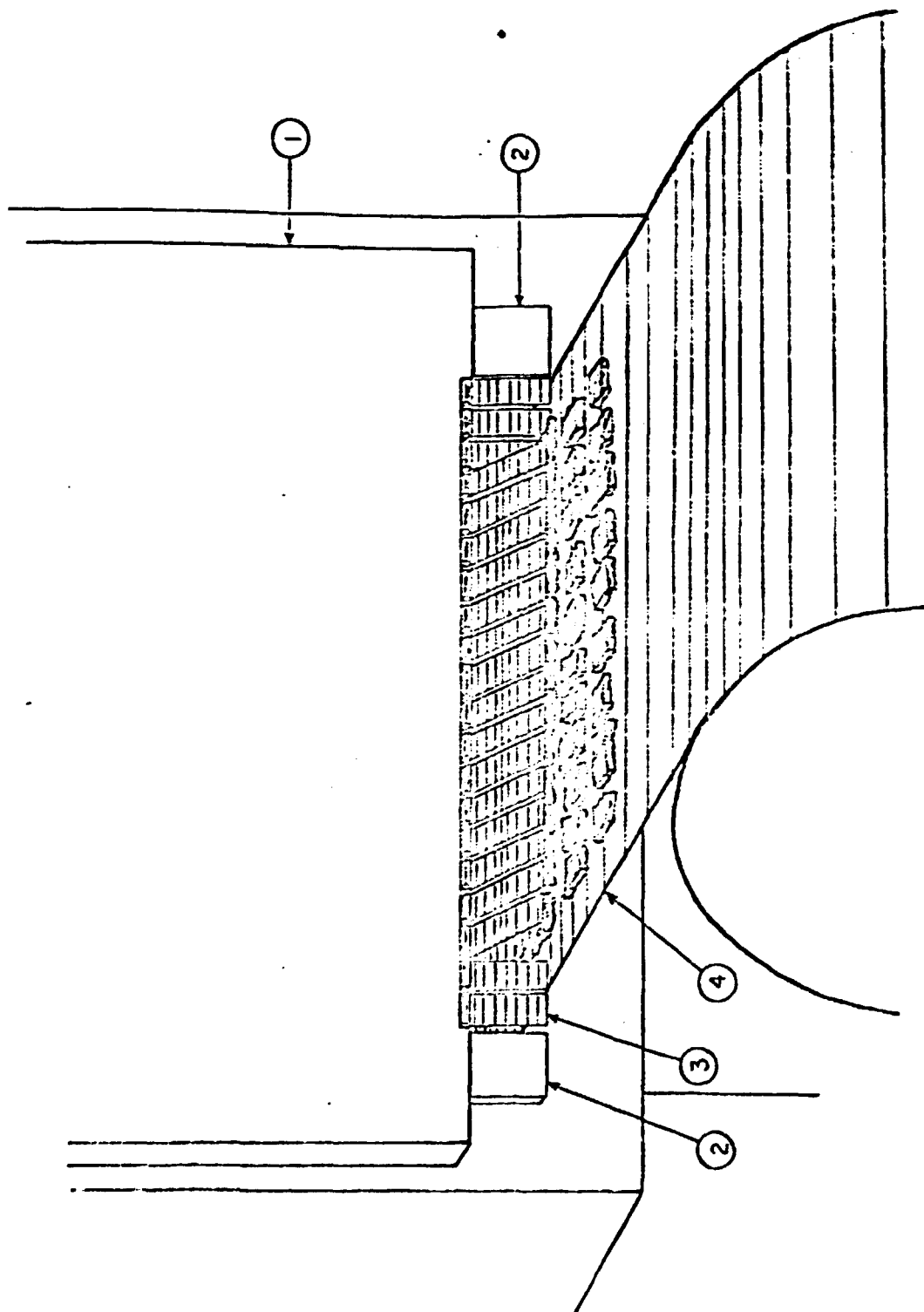
A vazão de ar, normalmente, é maior do que a do projeto, por não ser constante. Isso acarreta no controle da vazão um valor elevado para garantir a reação, elevando o consumo de energia na resistência elétrica com conseqüente encarecimento do produto final. O controle de ar é feito per-

la válvula, tipo borboleta, alterando a tiragem forçada de gás. Localiza-se na sucção do exaustor. O exaustor não opera à vazão constante, devido erro de projeto no duto de gás de descarga.

Uma das maneiras de evitar consumo exagerado de energia é exercer um controle rigoroso de vazão de ar e sua temperatura usada na reação.

Projetou-se e montou-se uma serpentina para aquecimento de ar dentro do forno. Ligou-se o mesmo no sistema de ar comprimido. O ar aquecido é alimentado a 50 - 60 cm com jato orientado sobre superfície da camada de torta à temperatura de reação (aproximadamente 410°C), na posição de 50 e 60 cm da saída do produto no forno (zona de decomposição térmica da torta). A vazão de ar é controlada na junção de serpentina e pelo sistema de ar comprimido, através de uma válvula globo de agulha.

Para melhor controle da situação, fechou-se a entrada e saída do ar e gás pelas aberturas do forno localizadas na entrada e saída da torta. Permitiu-se somente a entrada e saída da torta, usando para isso um dispositivo (figura 26) semelhante a cortina, constituído de folhas cortadas de alumínio. Usou-se a folha de alumínio bem fina por ser leve e resistente à temperatura (410°C). Ele acompanha o movimento de torta sem esmagá-la ou alterar a disposição geométrica da camada de torta.



1: Porta móvel da saída da torta do forno

2: Chapa metálica

3: Cortina

4: Cinto

Figura 26: Saída do forno com cortina.
Porta totalmente fechada.

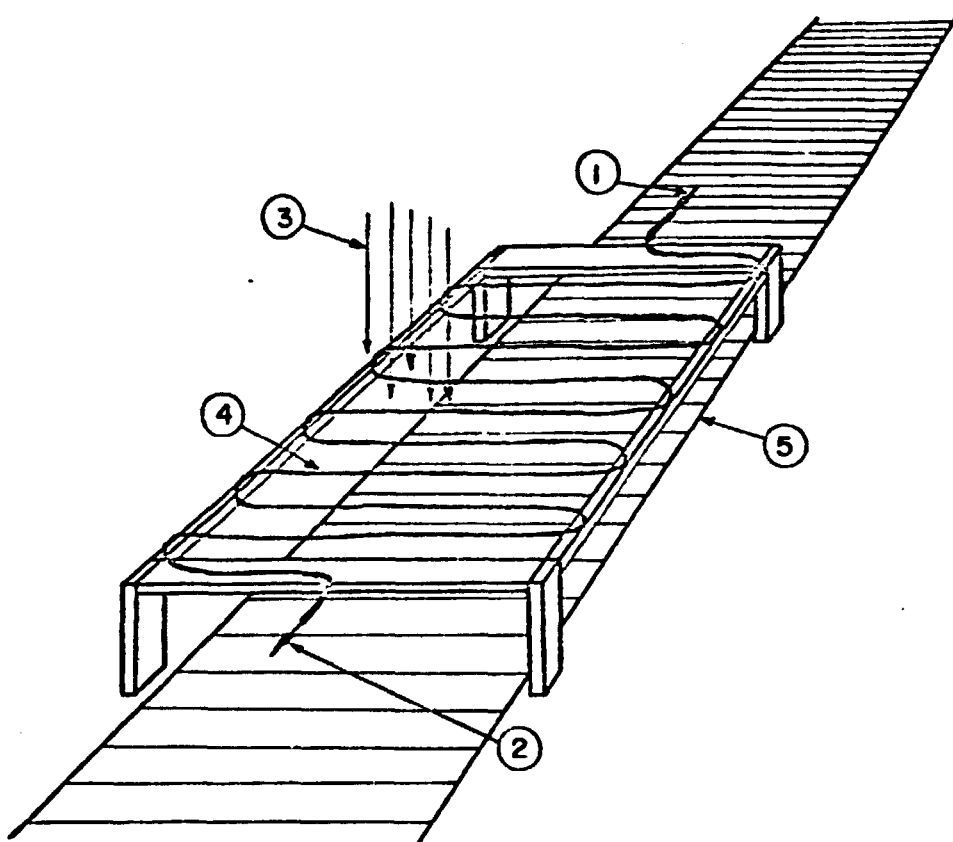
Condição 1 - Aberturas máximas, nas horas de entrada da torta no forno e saída da torta e entrada de ar, conforme a figura 29.

Condição 2 - Abertura máxima na porta de entrada da torta e porta de saída da torta; entrada de ar semi-aberta, conforme figura 28.

Condição 3 - Abertura máxima na porta de entrada da torta e porta de saída de material quase fechada, conforme figura 30.

Condição 4 - Abertura mínima suficiente para passagem da torta e abertura da saída da torta totalmente fechada (sistema indicado na figura 26, só permitindo passagem da torta e não de ar de reação!). Neste caso deve-se evitar a entrada de ar pela porta da entrada de torta, pois pode inverter o sentido de corrente de ar e gás no forno, com consequência danosa para a operação. O ar de reação é fornecido por um sistema de serpentinas ligado ao sistema de ar comprimido e aquecido com calor gerado pela resistência do forno até aproximadamente 410°C . Alimentou-se o ar de 50 a 60 cm da saída do forno, mantendo a temperatura da reação de 400°C na saída da torta do forno. A figura 26 indica esta condição de ar. O sistema simplificado de serpentina está representado na figura 27.

Condição 5 - Porta de entrada e saída da torta no forno totalmente fechada, com cortinas na entrada e saída do mesmo tipo da figura 26.



1: Entrada de ar a 30°C

2: Saída de ar a 410°C

3: Irradiação

4: Serpentina

5: Cinta

Figura 27: Sistema simplificado de serpentina de aquecimento de ar para reação.

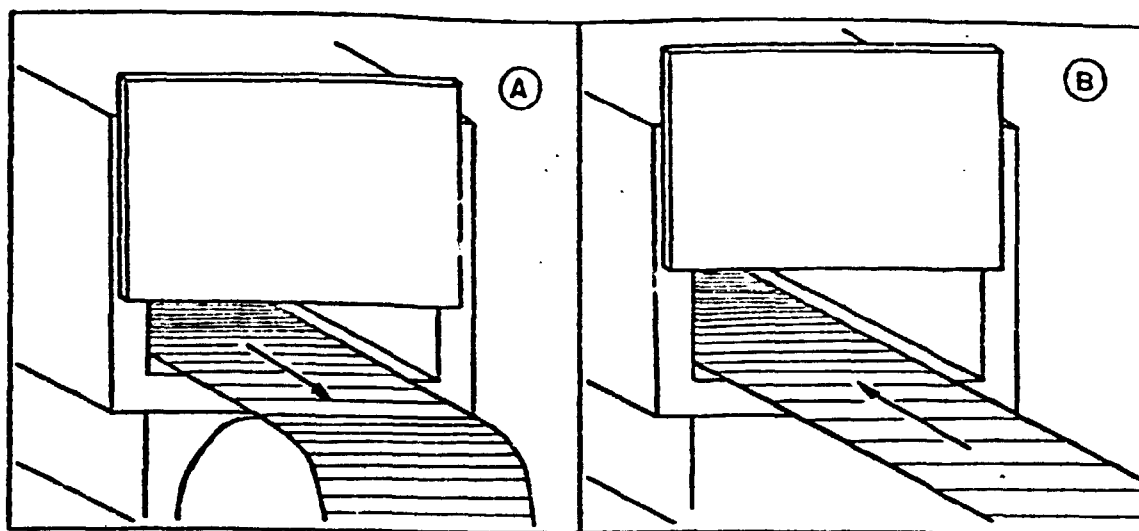


Figura 28: Condições:

A- Porta de saída de torta: Semi-aberta

B- Porta de entrada de torta: Abertura máxima

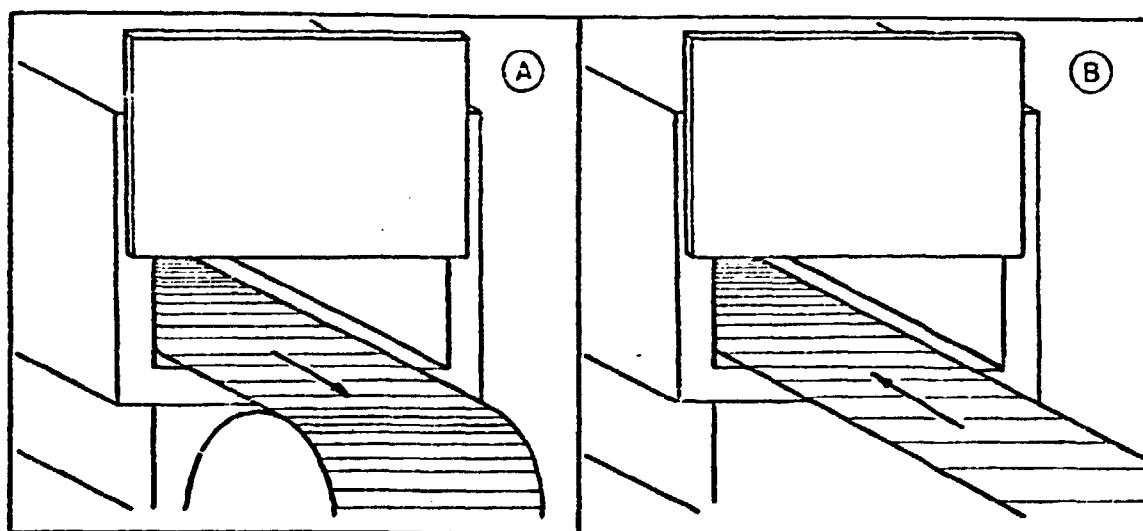


Figura 29 : Condições:

A- Porta de saída de torta: Abertura máxima

B- Porta de entrada de torta: Abertura máxima

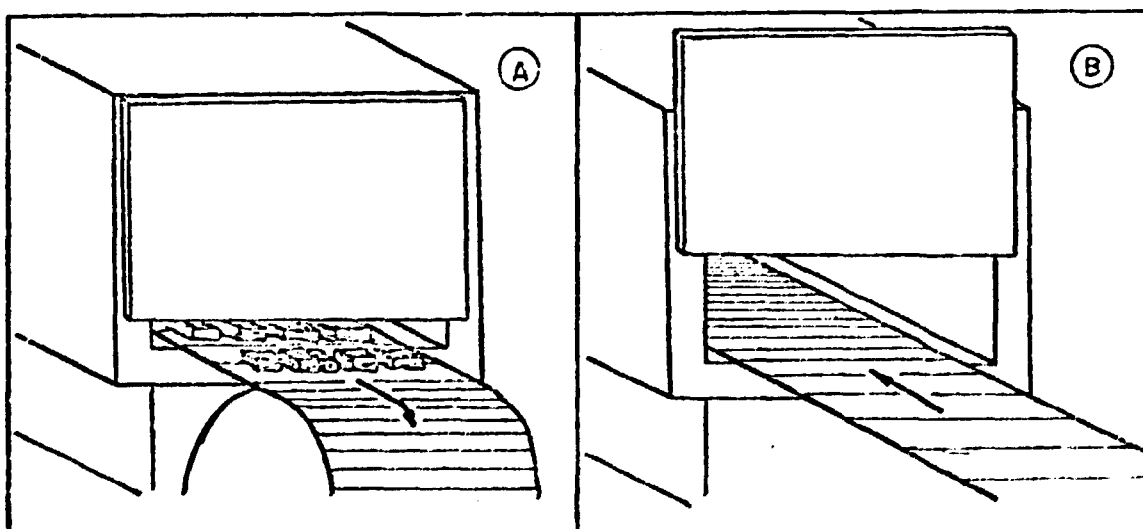


Figura 30: Condições:

A- Porta de saída de torta: Abertura mínima

B- Porta de entrada de torta: Abertura máxima

Para a tomada de temperatura usou-se o sistema constituído de um termopar cromel - alumel com comprimento de 10 metros, um medidor de milivoltagem (pode ser convertido em temperatura) e uma junção de referência (0°C).

Os pontos de tomadas de temperaturas estão localizadas sobre a superfície da camada de tortas e pertencem a uma reta que passa pelos pontos médios em relação às laterais do forno. Sua distribuição está indicada na tabela 14.

Tabela 14 - Localização dos pontos de tomadas de temperatura no forno de cinta.

Ponto nº	Localização (medida a partir da entrada de forno) m
1	0,00
2	0,50
3	1,00
4	1,50
5	2,00
6	2,50
7	3,00
8	3,50
9	4,00
10	4,50
11	5,00
12	5,50
13	6,00
14	6,17

Os resultados de 5 determinações estão condensados na Tabela 15.

Tabela 15 - Características de UO_3 em função do perfil de temperatura no forno de cinta móvel.

CONDIÇÕES DE ENTRADA DE AR					
TOMADAS DE TEMPERATURAS nº	1	2	3	4	5
	TEMPERATURA (°C) MÁXIMA/MÍNIMA				
1	45/45	38/38	46/46	50/43	51/50
2	46/46	48/48	53/53	129/125	140/135
3	60/60	63/63	62/62	136/123	189/180
4	84/85	83/79	81/79	148/137	256/245
5	120/115	123/119	120/119	194/163	350/348
6	150/145	158/148	160/159	254/250	361/360
7	250/243	280/271	300/278	288/286	380/378
8	300/293	320/300	530/328	375/369	401/400
9	368/365	401/389	420/410	429/423	440/435
10	417/410	440/418	460/458	455/441	460/455
11	471/459	480/467	493/479	472/471	473/470
12	418/409	458/450	456/448	472/470	472/471
13	300/298	351/345	450/430	419/414	420/418
14	251/239	318/310	410/403	344/338	351/350
COR	alaranjado sem brilho	castanho alaranjado	castanho alaranjado	alaranjado com brilho	alaranjado sem brilho
ESPESSURA (mm)	2,3	2,5	2,3	2,3	2,3
RESISTÊNCIA AO TOQUE	bom	regular	regular	bom	bom

Observando-se a tabela 15, vê-se que a condição de ar 4 tem melhor utilização do forno com a produção de UO_3 adequado para alimentação da unidade de UF_4 . A coloração alaranjada brilhante do UO_3 atesta a boa qualidade do mesmo. A alimentação de ar na temperatura de reação melhora consideravelmente a qualidade do produto e o desempenho do forno, com menor consumo de eletricidade. Observou-se, pela leitura da corrente na resistência do forno, que o consumo de eletricidade cai cerca de 15% em relação à condição 1.

As condições de entrada de ar 2 e 3 não são adequadas. A falta de ar no forno produz óxido de urânio de qualidade inferior devido à auto-redução parcial de UO_3 .

Experimento XII - Teste de aceitação do critério de qualidade adotado no ítem 1 do parágrafo IV-5

Procedimento

1. Usaram-se as partidas de UO_3 consideradas de boa qualidade, separadas e classificadas para serem ensaiadas como carga na unidade de produção de UO_2/UF_4 .

2. Alimentou-se o reator LC da unidade de UF_4 com as tortas escolhidas.

3. Ensaiou-se a escoabilidade das tortas (sem os reagentes para produzir UO_2 e UF_4) nas temperaturas de reação (550 a 700°C).

4. Uma vez que ocorreu o escoamento da torta alimentou-se o reator com NH_3 para a reação de redução.

5. Fez-se a operação da unidade (reator LC) com os parâmetros previamente programados.

Condições operacionais: Unidade de UF_4

Produção esperada: 6 a 10 kg de U/hora

Vazão de NH_3 : 2 a 3 kg de NH_3 /hora

Temperaturas de redução: 550 a 700°C.

Os resultados estão na tabela 16.

Tabela 16 - Resultados dos ensaios de aceitação do critério de qualidade

Relação O/U (média): 2,018

Granulometria de UO_2 na saída da unidade de UF_4 :

Diâmetro menor que 0,84 mm: 20% em massa.

Diâmetro maior que 0,84 mm: 80% em massa.

Produção de UO_2 :

6 kg de UO_2 /h em média.

Total de horas trabalhadas:

67 horas

Produção total de UO_2 armazenada:

400 kg

Conclusão do teste

O critério de qualidade adotado para o controle da produção foi satisfatória e os quatro característicos estabelecidos para a torta de UO_3 na página 87 foram adotadas daqui para frente.

Observações:

. Para se obter uma torta de UO_3 mais adequada passou-se a usar uma espessura de 3 mm em vez de 2 mm, conseguindo-se assim placas de UO_3 mais resistentes.

. Dada a condição de higroscopicidade passou-se a produzir o UO_3 na medida da necessidade pela unidade de UF_4 .

. Preferiu-se armazenar DUA seco e transformá-lo em UO_3 usando o forno de cinta, sempre que necessário.

PRODUÇÃO DE DUA PARA PREPARAÇÃO DE UO_2 CERÂMICO

Estudadas e obtidas as condições operacionais adequadas para a produção contínua de torta de UO_3 apropriada para ser usada como carga da unidade de UF_4 no CEQ, procurou-se otimizá-la, tendo como objetivo a preparação de DUA para a obtenção de UO_2 cerâmico no Centro de Metalurgia Nuclear do IPEN.

O critério de qualidade adotado para controle de produção descrito na página 87 não serve para controle

lar a qualidade de UO_3 para ser usado como carga na unidade de UO_2 cerâmico do CMN. Assim as características de UO_3 consideradas fundamentais para a produção de UO_2/UF_4 , tais como: resistência mecânica, cor, umidade e espessura da torta de UO_3 são prejudicadas para o processo de fabricação de UO_2 cerâmico. Usa-se nesse caso, preferencialmente, DUA seco em pó, de baixa resistência mecânica.

As condições operacionais adequadas para a produção de DUA próprio para a fabricação de UO_2 será estudada tendo como base o trabalho de Bourns, Watson e Yatabe (5,25, 26).

Experimento XIII - Obtenção de torta úmida de DUA para a alimentação da unidade de UO_2 cerâmico do CMN

Condições operacionais

- pH da suspensão de DUA na descarga do reator: 7 a 8
- Temperatura da suspensão de DUA na descarga do reator: 65°C
- Vazão de NH_3 na alimentação do reator: 40 L/min.
- Vazão de nitrato de urânio na alimentação do reator: 1,2 L/min
- Velocidade do tambor do filtro rotativo: 0,055 a 0,072 rpm
- Período do agitador da suspensão na bacia do filtro: 3 segundos
- Temperatura da suspensão de DUA na bacia do filtro: 36°C
- Polpa de DUA na bacia do filtro: 90 gramas de urânio por litro de suspensão de DUA.
- Elemento filtrante: lona de nylon REMAE 1098. Usadas duas camadas de lona.
- Vácuo aplicado na formação e secagem da torta no filtro a

- 24 polegadas na coluna de mercúrio.
- Temperatura no forno = 150 a 200°C.
 - Tempo de residência da torta no forno: 2 horas.

Os resultados estão na tabela 17.

Tabela 17 - Torta úmida de DUA para uso na produção de UO₂ cerâmico.

Produção de DUA:

5 kg de DUA por hora, em média

Total de horas trabalhadas: 80

Produção total de DUA: 400 kg como UO₂.

Espessura da torta úmida: 2 a 3 mm.

Experimento XIV - Estudo da viabilidade de aumento de produção de DUA alterando-se o teor de DUA na polpa (bacia do filtro)

Verificou-se na tabela 13 e figura 25, que existe um limite na produção de DUA, usando o nitrato de urânio diretamente fornecido pela unidade de purificação (concentração máxima: 120 g U/litro).

Existe a possibilidade de aumentar a produção com elevação do teor de DUA na polpa (bacia do filtro).

Esse experimento estudará a viabilidade desse aumento de produção na qualidade e reprodutibilidade do produto.

Procedimento

1. Encheu-se a bacia do filtro até transbordar a suspensão da polpa pelo ladrão.

2. Interrompeu-se o funcionamento do agitador da suspensão de polpa na bacia do filtro.

3. Sedimentou-se a suspensão de DUA na bacia do filtro.

4. O líquido transbordado contendo pequena quantidade de urânio (aproximadamente 1 g de U/litro) foi transportado para o sedimentador do rejeito.

5. Ligou-se o agitador da bacia do filtro na velocidade mínima, para uma pequena agitação na suspensão.

Naturalmente, existem outras maneiras de aumentar a concentração de DUA na suspensão da polpa. Outras alternativas sugeridas foram:

a - concentração da solução de nitrato de urânio da alimentação por evaporação.

b - Instalação de sedimentador à montante do filtro.

A alternativa usada no experimento XIV era a mais conveniente na ocasião, pois era a única que não requeria a

instalação adicional de equipamentos.

Condições operacionais

- O teor de polpa na suspensão de DUA (bacia do filtro): 100 a 200 g de U/litro.
- Outros parâmetros: iguais aos do experimento IX

Os resultados estão na tabela 18.

Tabela 18 - Produção experimental e características de DUA em função do teor de precipitado na suspensão

Teor de DUA na suspensão (bacia-filtro)	Torta de DUA		
	Umidade de DUA na descarga do filtro rotativo	Espessura na descarga do fil- tro	Produção de DUA na descarga do filtro
(g de U/L)	(%)	(mm)	(kg de U/h)
100	52	3,0	8,0
150	51	4,3	11,7
160	51	4,8	13,0
180	49	5,2	14,7
200	48	5,8	16,8

Observações:

a - Os valores na tabela 18 são médias.

b - Constataram-se as seguintes anomalias à medida que aumentava o teor de polpa na suspensão de DUA na bacia: a espessura da torta não era constante e a produção oscilava em kg de U/L.

c - Observou-se desigualdade na resistência mecânica da torta de DUA seca e sua densidade solta não foi tão constante como em outros experimentos. Determinou-se a densidade solta na própria unidade, usando-se proveta e balança.

C A P Í T U L O V

PROGRAMAÇÃO DA PRODUÇÃO DE DUA - CONTROLE DOS PARÂMETROS

1. CÁLCULO DE VAZÃO DE NITRATO DE URANILO

Usa-se a relação 1 da página 62 para o cálculo de vazão de nitrato de urânio.

Tomando-se como base de cálculo uma produção de 10 kg de urânio por hora tem-se: vazão de nitrato de urânio igual a 1,67 litros por minuto. Controla-se esse parâmetro usando a válvula V2 com auxílio do medidor de vazão V3 (figura 2).

2. CÁLCULO DE VAZÃO DE AMÔNIA

Usa-se a relação 2 da página 62 para o cálculo de vazão de amônia.

Tomar-se como base de cálculos: a) - pH final de

precipitação: >9, b) - Produção de 10 kg de urânio por hora. Assim, tem-se: 57,6 litros por minuto, à pressão de 1 atm. Controla-se esse parâmetro usando a válvula V2 com auxílio de medidor de vazão 13 (figura 2).

3. TEMPERATURA DE PRECIPITAÇÃO

Escolheu-se 60°C como a temperatura de precipitação do DUA.

Baseou-se essa escolha nos resultados do experimento IX da página 94 e tabela 12 página 95. O controle manual com auxílio da válvula VIII (figura 2) e termômetro manual.

4. pH DE PRECIPITAÇÃO

Escolheu-se como valor do pH da suspensão de DUA na saída do reator de precipitação maior ou igual a 9, baseando-se no experimento VIII página 92 e tabela 11 página 93. Seu controle é feito pela vazão de NH_3 (item b). Neste pH forma-se tampão facilitando a obtenção de DUA de qualidade reprodutível.

5. CONDIÇÃO DE VÁCUO NA FORMAÇÃO E ENXUGAMENTO DA TORTA NO FILTRO

Adota-se o valor máximo, isto é, o valor de vácuo aplicado igual a 22 polegadas na coluna de mercúrio. Baseou-se essa escolha pelo experimento II e tabela 5.

6. PERÍODO DO AGITADOR DA SUSPENSÃO DE DUA NA BACIA DO FILTRO

Escolheu-se um período de agitador da suspensão de DUA na bacia do filtro igual a 3 segundos, pois observou-se nos experimentos que essa agitação é suficiente para manter a polpa de DUA na suspensão.

7. CÁLCULO DA VELOCIDADE DE TAMBOR DO FILTRO ROTATIVO

Adotando-se como base de cálculo para a produção de 10 kg de urânio por hora, faz-se o cálculo de velocidade de tambor do filtro rotativo usando a relação 5 e os resultados do experimento III tabulados na página 80.

Da relação 5 página 81 e tomando como base de cálculo a produção de 10 kg de urânio por hora, obtem-se:

$$V \cdot E = 0,033 \text{ cm/minuto (relação 6)}$$

Onde:

V = Velocidade de tambor de filtro rotativo, em rpm

E = Espessura da torta na descarga do filtro, em mm

Da tabela 6 página 80 , obtem-se:

$$\frac{4,8 - 3,0}{4,8 - E} = \frac{0,072 - 0,090}{0,072 - V} \text{ (relação 7)}$$

Resolvendo a relação 6 e 7 tem-se:

E = 4,6 mm e V = 0,0716 rpm. Esta é a velocidade de tambor de filtro rotativo.

8. ELEMENTO FILTRANTE

Utilizou-se uma sã lona de nylon REMAE 1098, pois sã nessa condiçãõ pode-se produzir 10 kg de urânio por hora (Experimento X página 96 e tabela 13 página 97).

9. PERFIL DE TEMPERATURA NO FORNO DE CINTA ROLANTE

Adota-se a condiçãõ de ar 1 da tabela 15 para o perfil de temperatura no forno de cinta rolante.

A Condiçãõ de Ar 4 da tabela 15 é a melhor para obtençãõ de um produto de qualidade superior para a alimentaçãõ da unidade de UF_4 , porém, atualmente, nãõ se dispõee de instalaçãõ de ar comprimido para alimentaçãõ no forno.

Pontos de controle de parâmetros:

A tomada de temperatura localiza-se no ponto 0,75 m da entrada da torta no forno. O controle a $50^{\circ}C$ é feito pelo regulador (1) (figura 21).

A tomada de temperatura localiza-se no ponto 2,63 m da entrada da torta no forno. O controle a $150^{\circ}C$ é feito pelo regulador (2) (figura 21, página 48).

Temperatura indicada no painel de controle para a junta de termopar localizada a 4,79 metros de entrada da torta no forno: $450^{\circ}C$. Para melhor entender o controle de temperatura na zona de decomposiçãõ térmica veja-se a caixa de controle (3) da figura 21.

10. TEMPO DE RESIDÊNCIA DO FORNO

Como o comprimento do forno é fixo e igual a 6,17 metros, o tempo de residência da torta no forno depende da velocidade da cinta móvel, a qual é cinco vezes a velocidade tangencial do tambor.

Calculando-se, obtem-se 2,50 horas.

O controle do tempo de residência é feita mudando a rotação do motor que aciona a cinta.

11. ALTURA DA CAMADA DA TORTA NA CINTA

Eis o resumo de todos os parâmetros.

- Vazão de nitrato de urânio: 1,67 litros/min
- Vazão de amônia: 57,6 litros/min
- Temperatura de operação: 20°C
- Temperatura de precipitação de DUA: 60°C
- pH de precipitação: ≥ 9
- Vácuo aplicado: 22 polegadas na coluna de mercúrio
- Período de agitador: 3 segundos
- Velocidade de tambor de filtro rotativo: 0,0717 rpm

- 1 sô lona de nylon REMAE 1098 como elemento filtrante
- Tempo de residência do forno: 2,50 horas
- Altura da camada da torta na cinta: 2,3 cm

12. PONTOS DE AMOSTRAGEM PARA ANÁLISES. CONTROLE DE QUALIDADE.

- Na alimentação de nitrato de urânio

- Concentração de nitrato de urânio, em g de urânio por litro.

- Acidez livre, em molaridade de HNO_3 .

- Teor de impurezas, em ppm.

- Na alimentação de amônia

- Teor de amônia no cilindro de NH_3 .

- Teor de impurezas do NH_3 .

- Na descarga do filtro

- Umidade da torta de DUA

- Espessura da torta

- Produção de torta úmida em Kg de urânio por hora.

- Na descarga do filtrado

- Concentração de urânio no filtrado (mg/litro)
- Alcalinidade (como NH_4OH , grama/litro)
- Teor de NO_3^- em grama por litro

- Na descarga da torta de UO_3 no forno

- Relação O/U e presença de urânio (IV)
- Espessura da torta em milímetros
- Umidade da torta
- Produção de UO_3 em kg de urânio por hora
- Cor e aspecto
- Resistência mecânica (grafita HB - 0,5 mm)
- Teor de pó (< 2 mm)
- Teor de urânio em kg de urânio por kg de torta
- Teor de impurezas em mg por kg de urânio

13. PRODUÇÃO DE DUA SECO COMO ALTERNATIVA PARA A OPERAÇÃO DA UNIDADE PILOTO DE UO_3

A produção de UF_4 a partir do concentrado de urânio, no momento, é feita descontinuadamente, em duas etapas:

- a - Produção de DUA seco a partir do concentrado de urânio ;
- b - Produção de UO_3 para alimentar a unidade de UF_4 .

A razão principal para produção de DUA, em vez de UO_3 , reside no fato de este ser higroscópico.

Condições operacionais

Temperatura I : 50°C

Temperatura II : 150°C

Temperatura III : 200°C

Tempo de residência do forno: 2,5 horas

Outros parâmetros: iguais aos da produção de UO₃

O controle de qualidade é o mesmo do item anterior, porém acrescentou-se a caracterização termogravimétrica do DUA, por ser útil na operação quando da produção de UO₃.

14. MATÉRIAS PRIMAS, INSUMOS E UTILIDADES

Base de cálculo: produção 10 kg de urânio/hora.

Campanha = 12 dias consecutivos, 24 horas por dia.

- Volume de nitrato de urânio (100 gramas de urânio por litro): 30000 litros

- Massa NH₃: 720 kg de NH₃, correspondendo a 18 cilindros de 40 kg cada.

- Consumo de vapor de água: 300 kg de vapor de 6 kg/cm² (150°C).

- Consumo de eletricidade em Kwh.

a) Zona de decomposição térmica de DUA no forno com 70% do tempo ligado: 32 Kwh.

b) Zona de secagem do forno:

Com 17,5% do tempo ligado: 4 Kwh

c) Potência total: 56 Kw

d) Consumo de eletricidade: 36 Kwh

- e) Consumo de óleo diesel: 300 litros
- f) Consumo de água industrial: 150000 litros
- g) Tambor metálico (ferro), capacidade 36 kg:
80 unidades.

15. PESSOAL

Operador de nível I: 3 em 24 horas

Operador de nível II: 3 em 24 horas

16. PRODUÇÃO ACUMULADA DE DUA/UO₃

Dos meados até o fim de 1980 produziram-se cerca de 10 toneladas de UO₃ na unidade de CEQ. Converteu-se esse óxido em UO₂ na unidade de redução do CMN e o produto foi aceito como satisfatório.

Uma das conclusões de maior importância é o fato de a unidade de DUA/UO₃ dificilmente alcançar a produção de 13,5 kg de urânio por hora. A média alcançada foi de 10 kg de urânio por hora.

Uma análise representativa das principais impurezas de UO₃ assim preparado está na tabela nº 19.

Tabela 19 - Análise espectroquímica representativa das principais impurezas numa torta de UO_3

Elementos	UO_3	
	Campanha nº	
	115 ($\mu g/U$)	119 ($\mu g/U$)
Si	68	<18
Al	<20	<10
Mn	< 4	< 4
Mg	< 2	< 2
Pb	< 1	< 1
Sn	< 1	< 1
Bi	< 1	< 1
V	< 3	< 3
Cu	< 2	< 2
Cd	0,1	< 0,1
B	0,2	0,6
P	<25	<25
Fe	<14	<14
Cr	< 5	< 5
Ni	< 2	< 2
Mo	< 3	< 3
Zn	<10	<10

Constatou-se, durante as diversas campanhas de produção e continuidade de DUA/ UO_3 , a precariedade dos sistemas secundários de insumos (caldeiras, água desmineralizada, suprimento de energia elétrica, sistema de vácuo e ar comprimido).

Constatou-se que operadores razoavelmente treinados no próprio CEQ estão habilitados a fazer a operação da unidade, pois o processo de produção de DUA/ UO_3 é relativamente simples.

Uma vez resolvido o problema da infraestrutura, pode-se concluir que está totalmente dominada a tecnologia de produção de DUA/ UO_3 no IPEN. Com a coleta de dados em poder do IPEN é perfeitamente válido levantar a hipótese de que se está em condições de fazer o projeto para uma unidade de porte industrial.

Cabe mencionar aqui que foi assinado um convênio entre Secretaria da Ciência, Cultura e Tecnologia do Estado de São Paulo e o Ministério das Minas e Energia, para a execução do "Projeto Conversão do Concentrado de urânio a hexafluoreto de urânio". Este convênio possibilitará ao IPEN instalar e melhorar os serviços de água desmineralizada, vácuo, ar comprimido, cabine de força e fornecimento de vapor a todos os setores do Centro de Engenharia Química.

C A P Í T U L O V I

CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES

1. CONCLUSÕES

As condições operacionais recomendáveis são:

- Concentração da solução de nitrato de urânio no tanque de alimentação: 100 g de urânio/litro. Se possível, trabalhar com valores acima de 100 g de urânio por litro.

- pH da suspensão de DUA na descarga do reator de precipitação: >8, de preferência, >9.

- Temperatura da suspensão na descarga do reator: 60 - 85°C.

- Tempo de residência da suspensão de DUA no reator: 40 minutos; de preferência maior que 4 horas para DUA/ UO_3 destinado à preparação de UO_2/UF_4 .

- Excesso de NH_3 sobre vazão estequiométrica na

- Velocidade do agitador de suspensão de DUA no reator: 400 rpm.
- Velocidade do tambor do filtro rotativo: 0,0720 a 0,0900 rpm.
- Período do agitador da suspensão de DUA na bacia do filtro: 3 segundos.
- Temperatura da suspensão de DUA na bacia do filtro na zona de formação de torta: 30 - 60°C.
- pH da suspensão de DUA na bacia do filtro: > 9.
- Teor de DUA na suspensão na bacia do filtro na zona de formação de torta: 120 gramas de urânio por litro para produção de UO_3 destinado à fabricação de UF_4 e maior possível (ordem de 200 gramas por litro) para a preparação de DUA/ UO_3 destinado à fabricação de UO_2 de grau cerâmico.
- Tempo de residência da suspensão de DUA na bacia do filtro: maior possível para preparação de DUA/ UO_3 destinado à produção de UF_4 e menor possível (ordem de 40 minutos) para a preparação de DUA/ UO_3 destinado à produção de UO_2 grau cerâmico.
- 1 só lona de nylon REMAE 1098 como elemento filtrante.
- Tempo de uso de elemento filtrante: até dois meses consecutivos de operação.

~~- Material do destacador de torta: lâmina de te~~

- Condição de vácuo aplicado nos gomos que constituem o tambor do filtro na zona de formação e enxugamento da torta: 15 - 24 polegadas na coluna de mercúrio.

- Nível do filtrado no vaso separador de filtrado e vapor: 35 cm do fundo do vaso.

- Temperatura do filtrado no vaso separador: 20°C.

- Imersão do elemento filtrante na zona de formação da torta: o suficiente para ficarem totalmente imersos dois gomos de tambor de filtro da zona de formação de torta.

- Pressão do ar no gomo (zona de destacamento de torta): 0,2 Kg/cm² manométrica.

- Tempo de residência da torta no forno: 4 horas.

- Perfil da temperatura no forno: situação 4 da tabela 15 página 105 .

- Umidade da torta de DUA na entrada do forno: 52%, isto é, o menos úmido possível.

- Distribuição da torta na cinta do forno: deve ocupar toda área disponível da cinta de modo o mais uniforme possível.

- Altura da torça na cinta: 3 cm.

- Espessura da torta na entrada do forno: 4 mm.

- Vazão de ar e sua temperatura na zona de decomposição térmica do forno: 3 m³ por hora e 400°C, respectivamente.

2. RECOMENDAÇÕES

a) - Para produção de UO_3 para alimentar a unidade de UF_4 a torta deve apresentar alta resistência mecânica para resistir aos atritos no interior da unidade de UF_4 . Neste caso o tempo de residência durante a precipitação é muito importante para alcançar esse objetivo. Constatou-se que quanto maior o tempo de residência de DUA no reator melhor a resistência da torta na descarga do forno. Assim, recomenda-se um reator com maior volume, da ordem de 500 litros. A agitação da suspensão tem influência na qualidade mecânica do produto final. Assim, recomenda-se uma polia de redução de velocidade, tal que fique na mínima para impedir a sedimentação da suspensão no reator. Quanto menor for a agitação mais resistente o produto final.

b) - Agitação da suspensão de DUA com ar comprimido, em substituição ao agitador mecânico que pode ocasionar a contaminação do produto com óleo ou limalha de metal, é uma idéia a ser posta em prática. Assim, recomenda-se a ligação do reator de precipitação com o sistema de ar comprimido.

c) - A produção da torta no filtro aumenta com o teor de DUA da suspensão na zona de formação da torta (tabela 18). Assim, é recomendável a instalação de decantador contínuo à jusante do reator para ser utilizado principalmente na produção de DUA/UO_3 como carga da unidade de UO_2 de grau cerâmico. Neste caso a resistência mecânica da torta seca não é a mais importante, mas sim outras características que convergem para o dióxido cerâmico destinado à produção de pasti-

sentar como pó (e não placas), o que é desejável. Para a produção de UO_3 em placas para a alimentação da unidade de UO_2 , não se justifica a instalação de decantador contínuo tendo como fim aumentar o teor de urânio na suspensão de DUA na bacia do filtro; neste caso a torta obtida além de ter espessura acima do especificado (4 mm) não tem reprodutibilidade alguma.

d) - A instalação de decantador contínuo facilita a medida contínua de pH (com phmetro) pois o eletrodo mergulhado no sobrenadante (ausência de partículas) permanecerá relativamente limpo e ativo. Isso não acontece quando o eletrodo é colocado diretamente no reator, havendo a formação de uma película de diuranato fortemente incrustado no vidro.

e) - A torta de DUA na descarga do filtro é relativamente úmida (50% de umidade). Assim recomenda-se o aumento de área de filtração.

f) - A válvula de controle de vácuo na zona de formação e enxugamento da torta tem que ser alternada no sentido de diminuir a zona neutra para um gomo, pois constatou-se que a torta volta para a suspensão, diminuindo a espessura do material aderido ao meio filtrante e em consequência cai a produção. Não ocorre também compactação da torta, o que diminui sua resistência mecânica. Sugere-se aqui a aplicação de vácuo nos gomos posteriores, com o que haveria uma espécie de lavagem da torta com suspensão diluída de partículas menores de DUA (ver figura 16 página 45), pois o teor de urânio diminui à medida que se aproxima da superfície. Isso ocorre porque uma agitação vigorosa demais da suspensão na bacia pode destruir a torta aderida no elemento filtrante; assim é

obrigado a manter a velocidade do agitador tal que o período de oscilação do agitador seja menor que 3 segundos.

g) - O gerador de vácuo é comum para zona de formação e enxugamento da torta. A instalação de duas bombas de vácuo seria interessante e aumentaria a flexibilidade do processo. A dificuldade toda para operação da unidade justifica-se devido a inexistência de sistema de vácuo confiável.

h) - O tambor rotativo do filtro existente tem forma cilíndrica circular, porém recomenda-se o tambor rotativo de forma cilíndrica dodecaédrica. Constatou-se que a torta com espessura maior sofre uma compactação desigual. Isso acarreta tensão desigual no forno, abalando a estrutura da torta com diminuição de sua resistência mecânica. Se o diâmetro do tambor rotativo de seção circular for relativamente grande haverá diminuição do efeito da compactação desigual.

i) - Como já descrito, o forno atualmente em uso na usina do CEQ faz a secagem do DUA e sua calcinação a UO_3 num só ambiente, o que não é recomendável. Recomenda-se a secagem de DUA num forno e a calcinação da torta a UO_3 num segundo forno, isto é, em dois estágios. Isto traria várias vantagens sobre o atual sistema. Tanto secagem como a calcinação de torta deve ser feita com ar descontaminado e aquecido externamente à temperatura adequada, o que facilitaria o controle de vazão e temperatura das duas operações sequenciais com aumento brando de temperatura da torta desde da entrada até saída, evitando quebra devido choque térmico.

j) - O tempo de residência da torta no forno de

ve ser aumentado consideravelmente, pelo menos para o dobro, o que melhoraria a flexibilidade e reprodutibilidade do produto.

k) - Recomenda-se, ainda, para a unidade do CEQ a instalação da máquina para pastilhamento dos pós formados no forno de secagem do DUA e produção de UO_3 para melhor aproveitamento dos finos.

l) - O consumo de vapor no sistema é muito pequeno (1 Kg de vapor por hora). Recomenda-se então a instalação de um aquecedor elétrico de água industrial, pois o uso de água aquecida para conservar a temperatura da suspensão de DUA no reator de precipitação embora seja mais cara, é mais flexível, pois não haveria necessidade de interromper a operação quando falta o vapor.

m) - Não há grandes problemas concernentes à qualificação dos operadores desta unidade, uma vez que o processo bem esquematizado e as operações bem programadas, com orientação dos engenheiros, tem demonstrado ser fácil sua realização.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. AINSCOUGH, J.B. & OSFIELD, B.W. Effect of ammonium diuranate precipitation conditions on the characteristics and sintering behaviour of uranium dioxide. J. Appl. Chem., 12:418-24, 1962.
2. ANDERSON, J.S.; HARPER, E.A.; MOORBATH, S.; ROBERTS, L.E.J. The properties and microstructures of uranium dioxide; their dependence upon the mode of preparation. Harwell, UKAEA, 1954. (AERC-C/R-886).
3. ARAUJO, J.A. de. Estudo da precipitação contínua de diuranato de amônio para produção de UO_2 cerâmico. São Paulo, 1971. (Dissertação de Mestrado, Escola Politécnica, USP).
4. BELLE, J. Properties of uranium dioxide. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceed. of the 2 nd. international conference on... held in Geneve, 1-13 September, 1958. V.6: basic meta'lurgy and fabrication fuels. 1958. p.569-89.
5. BOURNS, W.T. & WATSON, L.C. Preparation of uranium dioxide for use in ceramic fuels. Part 1. Batch preparation of ammonium diuranate. Chalk River, Ontario, Canada, Atomic Energy of Canada, 1958. (AECL-757).
6. BRIL, S. Óxidos cerâmicos. Seleta química, 20:19-28, 1961.
7. CHALDER, G.H.; BRIGHT, N.F.H.; PATERSON, D.L.; WATSON, L.C. The fabrication and properties of uranium dioxide fuel.

In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the 2nd international conference..., held in Geneva, 1-13 September, 1958, V.6: Basic metallurgy and fabrication of fuels. 1958. p.590-604.

8. CORDFUNKE, E.H.P. & GIESSEN, A.A. Texture and reactivity of uranium oxides. (Separata 3552) 1954.
9. CURTISS, H.M. Ammonium diuranate filterability. Richland, Wash., General Electric, Hanford Atomic Products Operation, 1965. (RL-SEP-924).
10. CUSSIOL FILHO, A. & ABRÃO, A. Tecnologia para a preparação de tetrafluoreto de urânio por fluoridretação de UO_2 obtido de diuranato de amônio. São Paulo, Instituto de Energia Atomica, 1975. (IEA-PUB-379).
11. DEPTULA, A. A study of composition of ammonium uranates. Nukleonika, 7(4):265-75, 1962.
12. FRANÇA JR. J.M. Unidade piloto de tetrafluoreto de urânio pelo processo de "leito móvel" em operação no IEA. São Paulo, Instituto de Energia Atomica, 1975. (IEA-PUB-381).
13. FRANÇA JR, J.M. Usina piloto de purificação de urânio pelo processo de colunas pulsadas em operação no IEA. São Paulo, Instituto de Energia Atomica, 1972. (IEA-PUB-277).
14. GENTIL, P.S. & COLLOPY, T.S. Ammonia precipitation and filtration studies from uranyl nitrate solution. apud Nucl.Sci.Abstr., 15:882, 1961.
15. GORDON, L.; SALUTSKY, M.L.; WILLIARD, H.M. Precipitation from homogeneous solution. London, John Wiley, 1959.
16. HARRINGTON, C.D. & RUEHLE, A.E. Uranium Production technology. Princeton, New Jersey, Van Nostrand, 1959.
17. HOLDER, J, & BRAUN, C. Characterization de poudres uraniferes en vue de la precipitation de bioxyde fritttable. In COMITATO NAZIONALE ENERGIA NUCLEARE. Fabbricazione di

elemente di combustibile di tipo ceramico per reattori di potenza, VIII Congresso Nucleare, Roma, 19-20 Giugno, 1963. p. 307-21.

18. IPPOLITOVA, E.A. & PECHUROVA, N.I. Investigation of the reactions process between uranyl nitrate and ammonium hydroxide. Argonne III. Argonne National Lab., 1961. (ANL-33).
19. KRUMHOLZ, P. & BRIL, S. Estudo das condições de precipitação e filtrabilidade do diuranato de amônio obtido por meio de amoníaco gasoso. São Paulo, Laboratório de Pesquisas de Orquima, 1959. (LPO-6).
20. LISTER, B.A.J. & GILLES, G.M. The conversion of uranyl nitrate to UO_2 and UF_4 . Prog. Nucl. Ener. Serie III: Proc. Chem., 1:19-35, 1958.
21. NISHIOKA, I.; BUENO, R.P.A.; CAPOCHI, J.D.T. Nota preliminar sobre a caracterização de UO_2 para a fabricação de elementos combustíveis. Metalurgia. Rvta. Ass. Bras. Metais, 25(143):733-9, 1969. (IEA-PUB-194).
22. RIBAS, A.G.S. Tecnologia de preparação de UO_2 apropriado para conversão a UF_4 . São Paulo, 1973. (Dissertação de mestrado, Escola Politécnica, USP).
23. RUNNALIS, O.J.C. UO_2 fabrication and properties. Nucleonics, 17(5): 104-11, 1959.
24. VUILLEMEY, R. Contribution a l'etude chimique et technologique de la precipitation de diuranate d'ammonium. Saclay, France, Centre d'Etudes Nucleaires de Saclay), 1962. (CEA-R-2204).
25. WATSON, L.C. Production of uranium dioxide for ceramic fuels Oak Ridge, Tenn. AEC, 1958. p.384-40. (TID-7546).
26. YATABE, E. & WATSON, L.C. Preparation of UO_2 for use in nuclear reactor fuel elements. Continuous precipitation of ADU. Chalk River, Ontario, Canada, Atomic Energy of Canada, 1958. (AECL-757).