

OBTENÇÃO DO COMPOSTO UAl_x POR REDUÇÃO-DESTILAÇÃO DO UF_4 COM ALUMÍNIO

Waldir Custódio de Lima, Paulo Iris Ferreira e Paulo Ernesto de O. Lainetti
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN/CNEN-SP
Travessa R, n 400. Cidade Universitária - São Paulo - SP CEP 05508-900

RESUMO

Neste trabalho descrevem-se os fundamentos teóricos, o procedimento experimental e os resultados obtidos com o método de redução-destilação do UF_4 com Al. O objetivo do trabalho é fornecer subsídios para desenvolver um equipamento e o processo, adequados à preparação do composto UAl_x , utilizado na forma de dispersões em Al para obtenção do ^{99}Mo por meio de fissão.

INTRODUÇÃO

Uma das mais significativas aplicações da energia nuclear é o uso de radioisótopos com finalidades medicinais, os quais administrados na forma de compostos de elevada afinidade pelo órgão de interesse, permitem obter externamente uma imagem e diagnosticar, por exemplo, um tumor maligno. O tecnécio ^{99m}Tc , com meia-vida de 6,02 horas, tem uma extraordinária importância neste campo e pode ser obtido do ^{99}Mo , cuja meia-vida é de 66,02 horas. O método, no qual o ^{99}Mo é obtido pela fissão do ^{235}U , constitui a principal rota de produção do tecnécio.

No método de fissão, um alvo na forma de miniplaca e constituído de uma dispersão de UAl_x em alumínio, com enriquecimento de urânio entre 90 e 93% de ^{235}U , é irradiado em fluxos neutrônicos de 5×10^{13} a 1×10^{14} n/s.cm² por períodos de 5 a 10 dias. O método tradicional de obtenção do composto UAl_x é a fusão de urânio e alumínio metálicos, sendo de relevante importância as dificuldades de obtenção do metal urânio com estes níveis de enriquecimento, particularmente no tocante ao rendimento do processo.

Entretanto, pode-se contornar estas dificuldades utilizando-se o composto intermediário da produção do urânio metálico, o UF_4 , para produzir o UAl_x . O método consiste em reagir o composto UF_4 com Al metálico em excesso, em temperaturas variando entre 900 a 1200 °C e em atmosfera controlada de gás inerte ou sob vácuo de 10^{-2} a 10^{-4} mm Hg. Os produtos obtidos nesta primeira reação são o composto AlF_3 e o intermetálico constituído de U e Al. No mesmo sistema e com as mesmas condições de operação, realiza-se uma operação de destilação fracionada para sublimação dos fluoretos de alumínio. Com isso, obtém-se a purificação do material. Nesta etapa podem ocorrer tanto a sublimação do AlF_3 quanto a formação do AlF , que é um composto gasoso só existente a temperaturas superiores a 955 °C [1]. A sua formação ocorre pela reação do AlF_3 com o Al em excesso contido na liga U-Al. O AlF desta segunda reação é arrastado pelo argônio, ou pelo sistema de vácuo, e em seguida, é condensado na forma de AlF_3 sólido mais Al líquido, em regiões de temperatura mais baixa, entre 700 a 800 °C. Assim, o produto final da operação redução-destilação é somente o composto puro UAl_x .

O trabalho descreve os fundamentos teóricos para a preparação do composto UAl_x , testes experimentais preliminares para definir um equipamento adequado à execução do processo de redução-destilação e aplicação de técnicas de metalurgia do pó para preparação da carga. Finalmente, são apresentados alguns resultados de análises visando caracterizar os compostos obtidos.

O método em desenvolvimento de redução-destilação baseia-se nos mesmos fundamentos teóricos do método de redução direta, desenvolvido por Y. Seki e N. Mitamura, descrito em [2, 3]. A

diferença fundamental do método descrito neste trabalho e o desses autores é a técnica utilizada para a preparação da liga de U-Al. O método desenvolvido pelos autores citados utiliza técnicas de fundição para obtenção da liga U-Al, onde o pó de UF_4 é misturado com "criolita" e adicionado a alumínio líquido contido em um cadinho de grafite, onde ocorre a reação de redução. Após a reação a liga é vazada, resfriada e separada mecanicamente da escória. Posteriormente o lingote é usinado e cominuído. Os produtos finais do método são pó da liga U-Al e escória. Já o método de redução-destilação aqui descrito utiliza técnicas de metalurgia do pó para a preparação da liga U-Al, onde o pó de UF_4 é homogeneizado com pó de Al, compactado na forma de pastilhas, levado para a operação de redução-destilação em uma retorta de aço refratário, resfriado e cominuído. Os produtos finais do método são pó puro da liga U-Al e material depositado em regiões frias dos equipamentos, constituído de alumínio e AlF_3 .

Acredita-se que, com a aplicação inovadora das técnicas de metalurgia do pó, para realização do método de redução-destilação, as vantagens serão mantidas sobre o método tradicional de fusão de urânio e alumínio metálicos, apresentando ainda vantagens adicionais sobre o método de redução direta. Os benefícios obtidos com a aplicação do método em desenvolvimento, em relação à fusão do urânio e do alumínio metálicos são os seguintes:

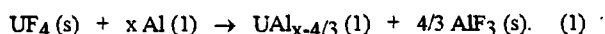
- 1) eliminação da necessidade de obtenção do urânio metálico, evitando-se, assim, a formação de resíduos que necessitam de recuperação;
 - 2) simplificação do processamento, pela redução do número de etapas;
 - 3) diminuição da probabilidade de contaminação do material no processamento (Ex.: C, Mg, óxidos, etc.).
- Com relação ao método de redução direta, poderiam ser apontados benefícios adicionais, como:
- 4) aumento da eficiência da reação de redução, pelo contato íntimo entre os reagentes, proporcionado pela compactação;
 - 5) minimização das perdas de processo;
 - 6) eliminação de subprodutos como a escória, que é removida mecanicamente.

FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Os dois principais critérios termodinâmicos para estimar a possível ocorrência e a direção de uma reação metalúrgica são a variação de energia livre (ΔG) e a constante de equilíbrio (K). Além disso, certas propriedades termoquímicas, como a pressão de vapor e atividade, são da maior importância no desempenho de determinados processos de extração e refino.

Segundo Y. Seki [2], a redução do UF_4 com o alumínio em

excesso produz a liga U-Al pela reação (1):



A faixa de temperaturas adequadas para a reação de redução está entre 900 e 1.200 °C. A Tabela 1 mostra os valores da energia livre de formação dos compostos envolvidos que conduzem a reação (1), nestas condições.

Tabela 1 Energia Livre de Formação (cal/mol) do UF₄ e do AlF₃

Composto	$\Delta G_T^\circ = A + B T$	ΔG_{900}°	ΔG_{1000}°	ΔG_{1100}°	ΔG_{1200}°
AlF ₃	- 357.000 + 56 T	- 291.000	- 285.700	- 280.100	- 274.500
UF ₄	- 441.000 + 68 T	- 361.200	- 354.400	- 347.600	- 340.800

Os valores da Tabela 2 são resultantes das energias livre de reação de redução (1), e as suas respectivas constantes de equilíbrio, obtidas conforme a relação abaixo:

$$\Delta G_1^\circ = - R T \ln k_1 = - 4,575 T \log K_1.$$

Tabela 2 Energia Livre de Reação e Constante de Equilíbrio

Temp °C	ΔG_1° (cal/mol)	k_1
900	- 27.200	1,16x10 ⁵
1000	- 26.500	3,51x10 ⁴
1100	- 25.800	1,27x10 ⁴
1200	- 25.200	5,44x10 ³

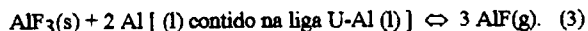
Pelos resultados acima, verifica-se que, na faixa de temperaturas considerada, a reação é termodinamicamente viável, deslocando-se facilmente para a direita. Dessa forma, efetua-se a redução do UF₄ pelo alumínio, e obtém-se o composto UAl_x.

Segundo W. P. Witt [1], o Al reage com AlF₃ para formar o AlF, em vácuo de 10⁻⁴ a 10⁻² mm Hg, a temperaturas superiores a 955 °C, conforme a reação (2):



Esta reação é conhecida como reação desproporcional e é utilizada na recuperação a seco de ligas de Al e do Al com impurezas [4, 5, 6]. O produto da reação, o AlF, é um gás que decompõe-se posteriormente em AlF₃ + Al em regiões do equipamento com temperaturas entre 700 e 800 °C.

Apos a reação de redução do UF₄, o alumínio em excesso contido na liga U-Al contribui para a reação (2). Então é possível sugerir que a destilação do material ocorra pela reação do AlF₃ sólido e do Al em excesso contido na liga, com formação do AlF, segundo a reação (3):



Dentre os compostos da reação (3), o AlF₃, por ser sólido, possui a atividade igual a 1 (um). Portanto, pode-se representar a energia livre da reação ΔG_2° da seguinte forma:

$$\Delta G_2^\circ = - 4,575 T \log P_{AlF}^3 / a_{Al}^2 = - 4,575 T \log K_2,$$

onde,
 P_{AlF} : Pressão parcial do AlF;
 a_{Al} : Atividade do Al contido na liga U-Al;
 K_2 : Constante de equilíbrio da reação (3).

Por outro lado, segundo Y. Seki [2], a energia livre de reação ΔG_2° pode ser expressa da seguinte forma:

$$\Delta G_2^\circ = 154.680 - 101,37 T = - 4,575 T \log K_2 \Rightarrow$$

$$\Rightarrow \log K_2 = 22,157 - 33,810 / T.$$

A constante de equilíbrio K_2 é obtida substituindo-se as temperaturas correspondentes. Assim, obtém-se os valores da Tabela 3.

Como não se tem uma definição do valor da atividade do Al contido na liga U-Al, Y. Seki [2] sugere os valores extremos de uma faixa provável de atividades, de $a = 1$ ou $a = 0,5$, a partir dos quais

pode-se prever a pressão parcial do AlF na reação (3), conforme a Tabela 4.

Tabela 3 Constantes de equilíbrio da reação de sublimação (3)

Temp. °C	K_2
900	2,15x10 ⁻⁷
1000	3,96x10 ⁻⁵
1100	3,40x10 ⁻³
1200	1,60x10 ⁻¹

Tabela 4 Pressão parcial (mm Hg), do AlF na reação (3)

Temp. °C	P_{AlF} (no Caso $a = 1$)	P_{AlF} (no Caso $a = 0,5$)
900	4,56	2,87
1000	25,95	16,32
1100	114,23	71,92
1200	412,91	259,92

Pelos resultados acima, verifica-se que a reação (3), de formação do AlF, desloca-se para a direita com o aumento da temperatura, favorecendo significativamente a purificação do composto. Devido as altas pressões de vapor do AlF, nesta faixa de temperaturas, pode-se prever que a destilação do material ocorra pela formação do AlF e o seu arraste subsequente em um fluxo de gás inerte ou sob vácuo.

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

O equipamento empregado para preparação do UAl_x consistiu em uma retorta de aço refratário, colocada em um forno resistivo para operação em temperaturas de até 1200 °C. A retorta possui um sistema que permite a utilização de atmosfera de gás inerte ou operação com vácuo da ordem de 10⁻² mm Hg. O sistema pode ser observado na Figura 1.

As matérias primas utilizadas são: pó de UF₄ de procedência do MCR- IPEN obtido por via úmida; e pó de Al-1100 atomizado de procedência da ALCOA-SP. Os pós são secos, pesados na composição adequada, homogeneizados, compactados na forma de pastilhas, pesados e levados para redução-destilação dentro da retorta. Após o término da operação de redução-destilação, as pastilhas são novamente pesadas, para controle do rendimento da operação. Nesta etapa, a pastilha de UAl_x é frágil e apresenta alta porosidade. A próxima etapa foi a cominuição em almofariz de agata, dentro de uma caixa-de-luvas, com atmosfera controlada de argônio. Finalmente, foi realizado uma classificação granulométrica por peneiramento, obtendo-se o tamanho das partículas do pó de UAl_x na faixa de 44 a 88 µm, conforme o tamanho das partículas características de UAl₃ utilizado em combustíveis de reatores tipo MTR [7]. A seqüência operacional do processo é apresentada na Figura 2.

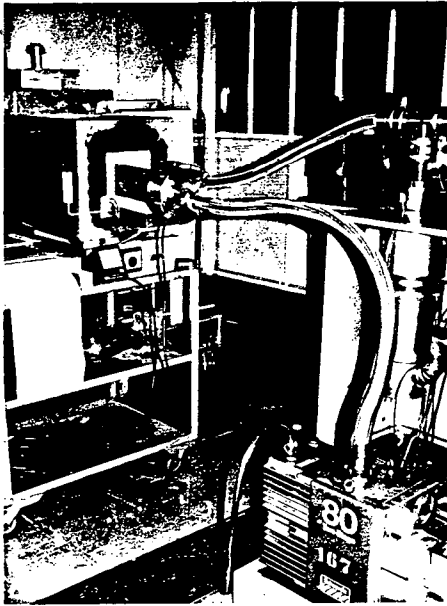


Figura 1 Equipamento de redução-distilação, podendo ser observados a retorta e o sistema de vácuo

Até o momento, foi testada a operacionalidade do equipamento e variados alguns parâmetros do processo, conforme abaixo relacionado:

- 1) a composição da carga inicial de UF_4 com 37, 34, 31 e 27 % em peso de Al;
- 2) a influência do emprego de uma atmosfera com argônio ou emprego de vácuo de 10^{-2} mm Hg;
- 3) a influência das temperaturas de 900 e 1000 °C.

O estudo ainda objetivou a determinação da temperatura de reação do UF_4 com Al pela técnica Análise Térmica Diferencial, a determinação das fases cristalinas resultantes pela técnica Difração de Raios-X; a determinação de impurezas pela técnica Espectrografia de Emissão; a determinação do flúor por técnica analítica Eletrodo Seletivo; a determinação de urânio total pela técnica analítica volumétrica; a observação da morfologia pela técnica de Microscopia Eletrônica de Varredura; e a determinação do rendimento da reação, supondo que se forme somente UAl_3 , conforme cálculo:

$$\eta = M_f / M_i \cdot 100,$$

onde,

- η - rendimento porcentual;
- M_i - massa inicial de $UF_4 + Al$;
- M_f - massa final de UAl_3 .

Os resultados experimentais são sub-divididos em quatro grupos: 1- determinação da temperatura de reação de redução do UF_4 com 37,57 % em peso de Al; 2- realização dos testes em atmosfera de argônio; 3- a realização dos testes sob vácuo; e 4- comparação dos resultados das amostras 4-A e 1-V (amostras com 34,00 % em peso de Al, obtidas pela redução-distilação a 1000 °C durante 1 hora, respectivamente em argônio e sob vácuo de 10^{-2} mm Hg), com resultados do pó de UAl_3 obtido via fusão de urânio e alumínio metálicos [7].

RESULTADOS E DISCUSSÕES

1- Temperatura de Redução. Para determinar experimentalmente a temperatura de redução do UF_4 com 37,57% em peso de Al, fez-se uma Análise Térmica Diferencial, em atmosfera de argônio (Figura 3).

Na curva resultante da ATD pode-se observar a presença de dois picos endotérmicos: o primeiro de fusão da liga Al-1100 a

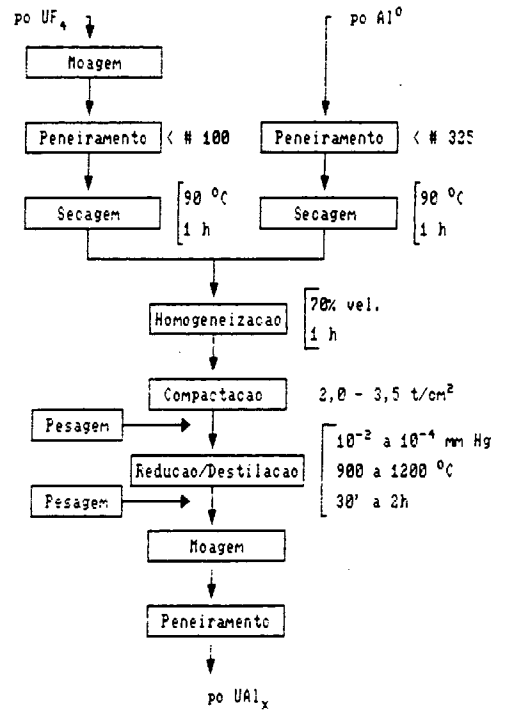


Figura 2 Fluxograma de preparação do UAl_x por redução-distilação do UF_4 com Al

temperatura de 654 °C e o segundo, de maior intensidade, de fusão do UF_4 a 933 °C. Também se observa um pico altamente exotérmico, correspondente à reação de redução do UF_4 pelo Al, a 993 °C.

2- Resultados Experimentais I. Os resultados experimentais realizados com composições e temperaturas variáveis em atmosfera de argônio, são apresentados na Tabela 5.

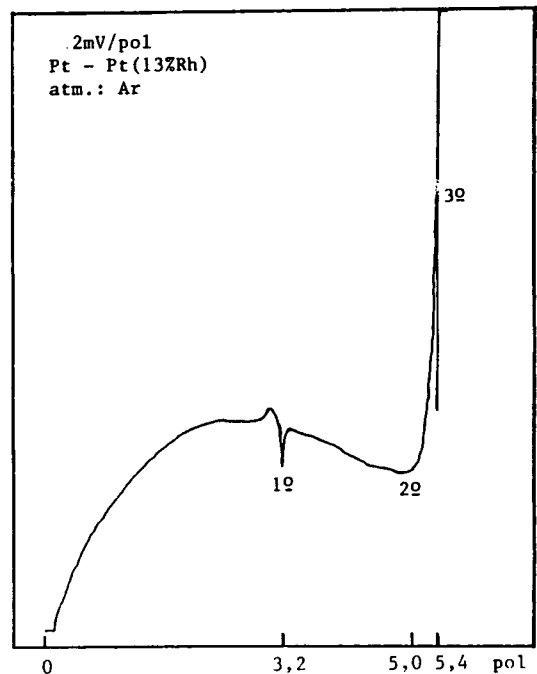


Figura 3 Análise Térmica Diferencial da amostra $UF_4 + 37,57\%$ em peso de Al.

Tabela 5 Testes de redução-destilação realizados por tempo de 1 hora em atmosfera de argônio.

Amostra	% em peso de Al	Temp. °C	Difração de Raios - X	Rendim. Teórico %	Rendim. Experim. %
1-A	37,57	1000	UAl ₃ , UAl ₄	63,34	n. deter.
2-A	37,57	900	UAl ₃	63,34	74,44
3-A	34,00	1000	UAl ₃	67,00	67,48
4-A	34,00	1000	----	67,00	71,10
5-A	31,00	1000	UAl ₃	70,00	72,57
6-A	31,00	1000	-----	70,00	76,20
7-A	27,00	1000	UAl ₃ , U ₃ O ₈	74,01	74,08

Com excessão das amostras 1-A, para a qual não foi calculado o rendimento, e 3-A, que teve perdas de processo, os rendimentos percentuais experimentais tem valores superiores, e não proporcionais, aos rendimentos teóricos calculados. Provavelmente, a destilação foi incompleta nestas condições de ensaio, existindo AlF₃ ainda presente no UAl_x. Este fato pode ser contornado com o aumento de tempo de operação de redução-destilação. O rendimento também foi afetado pela presença de água de cristalização, detectada posteriormente no pó de UF₄.

Comparando-se as amostras 5-A e 6-A, observa-se que não houve reprodutibilidade nos testes realizados com as mesmas frações percentuais em peso e temperaturas. O fato decorre, provavelmente, da heterogeneidade quanto à composição, devida à remoção incompleta da água de cristalização do UF₄.

Nos resultados da difração de raios-X, observou-se que, em geral, não existem outras fases cristalinas perceptíveis ao equipamento (<2% de fase presente). Os resultados dão indicações de que a redução-destilação do UF₄ com Al é obtida com conteúdos mínimos de outras fases, principalmente, quanto aos compostos AlF e AlF₃. Na amostra 1-A, provavelmente a água de cristalização do UF₄ alterou a relação estequiométrica prevista para obter-se o composto UAl₃, assim produzindo também o composto UAl₄. A presença do óxido U₃O₈ na amostra 7-A pode ter ocorrido por diversas razões. A mais provável está relacionada com as massas utilizadas na composição da carga. Devido a baixa percentagem de Al, produziu-se, durante a redução-destilação, o composto UAl₂ em quantidades apreciáveis, e este, por ser altamente pirofórico, veio a oxidar-se quando em contato com o ar atmosférico ou com o oxigênio contido no argônio comercial.

3- Resultados Experimentais II. Os resultados experimentais realizados com composição UF₄ + 34% em peso Al, a temperatura de 1000 °C e vácuo de 10⁻² mm Hg, são apresentados na Tabela 6.

Observa-se, na Tabela 6, que os rendimentos percentuais experimentais tem valores próximos ao valor do rendimento percentual teoricamente calculado. A reprodutibilidade dos rendimentos nos testes sob vácuo ainda não foi verificada, mas seus valores estão mais próximos entre si, principalmente quando comparados com os rendimentos dos testes em atmosfera de argônio. Com estes resultados, tem-se indicações da eficiência de eliminação do AlF sob vácuo.

Apesar da carga inicial, preparada com UF₄ e Al, ter sido calculada para produzir somente UAl₃, nos difratogramas das amostras 1-V e 2-V, observaram-se picos dos compostos UAl₂ e UAl₃. Estes resultados, dão indicações de que a destilação se completa nestas condições de teste, e o AlF se forma pela remoção de mais alumínio da liga que o previsto.

Tabela 6 Testes de redução-destilação realizados em vácuo de 10⁻² mm Hg por 1 hora.

Amostra	% em peso de Al	Temp. (°C)	Difração de Raios -X	Rendim. Teórico %	Rendim. Experim. %
1-V	34,00	1000	UAl ₃ , UAl ₂	67,00	66,55
2-V	34,00	1000	UAl ₃ , UAl ₂	67,00	68,00
3-V	34,00	1000	----	67,00	69,05

4- Resultados Complementares. Complementando os resultados experimentais, foram realizadas algumas análises físicas e químicas em duas amostras com 34,00 % em peso de Al obtidas nos testes com atmosfera de argônio (Amostra 4-A) e sob vácuo (Amostra 1-V). Os valores máximos de impurezas especificados[7] e os valores das impurezas determinados para os pós de UAl_x, são apresentados na Tabela 7.

Tabela 7 Impurezas gerais nos pós de UAl_x.

Elemento	Especif.[7] (ppm)	Amostra 4-A (ppm)	Amostra 1-V (ppm)
B	10	1	1
C	3000		
Cd	10	< 0,1	< 0,1
Cu	10	> 100	5
Fe	1500	> 500	500
H	200		
Li	10		
N	500		
O	7500		
Si	2000	> 500	< 35
Zn	1000	< 10	< 10
Cr		< 5	< 5
P		< 100	< 100
Co		< 10	< 10
Ni		5	< 4
Mo		< 2	< 2
Mn		10	10
Pb		< 2	< 2
Mg		< 2	< 2
Sn		>> 50	>> 50
Bi		< 2	< 2
Ba		< 1	< 1
F		11,32x10 ³	N.D.

Nas duas amostras de pó de UAl_x, os níveis de impurezas encontram-se com limites aceitáveis. Porém, para a amostra 4-A, o flúor, proveniente da matéria prima UF₄, apresenta teor muito elevado, o que dá indicações de que a operação de destilação foi incompleta, durante o processamento em atmosfera de argônio. Para a amostra obtida sob vácuo, não foi detectada a presença de flúor. Esta é uma indicação bastante forte de que a destilação é mais eficiente nestas condições.

Tabela 8 Conteúdo total de urânio.

Amostra	Especif. [7]	4-A	1-V
U - total (%) em peso	74,6	61,0	77,2

Na amostra 4-A o conteúdo total de urânio determinado foi de 61,0 % em peso de U, bem abaixo do valor característico do UAl_3 , que é de 74,6 % em peso de U (Tabela 8). Este valor é uma outra indicação de que a destilação foi incompleta em atmosfera de argônio. Na amostra 1-V, o conteúdo total de urânio determinado é de 77,2 % em peso de U, conteúdo superior ao especificado para o UAl_3 . Este valor caracteriza a alta eficiência do processamento sob vácuo e está de acordo com os resultados do difratograma de raios-X, que mostra a presença de dois compostos, o UAl_2 e o UAl_3 . O UAl_2 possui um conteúdo de urânio de 81,52 % em peso, o que provoca um aumento no conteúdo de urânio da amostra, e atestando a coerência entre os resultados, já que na amostra 1-V o conteúdo de urânio é maior que o correspondente ao UAl_3 .

Pelas Figuras 4 e 5 pode-se observar os picos característicos dos espectros de difração de raios-X da Amostra 1-V obtida via redução-destilação sob vácuo e da amostra obtida via fusão do urânio e do alumínio metálicos, respectivamente. Notam-se, no difratograma da Amostra 1-V, picos referentes aos compostos UAl_2 e UAl_3 enquanto que no difratograma da amostra via fusão do urânio e alumínio metálicos aparecem picos característicos de UAl_2 , UAl_3 e UAl_4 . No caso da liga produzida pela via redução-destilação, a presença dos dois compostos indica que pode ter ocorrido a falta de alumínio na composição inicial, ou ainda heterogeneidades localizadas de composição, decorrentes do

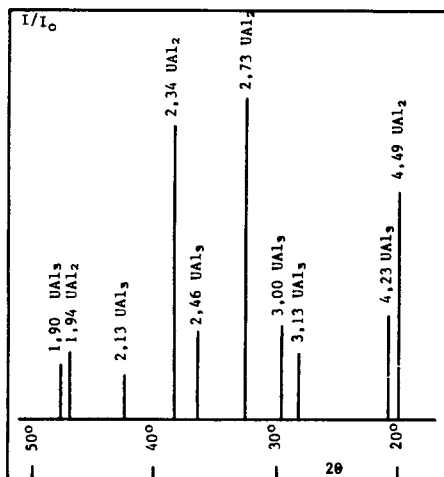


Figura 4 Difratograma de raios-X da Amostra 1-V obtida via redução-destilação sob vácuo de 10^{-2} mm Hg.

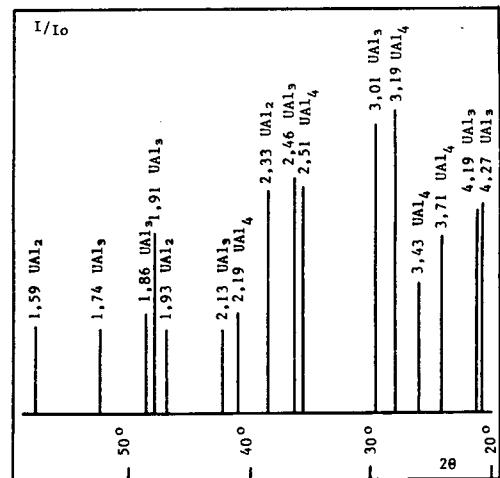
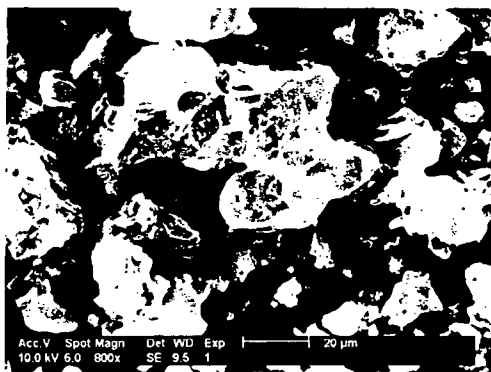


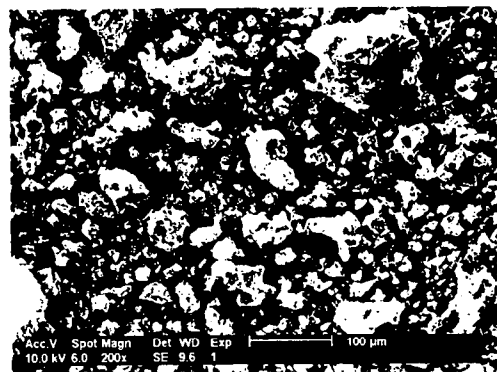
Figura 5 Difratograma de raios-X de UAl_x obtido via fusão do urânio com alumínio metálicos (fornecido pelo CDTN e fabricado com urânio metálico natural produzido no IPEN).

processamento ou da cinética da reação de formação do AlF . Ainda que a obtenção de uma única fase, entre as possíveis no sistema U-Al (UAl_2 , UAl_3 e UAl_4), não seja de importância fundamental para a fabricação do alvo, para efeito de conhecimento e de otimização do processo, serão realizados testes adicionais para permitir o controle da composição final da liga como função das variáveis: composição inicial, além do tempo, temperatura e pressão do processo de redução-destilação.

Nas figuras 6 e 7 podemos observar a morfologia das partículas de UAl_3 obtidas por microscopia eletrônica de varredura. Nota-se uma ampla variação no tamanho das partículas e formas de alta complexidade. Está previsto um estudo futuro para tentar otimizar a morfologia e a distribuição do tamanho de partícula final por meio do controle do tamanho inicial das partículas das matérias primas e pela variação de parâmetros de processo, como exemplo, a variação da carga de compactação, além do tempo e da temperatura da redução-destilação.

CONCLUSÕES

Os experimentos e os resultados obtidos demonstraram, em linhas gerais, que o método de redução-destilação do UF_4 com Al, utilizando-se de técnicas de metalurgia do pó, é aplicável para a preparação do UAl_x . Os resultados experimentais estão em concordância com os fundamentos teóricos, havendo boas perspectivas quanto à continuidade do trabalho.



Figuras 6 e 7 Morfologia típica das partículas do pó de UAl_3 obtidos a 1000 °C em vácuo de 10^{-2} mm Hg por 1 hora (Amostra 1-V).

Os resultados obtidos para os dois procedimentos experimentais, ou seja, reação em atmosfera de gas inerte ou sob vácuo, mostraram que o processo de obtenção do UAl_x é possível nas duas condições. A etapa de purificação foi muito mais eficiente sob vácuo, não sendo detectada a presença de outras fases ou de flúor. Evidenciou-se a necessidade de dispor de um sistema com maior flexibilidade, dotado de bomba difusora, permitindo que seja atingido vácuo de até 10^{-4} mm Hg e, dessa forma, otimizar as condições de realização do processo em termos de tempo, temperatura e pressão.

Também estão em desenvolvimento testes de eliminação da água presente no UF_4 . O processo vem sendo realizado sob vácuo e com variação da temperatura, no mesmo equipamento onde é executada a reação de redução-destilação. A razão destes testes é a influência significativa que a umidade e a água de cristalização tem no rendimento da operação.

Comparando-se os resultados obtidos para UAl_x obtido pelo processo tradicional de fusão e os do método redução-destilação, fica evidente a viabilidade do novo método. Deve-se ter em consideração que o composto de interesse é definido como UAl_x devido ao fato de que os compostos UAl_3 e UAl_2 são metaestáveis. Ainda que não exista uma composição de fases definida nas especificações para o alvo de ^{99}Mo , estudar-se-ão os parâmetros do processo para possibilitar um controle mais acurado da composição dos produtos.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem, em especial, ao IPT e aos seus engenheiros Ricardo Fuoco e Mario Bocallini Jr., pelo apoio na fabricação da rerorta de aço refratário. Agradecem, também, ao MSc. Oswaldo Julio Junior e a Izildinha P.M Queiroz, e a todos os pesquisadores e técnicos que, direta ou indiretamente, contribuíram para a execução deste trabalho.

REFERÊNCIAS

- [1] WITT, W. P. AND BARROW, R. F.. The heat of sublimation of aluminum trifluoride and the heat of formation of aluminum monofluoride. Trans. Faraday Soc., V. 54, p. 730 - 735, Oct. 1958.
- [2] SEKI, Y. AND MITAMURA, N.. Production of Aluminum-Uranium Alloy Nuclear Fuel by Direct Reduction. Genshiryoku Kogyo, V.11, n. 9, p. 36 - 40, Set 1965.
- [3] MITAMURA, N., MARUYA, K. AND KIMURA, J.. Studies on Al-U Alloys. Genshiryoku Gakkaishi, V.5, n. 6, p. 467 - 475, 1963.
- [4] FIRSANOVA, L. A.. The preparation of highly purified aluminum in vacuum. Chemical Abstracts, 16313 e, V. 54, 1960.
- [5] BELYAEV, A. I. AND FIRSANOVA, L. A.. Refining aluminum by distillation as subhalide. Chemical Abstracts, 7895 e, V. 53, 1959.
- [6] BELYAEV, A. I. AND FIRSANOVA, L. A.. Purification of aluminum by distillation as subfluoride. Chemical Abstracts, 4300 d, V. 55, 1961.
- [7] IAEA. Research reactor core conversion guidebook. Fuels (Appendix I-K), V. 4, IAEA. (IAEA-TECDOC - 643).

ABSTRACT

This paper describes the theoretical basis, the experimental procedures and the results obtained with the method of reduction-distillation of UF_4 with Al. The purpose of the work is to provide data to develop an equipment and a process, suitable for the preparation of the UAl_x compound, employed as dispersions in Al to obtain the ^{99}Mo by fission.