REVERSÃO DE UF_6 A UF_4 - ESCALA LABORATORIAL

AFONSO RODRIGUES DE AQUINO
JOSÉ ADROALDO DE ARAUJO
SORAYA MARIA R.DA ROCHA
E COLABORADORES - IPEN-CNEN/SP

RESUMO

Apresenta-se um processo escolhido e verificado em nossos laboratórios para a reversão do hexafluoreto de urânio-UF_6 a tetrafluoreto de urânio -UF_4. O processo escolhido foi o da reversão em reator químico de parede quente. Durante esse processo ocorre a reação de UF_6 com o hidrogênio - H_2, ambos gasosos, resultando no UF_4 sólido e um subproduto gasoso, o fluoreto de hidrogênio - HF, que é neutralizado em torre de lavagem onde resulta na formação de fluoreto de potássio-KF. O H_2 que reage com o UF_6 é obtido a partir do craqueamento da amônia - NH_3.

I - INTRODUÇÃO

O urânio após a etapa de enriquecimento encontra-se sob a forma química de UF_6.

O UF_6 empobrecido em ^{235}U, que corresponde a maior fração obtida no processo precisa ser reconvertido em produtos utilizáveis.

A maior demanda do urânio empobrecido, em ^{235}U, é na fabricação do urânio metálico e suas ligas.

A importância dá reversão do UF_6 a UF_4 consiste no fato do UF_4 ser matéria-prima para a fabricação do urânio metálico.

II- O PROCESSO

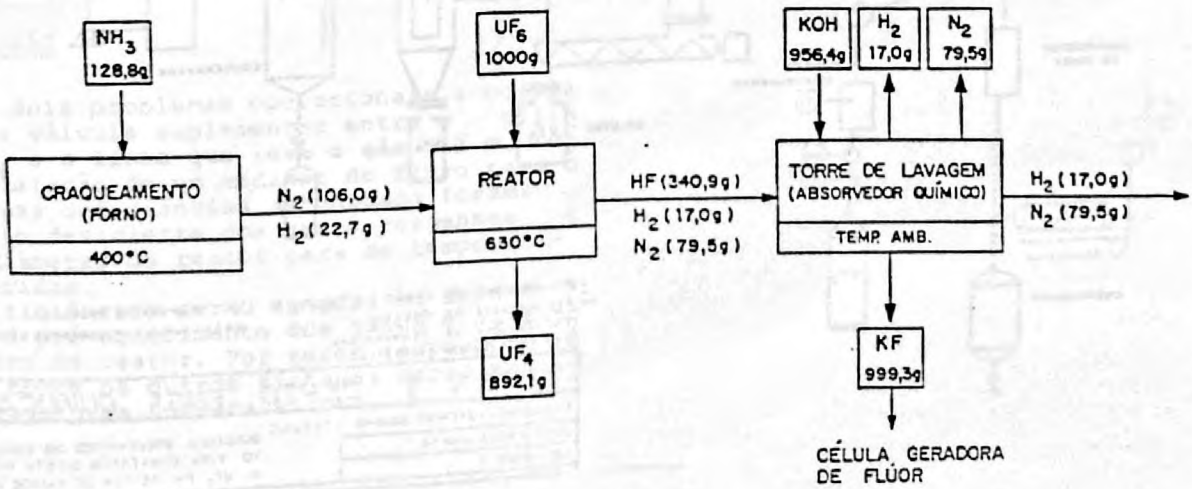
II.1. Descrição. Neste processo obtém-se o tetrafluoreto de urânio(UF_4) pela reação do hexafluoreto de urânio(UF_6) com hidrogênio(H_2) em reator tipo parede quente(vide fluxograma).
A reação exotérmica entre o UF_6 e o H_2 é a seguinte :

$$UF_6 + H_2 \quad UF_4 + 2HF + 43,9 \text{ Kcal/mol} \quad (3)$$

O cilindro 5A é aquecido e o UF_6 sob a forma gasosa alimenta o reator. O hidrogênio utilizado na reação é obtido do craqueamento catalítico da amônia(NH_3). O catalisador utilizado no processo foi desenvolvido no IPEN(1). O UF_4 é formado na parte superior do reator e desce por gravide até a base, onde fica localizada a rosca transportadora,que o leva até o coletor.

A corrente gasosa, composta do H_2 não reagido, do HF formado e do N_2 originado no craqueamento da amônia, é filtrada para separação do UF_4 eventualmente arrastado. Após passar pelo filtro a corrente gasosa é resfriada até que o HF mude de estado físico e reste liquefeito no condensador.

Finalmente, a corrente gasosa é lavada com solução diluida de hidróxido de potássio, para prevenir a liberação para a atmosfera de HF e/ou UF_6, que poderia ocorrer por erro ou acidente de operação.



IPEN	DEPTO. ENG.º QUIMICA	
ELABORADO	AFONSO/FATIMA	TITULO: FLUXOGRAMA CONVERSÃO DIRETA DE UF_6 A UF_4 EM REATOR DE PAREDE QUENTE
DESENHADO	SERGIO V.	
REVISADO		

II.2. Aspectos Tecnológicos. No processo o controle da alimentação do UF_6 é feito simultâneamente por medidor de vazão e controle do peso do cilindro.

As tubulações com UF_6 são aquecidas para evitar que este se deposite sob a forma sólida, com conseqüente entupimento. O craqueamento da amônia é feito em trocador de calor e utilizando catalisador desenvolvido no IPEN.

A energia de ativação necessária para que a reação ocorra é fornecida por fornos sob a forma de calor. A aderência do UF_4 nas paredes do reator é controlada pelo uso de vibradores eletromagnéticos. A corrente gasosa é filtrada em filtros de monel sinterizado para retirada dos finos de UF_4 arrastados.

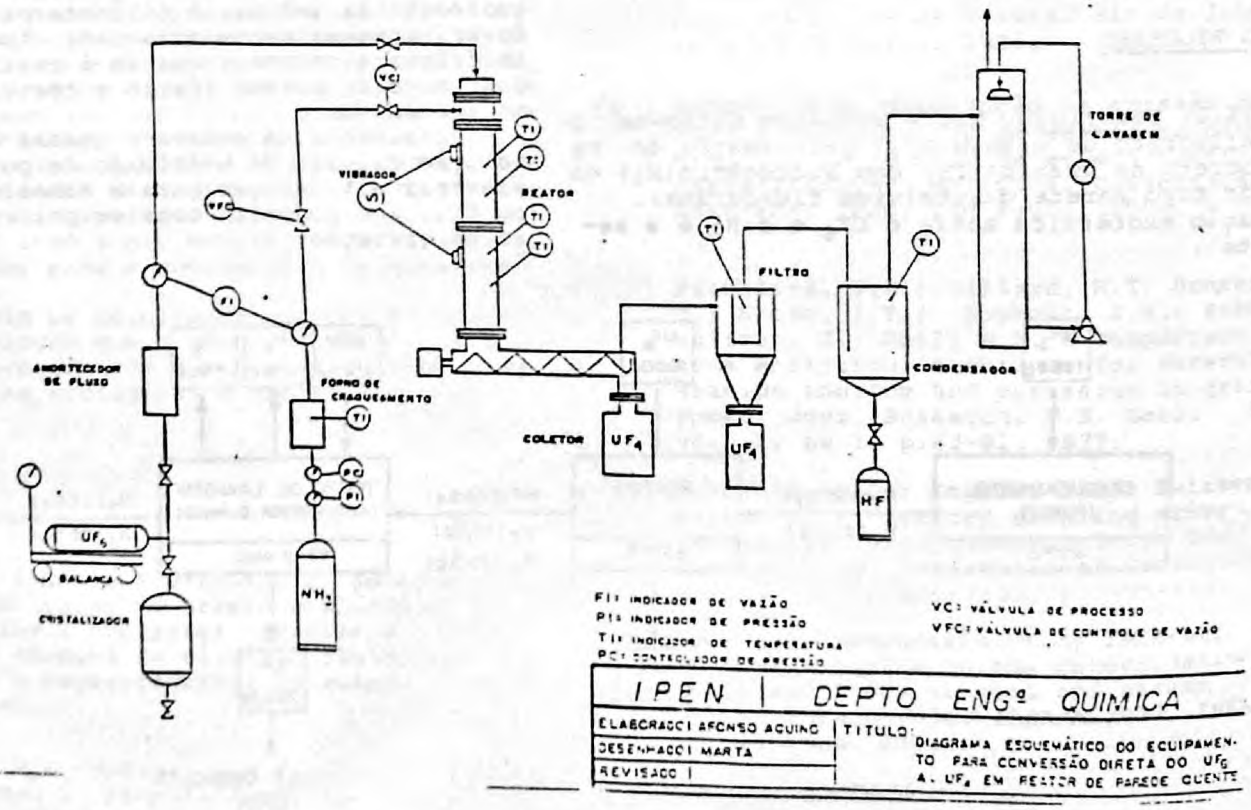
O HF formado na reação pode ser reaproveitado em outras etapas do ciclo do combustível, por exemplo, fabricação de UF_4 - via aquosa(2). A lavagem dos gases é feita para que nenhuma quantidade de urânio e/ou HF seja jogada na atmosfera.

As regiões da unidade que entram em contato com UF_6 são construidas em monel 400, as regiões que entram em contato com NH_3 são construidas em aço inoxidável, o cabeçote com os injetores de UF_6 e H_2 possue geometria especial e é construido com diferentes materiais. Após o reator as linhas são de monel 400 devido ao HF e o UF_6 e o lavador de gases é construido de PVC para resistir, na temperatura ambiente, a todos os possíveis produtos da mistura H_2O, N_2OH UF_6 e HF.

II.3. Aspectos Operacionais. O recipiente de UF_6, cilindro do tipo 5A, é conectado a sua respectiva linha. As linhas por onde passa o UF_6 são aquecidas, inclusive o cabeçote onde ocorre a mistura reacional. A vazão de UF_6 é regulada e lida em medidor apropriado. É anotado o peso do cilindro cheio e feitas leituras regulares para saber-se as vazões mássicas. A vazão de NH_3 é regulada e são lidas as vazões do NH_3 e do H_2 em medidores apropriados. A temperatura do forno de catálise é previamente acertada.

O intervalo de ligação dos vibradores é definido assim como a rotação da rosca transportadora. A coluna de lavagem fica continuamente ligada durante toda a operação. A unidade é ligada do último equipamento para o primeiro (referência ao diagrama esquemático). A retirada do produto (UF_4 e HF) se dá com a alimentação de UF_6 e NH_3 interrompida.

II.4. Descrição da Unidade. A unidade laboratorial fica instalada dentro de uma capela, ligada ao sistema de exaustão de gases do Departamento de Engenharia Química do IPEN. O acionamento dos equipamentos elétricos é feito em painel, fora da capela. As leituras e registros das temperaturas são feitas em painel fora da capela, equipamentos são dispostos de acordo com o diagrama esquemático.



O UF_6 sai aquecido de um cilindro colocado sobre uma balança. O NH_3 sai do cilindro e é craqueado, a 500ºC, em trocador de calor que contém o catalisador. Os gases são injetados no topo do reator e reagem completamente antes de atingirem a base do reator. O UF_4 formado, é levado até o coletor do produto por meio de rosca transportadora. A corrente gasosa é filtrada em filtros de monel sinterizado. O pó de UF_4 é coletado em recipiente acoplado ao filtro. No final está colocada a coluna de lavagem de gases.

II.5. Descrição dos Sistemas. Os principais sistemas da instalação são:

- Exaustão geral (capela)
- Alimentação de UF_6
- Alimentação e geração de H_2
- Reação e coleta do produto (inclusive o filtro)
- Lavagem de gases

Existem ainda os indicadores e controladores de temperatura, pressão e vazão e o painel de acionamento dos equipamentos elétricos e registros de temperaturas.

III - PARTE EXPERIMENTAL

Embora tenhamos assumido o craqueamento da amônia como sendo de 100%, verificamos mais tarde que o sistema somente propiciava um rendimento máximo de 90%.

As análises dos teores de UF_4 no produto mostrou uma evolução da qualidade com o aumento da temperatura de operação.

UF_4(%)	T(ºC)	p(g/cm^3)	η Craqueamento(%)
55,4	600	3,1	90
77,1	650	2,9	90
90.6	700	3,0	90
91,8	750	3,1	90

O aumento indiscriminado da temperatura provoca o entupimento do reator, no módulo vertical perto da base.

O fenômeno foi interrompido como sendo o efeito de atração eletromagnética das paredes quentes sobre as partículas de UF_4, que apresentam carga de superfície, no momento em que se formam.

A força de atração eletromagnética, no sentido transversal do reator, se contrapõe a força gravitacional no sentido longitudinal.

Observou-se a passagem pelo reator de UF_4 parcialmente reagido. O UF_4 desta forma apresentou os seguintes teores :

UF_4(%)	UO_2F_2(%)	T(ºC)
45	43	600
58	29	650
70	22	700
79	7	750

Os resultados evidenciam uma deficiencia térmica do sistema. Os gases não atingiram a temperatura ideal para a total reação.

V - CONCLUSÃO

Salvo dois problemas operacionais : colocação de uma válvula suplementar entre o cilindro do UF_6 e a linha que leva o gás até o reator a instalação de um medidor de fluxo para o UF_6; as duas deficiências da unidade foram: aquecimento deficiente dos gases reagentes e pequeno diâmetro do reator para as temperaturas requeridas.

As deficiências serão sanadas na Unidade Piloto com o pré-aquecimento dos gases e aumento do diâmetro do reator. Por terem respondido à contento todos os outros sistemas serão mantidos no projeto da Unidade Piloto.

REFERÊNCIAS

|1| Aquino, A.R., Abrão, A., Rocha, S.M.R. Figueiredo, F. F., Urânio como catalisador da reação de craqueamento da amônia; XXXI Congresso Brasileiro de Química, Recife 1991.

|2| Aquino, A.R.; Obtenção de tetrafluoreto de urânio por via aquosa a partir do dióxido. São Paulo, 1988(Dissertação de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).

SUMMARY

A process for UF_6 to UF_4 reduction based on the hot wall reaction vessel is presented. The process was studied in lab scale and has demonstrated to be operational in a pilot plant scale.