

AVALIAÇÃO DO FLUXOGRAMA DO LPR-CNEA NA INSTALAÇÃO
"MOCK-UP" NO IPEN-CNEN/SP

QUILICI, D., DEVIDA, C., GAUNA, A., FALCON, M., ARAUJO,
B.F., MATSUDA, H.T., COHEN, V.H., CAMILO, R.L., KUADA,
T.A.

IPQ-CNEA/EZEIZA * IPEN-CNEN/SÃO PAULO

RESUMO

Apresentam-se os resultados obtidos na avaliação do fluxograma previsto no Laboratório de Processos Radioquímicos (LPR) da Argentina. A avaliação foi realizada usando-se os programas URAPEX e SEPHIS e os dados experimentais obtidos nas operações "mock-up" no IPEN-CNEN/SP. Na comparação dos resultados usaram-se os perfis de concentração e os fatores de descontaminação dos principais produtos de fissão.

INTRODUÇÃO

No âmbito do Acordo de Cooperação Científica Brasil-Argentina estabeleceu-se, para a Divisão de Reprocessamento do IPEN, o Projeto Reciclagem de Combustíveis, em atividade desde final de 1990, com o Departamento Ingeniería de Plantas Químicas do Centro Atômico de Ezeiza.

As avaliações realizadas pelos pesquisadores das duas Instituições demonstraram um amplo espectro de possibilidades de estudos conjuntos, que trarão subsídios consideráveis para os respectivos programas nucleares.

A Divisão de Reprocessamento, para estudos de P&D na área de combustíveis irradiados e de química de elementos transurânicos, e o Departamento de Plantas Químicas realizam programas de pesquisa tecnológica que permitem uma interação eficaz com ganhos de competência em engenharia, característica do IPQ, e de processo, característica do IPEN.

A linguagem científica dos pesquisadores dos dois Centros é comum e seus objetivos são congruentes nos aspectos do desenvolvimento pacífico de área sensível e necessária ao domínio completo de ambos os ciclos.

A planta LPR do Centro Atômico de Ezeiza teve como base para o projeto, um combustivel de urânio natural com revestimento de Zircalloy-4 do reator de Atucha-1, uma queima de 6000 Mwd/tU, resfriamento de 10 anos e uma capacidade de reprocessar 20Kg MP/dia, ou seja, 5 t/ano. É portanto, uma unidade em escala piloto.

A instalação Celeste I tem capacidade para estudos de processos do tratamento de combustíveis de reatores PWR, sendo possível o tratamento de 1Kg de MP por campanha, com uma atividade máxima de 1500 Ci.

A primeira vista não há pontos em comum entre os dois programas, mas uma avaliação detalhada mostra que em muitos aspectos estes se complementam de tal forma que as instalações do IPEN se prestam como o laboratório necessário aos desenvolvimentos argentinos.

Com este enfoque, na instalação "mock-up" do IPEN desenvolveram-se operações para avaliação do fluxograma de processo para os 1º e 2º ciclos do Processo Purex, previsto no LPR. O objetivo destes estudos foi o de permitir uma visão geral do comportamento das variáveis do processo a fim de ajustá-las para

uma operação otimizada.

A instalação LPR usa o Processo Purex com 3 ciclos de separação e purificação em baterias de misturadores-decantadores de 12 estágios pulsados a ar, com um 1º ciclo de codescontaminação e partição no 2º ciclo.

Na avaliação realizada no IPEN adaptou-se o fluxograma aos misturadores-decantadores tipo Celeste I, de 16 estágios e agitação mecânica, mantendo-se a codescontaminação no 1º ciclo e realizando-se a partição com nitrato urânico, no 2º ciclo.

PARTE EXPERIMENTAL

A solução de alimentação do 1º ciclo foi preparada a partir da dissolução de 650 gramas de UO_2 em HNO_3 , adicionando-se traçadores obtidos na dissolução de 400mg de UO_2 irradiado no reator IEA-R1 por um período de 40 horas, fluxo térmico de 10^{13} neutrons/cm².s e 28 dias de resfriamento e da adição de carregadores dos elementos Ce, Zr, Mo, Ru e Sr para simular uma operação com produtos de fissão. Utilizou-se como solvente o TBP 30%/n-dodecano. Na Figura 1 tem-se o fluxograma usado nos experimentos e na Figura 2 o arranjo esquemático da instalação "mock-up".

O processo ocorreu de maneira descontínua e o produto urânio, do 1º ciclo, foi lavado e ajustado para as condições de alimentação do 2º ciclo.

No 2º ciclo empregou-se como agente redutor o U(IV) estabilizado com hidrazina.

A reversão em ambos os ciclos foi realizada à temperatura ambiente e não com aquecimento como no caso da instalação LPR.

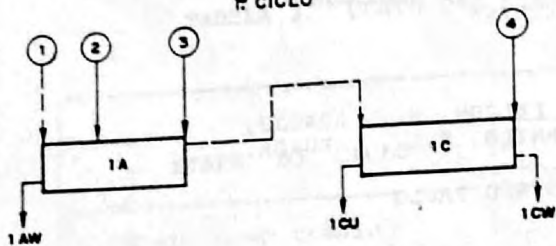
O tempo de operação, de cada ciclo, foi de 30 horas, com retirada de amostras nas saídas dos misturadores-decantadores, a cada duas horas e do perfil ao final do processo.

RESULTADOS E CONCLUSÕES

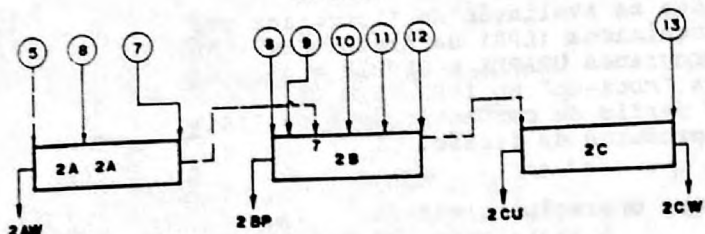
Os resultados indicaram que as perdas de urânio para o 1AW e 1CW são menores que 0,1%, o que mostra que o 1º ciclo é eficiente. Quanto à saturação do solvente, este foi de 69,82%.

As amostras retiradas para os perfis de

1º CICLO



2º CICLO



	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
FLUXO (mL/h)	264	85	39	390	264	497	39	42	20	20	20	20	458
U ^{VI} (g/L)		255,4				4379							
Pu ^{IV} (g/L)		0,9438				0,615							
HNO ₃ (M)	0,008	3	3	0,05	0,008	3	3	0,008	6	1	0,5	0,2	0,05
U ^{IV} (g/L)										10	5	0,5	
N ₂ N ₂ NO ₃ (M)										0,2	0,2	0,2	
TBP/FA-DOD(%)	30				30			30					
ESTÁGIO	1	7	16	16	1	7	16	1	2	10	12	16	16

FIG. 1 - FLUXOGRAMA DA LPR ADAPTADO ÀS CONDIÇÕES DO "MOCK-UP".

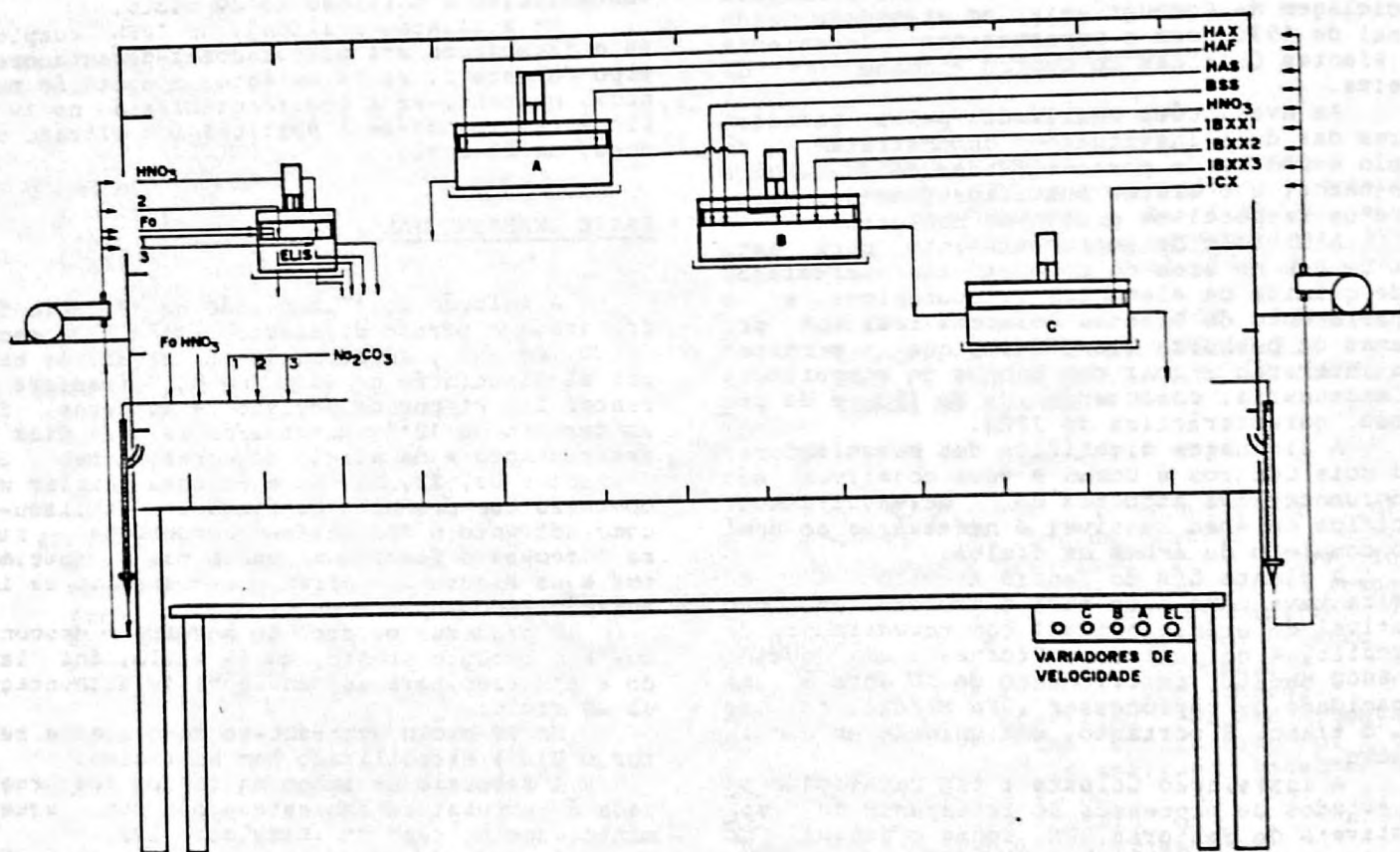


FIGURA 2 - ESQUEMA DE MONTAGEM DA INSTALAÇÃO "MOCK-UP"

concentração de urânio nas fases aquosas e orgânicas dos misturadores-decantadores 1A e 1C não representaram o comportamento real do processo, tendo em vista o aparecimento de "cruds", após 10 horas de operação, o que acarretou entupimento nas câmaras de distribuição de FA, efeito eliminado pela introdução de ar. Compararam-se os perfis de concentração obtidos experimentalmente com aqueles resultantes das curvas simuladas pelos programas URAPEX e SEPHIS para 80% de eficiência média dos contactores (Figuras 3 a 6).

Determinaram-se os fatores de descontaminação do urânio em relação a alguns produtos de fissão, conforme podem ser vistos na Tabela I.

A concentração encontrada no produto do misturador-decantador 1C (urânio) foi 54g U/L, conforme prevista. Realizou-se o ajuste dessa solução, para alimentação do 2º ciclo, adicionando-se HNO₃ concentrado.

Os resultados das análises mostraram que as perdas de urânio na corrente 2CW foram menores que 0,1%. Na corrente 2AW, as perdas foram em torno de 1,5%, o que demonstra que o fluxo gramal não é satisfatório em relação ao 2º ciclo, já que a relação de fases não é favorável à extração (o/a=0,49).

Os perfis de concentração de urânio nas fases aquosas e orgânicas obtidos para os misturadores-decantadores 2A e 2C também não representaram o comportamento real do processo, visto que no final da operação houve um descom

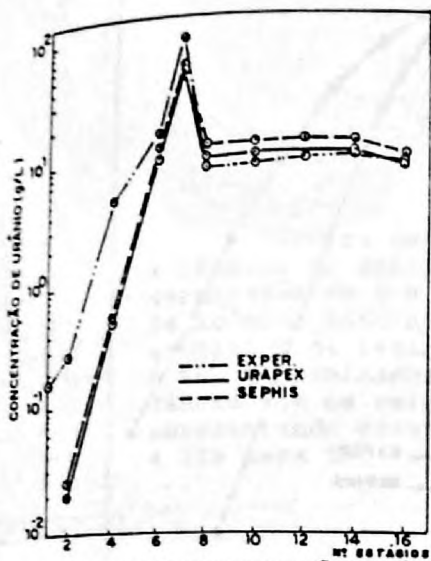


FIGURA 3 - PERFS DE CONCENTRAÇÃO DO URÂNIO NA FASE AQUOSA DO MISTURADOR - DECANTADOR 1A.

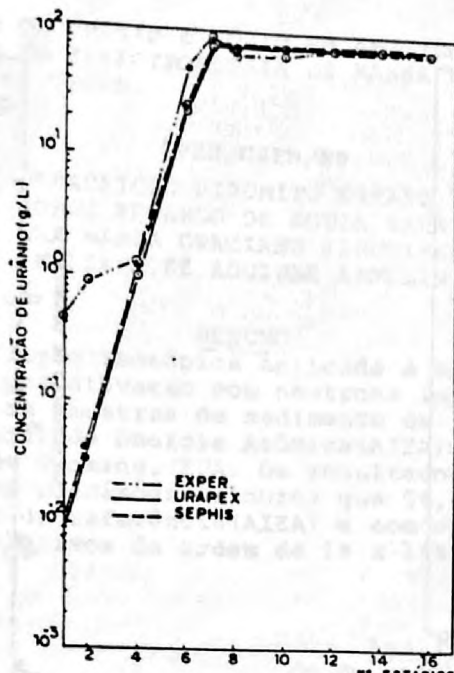


FIGURA 4 - PERFS DE CONCENTRAÇÃO DO URÂNIO NA FASE ORGÂNICA DO MISTURADOR - DECANTADOR 1A.

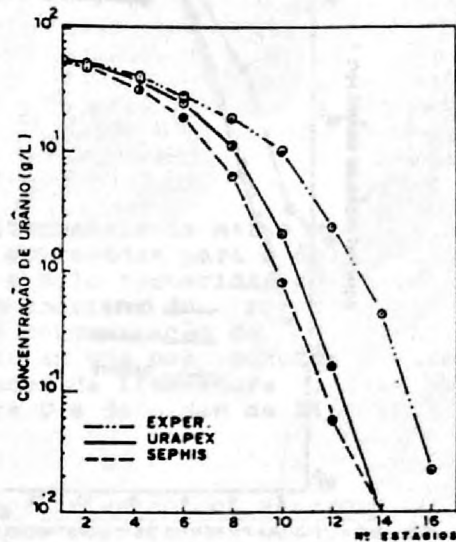


FIGURA 5 - PERFS DE CONCENTRAÇÃO DO URÂNIO NA FASE AQUOSA DO MISTURADOR - DECANTADOR 1C.

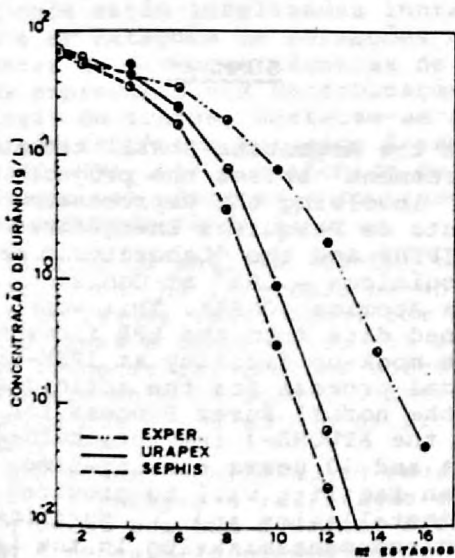


FIGURA 6 - PERFS DE CONCENTRAÇÃO DO URÂNIO NA FASE ORGÂNICA DO MISTURADOR - DECANTADOR 1C.

TABELA I - FATOR DE DESCONTAMINAÇÃO NO PRODUTO URÂNIO

ELEMENTO	FATOR DE DESCONTAMINAÇÃO (F.D.)
Ce - 144	$9,79 \cdot 10^2$
Mo - 99	$> 1,00 \cdot 10^2$
I - 131	$8,40 \cdot 10^0$
La - 140	$> 1,00 \cdot 10^4$
Ru - 103-106	$2,76 \cdot 10^2$
Zr - 95	$1,76 \cdot 10^2$
Nb - 95	$5,29 \cdot 10^2$
σ TOTAL	$1,05 \cdot 10^2$

trole da bomba de alimentação, tornando a relação de fases mais desfavorável. Nas Figuras 7 a 10 encontram-se os perfis de concentração obtidos experimentalmente e aqueles dos programas URAPEX e SEPHIS.

Em relação aos programas URAPEX e SEPHIS utilizados, pode-se observar que são muito similares na previsão da extração, tanto na fase aquosa quanto na fase orgânica, enquanto que, na reversão apresentam um pequeno desvio.

Os fatores de descontaminação obtidos no 19 ciclo para gama total e gama individual dos P.F. foram maiores que 10^2 , com exceção do Iodo que acompanhou o urânio durante todo o processo.

Com o tempo de resfriamento de 10 anos, acredita-se que, pela meia vida dos isótopos de Iodo, o único que ainda poderia ser encontrado seria o I-129 ($T_{1/2} = 1,6 \times 10^7$ a) o qual pode ser removido, em parte, na fase de dissolução.

Os resultados mostraram que o fluxograma

é eficiente para o 19 ciclo, tanto em termos de fator de descontaminação quanto em perdas do produto. Para o 29 ciclo, sugerem-se:

- 1) sem alterar o fluxograma, aumentar o número de estágios de extração com o objetivo de diminuir as perdas de urânio;
- 2) alterando-se o fluxograma, diminuir a vazão da solução de alimentação do 29 ciclo a níveis que não comprometa a capacidade da etapa de ajuste, e aumentar o número de estágios de extração.

Finalmente, deve-se ressaltar que os resultados foram obtidos em misturadores-decantadores de 16 estágios enquanto que os misturadores-decantadores da LPR são de apenas 12 estágios. Sendo assim, tem-se, nos misturadores-decantadores 1A e 2A, dois estágios a mais nas etapas de extração e lavagem e nos misturadores-decantadores 1C e 2C, quatro estágios a mais na etapa de reversão.

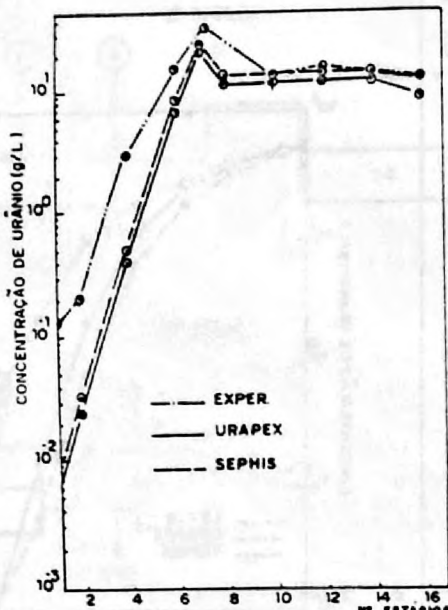


FIGURA 7 - PERFIS DE CONCENTRAÇÃO DO URÂNIO NA FASE AQUOSA DO MISTURADOR-DECANTADOR 2A

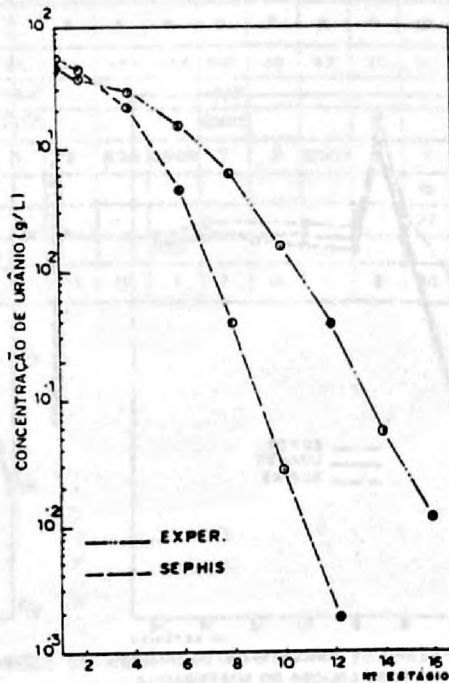


FIGURA 10 - PERFIS DE CONCENTRAÇÃO DO URÂNIO NA FASE ORGÂNICA DO MISTURADOR-DECANTADOR 2C

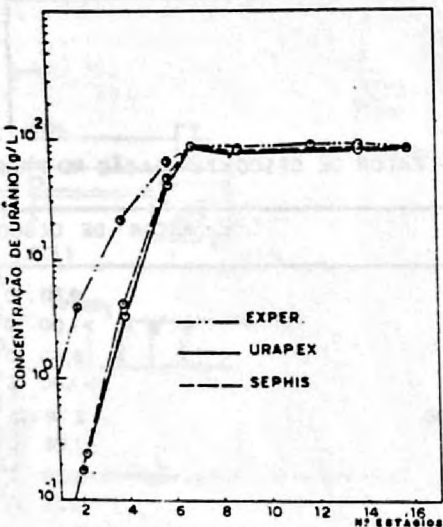


FIGURA 8 - PERFIS DE CONCENTRAÇÃO DO URÂNIO NA FASE ORGÂNICA DO MISTURADOR-DECANTADOR 2A

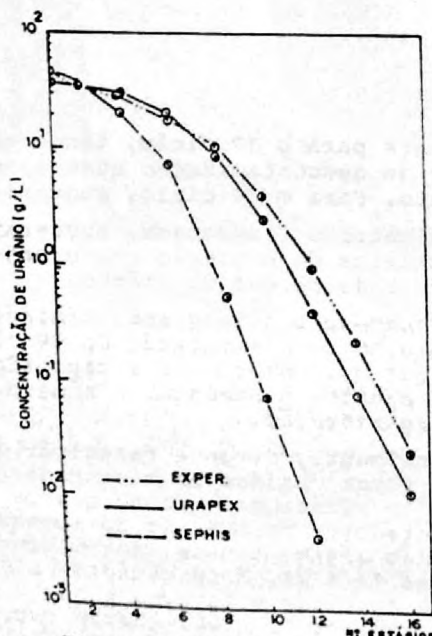


FIGURA 9 - PERFIS DE CONCENTRAÇÃO DO URÂNIO NA FASE AQUOSA DO MISTURADOR-DECANTADOR 2C

SUMMARY

From the Argentina-Brazil technical cooperation agreement arises the project "Fuel Recycling" involving the Reprocessing Division at Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) and the "Laboratório de Processos Radioquímicos - LPR" at Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA). This work reports the obtained data from the LPR flowsheet run in the mock-up facility at IPEN-São Paulo. The chemical process for the actinides recovering is the normal Purex Process for spent fuel from the ATUCHA-1 reactor, burn-up of 6000 MWd/t and 10 years cooling-time. The Argentinean facility will be provided with head-end installation and 3 purification cycles, with codecontamination in the first cycle and U/Pu partitioning in the 2nd cycle. The separation process will run in air pulsed 12 stages mixer-settlers. Some modification have been introduced at IPEN, using mechanically stirred Celeste 1 type mixer-settlers. Uranous nitrate solution has been used as reducing agent for the U/Pu partitioning step. URAPEX and SEPHIS programs were used to make flowsheet evaluation based on the obtained uranium concentration profiles. Fission products as Zr, Ru, Nb, Ce and La were simulated using tracer and carrier solutions. Decontamination factors of 10^2 were reached for the 1st cycle.