

## DESCONTAMINAÇÃO E READAPTAÇÃO DA INSTALAÇÃO CELESTE I DO IPEN- CNEN/SP

Araújo, J.A., Araújo, B.F., Matsuda, H.T., Lobão, A.S.T., Cohen, V.H., Camilo R.L., Yamaura, M., Kuada, T.A., Forbicini, S., Forbicini, C.A.L.G.O.

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - CNEN/SP  
Travessa R, 400 - Cidade Universitária  
Caixa Postal 11049  
CEP 05422-90 - São Paulo - SP  
e-mail: jaraujo@net.ipen.br

### RESUMO

Dá-se continuidade ao trabalho apresentado anteriormente na IV CGEN, relativo à descontaminação e intervenção na instalação de P&D em reprocessamento, denominada CELESTE I, do IPEN. Neste trabalho, apresenta-se uma avaliação dos riscos radiológicos verificados no início das operações de intervenção nas células quentes, caracterizada por contaminação interna por micro-quantidades de Am-241, Cs-137, Ce-144, U-238, Th-234, U-235, Ra-226 e Pu-239.

Realizaram-se experimentos de descontaminação química, cujos resultados mostraram a melhor metodologia e reagentes a serem utilizados na descontaminação, frente ao aço inoxidável e outros materiais de construção utilizados nas células quentes. A técnica usada mostrou ser efetiva para minimizar a contaminação dos operadores durante a intervenção. O uso de HNO<sub>3</sub> 1M e solução aquosa de EDTA 0,1M, mostraram-se eficientes para reduzir a contaminação.

Devido ao nível de contaminação apresentado nas superfícies internas das células quentes, efetuou-se, inicialmente, uma descontaminação química superficial por controle remoto, cuja finalidade foi reduzir a atividade alfa, beta e gama total, procedendo-se a seguir uma limpeza e descontaminação direta. A ação permitiu o acesso dos operadores ao interior das células, através da câmara de intervenção, tornando possível a remoção e substituição de equipamentos (manutenção direta) e a retirada dos rejeitos.

### INTRODUÇÃO

A instalação CELESTE I do IPEN é um laboratório de química quente, projetado e construído para desenvolver trabalhos em P&D, na área de combustíveis irradiados. Em termos operacionais é uma miniatura de uma planta de reprocessamento, utilizada, em trabalhos no tratamento de combustíveis irradiados com baixa taxa de queima.

A instalação foi fechada em 1987 e a partir de 1991, tem sido submetida a uma descontaminação parcial, visando sua adequação e readaptação para entrar em operação novamente. A descontaminação teve o seu início pelo projeto e construção de uma célula de intervenção ventilada, com pressão negativa, utilizada para permitir a entrada dos operadores no interior das células quentes. As células quentes são compostas por dois caixões de aço inoxidável, com medidas de 4,5 x 1,25 x 1,35 m (célula de tratamento) e 3,5 x 1,25 x 1,35 m (célula analítica).

Parte do trabalho realizado anteriormente, foi apresentado durante a IV CGEN[1], em 1992.

Apresentam-se nesta segunda parte, os resultados dos experimentos efetuados para determinar o tipo de reagentes químicos usados na descontaminação e outras medidas relativas à readaptação da instalação como um todo.

### AValiação DOS RISCOS

Durante o planejamento das operações de descontaminação e intervenção previstas para a instalação CELESTE I, os operadores reuniram-se com pessoal da Proteção Radiológica do IPEN, para determinação dos riscos operacionais e levantamento da contaminação nas células quentes. A seguir, fez-se uma monitoração da contaminação da superfície interna das células quentes.

A estimativa resultante desta monitoração, mostrou uma contaminação de superfície transferível, conforme indicado na Tabela 1.

TABELA 1: Estimativas de Contaminação

Local	Estimativa (Bq/cm <sup>2</sup> )
a - No sistema de corte do elemento irradiado	1,2
b - Em um dos dispositivos telemanipuláveis da célula de tratamento	0,4
c - Na base de aço inoxidável da célula	0,4
d - Nos suportes das garras dos telemanipuladores	3,3
e - No trilho do carro utilizado para o transporte de amostras	3,1

O limite derivado para a contaminação de superfície das áreas restritas, quando o contaminante é uma mistura desconhecida de radionuclídeos é 0,4 Bq/cm<sup>2</sup> [2]. Considerando os resultados encontrados, decidiu-se efetuar uma série de experimentos em laboratório para estabelecer quais os melhores reagentes, a serem utilizados na descontaminação das células quentes.

células quentes é de aço inoxidável 304. Procedendo-se a análise espectrométrica gama das amostras dos esfregaços realizados no interior das células, detectou-se a presença de Am-241, Cs-137, Ce 144, U-238, Th-234, U-235, Ra-226 e Pu-239, em pequenas quantidades. Os resultados mostraram qualitativamente, a presença dos elementos mencionados anteriormente. Na Tabela 2 tem-se a atividade destes elementos referentes a onze esfregaços efetuados.

### CARACTERIZAÇÃO DA CONTAMINAÇÃO

A maior parte do material contaminado dentro das

TABELA 2 . Análise Espectrométrica Gama (2º e 3º Janelas)

Esfregaço Nº	Radionuclídeos observados por espectrometria gama Tempo de Contagem: 1000s							
	Am-241	Cs-137	Ce-144	U-238	Th-234	U-235	Ra-226	Pu-239
1	X	XXX	-	X	X	X	-	-
2	X	X	-	X	X	-	-	-
3	X	X	X	-	-	-	-	-
4	-	-	-	-	-	-	-	-
5	XXXX	XXXX	XX	-	-	-	-	X
6	XX	X	-	X	X	X	X	-
7	XXXXX	XXXXX	XXX	X	X	X	XX	XX
8	XXX	X	-	XXX	XXX	XX	X	XXX
9	XX	XX	X	X	X	X	-	-
10	XX	X	X	X	XX	X	-	-
11	X	X	-	-	-	X	-	-

- não observado

X - Observado (a quantidade  $\underline{x}$  mostra a intensidade de atividade do radionuclídeo)

Como o radionuclídeo mais importante, era o plutônio, fez-se uma análise espectrométrica alfa, para estabelecer-se a

massa do elemento em áreas contaminadas. Os resultados podem ser observados na Tabela 3.

TABELA 3-Análise Espectrométrica Alfa

Esfregaço	1	2	3	4	5	6	8*	9	10
Pu(µg)	0,08	0,01	0,01	0,01	0,41	0,23	0,09	0,13	0,26

\* duas extrações e duas análises

## PROCEDIMENTO DE DESCONTAMINAÇÃO

Visando reduzir o nível de contaminação nas superfícies metálicas das células quentes, efetuou-se uma fase inicial de descontaminação química, por controle remoto, utilizando-se os telemanipuladores. Após a redução de parte das atividades  $\alpha$ ,  $\beta$  e  $\gamma$ , seguiu-se uma operação de descontaminação direta, tipo intervenção. Os operadores entraram nas células quentes através de uma caixa de luvas, ventilada e com dispositivo de pressão negativa, denominada célula de intervenção/manutenção, já mostrada no trabalho anterior.

Esta caixa de luvas tem dupla função, sendo usada para remover e substituir equipamentos e, ainda, para retirar os rejeitos sólidos e líquidos gerados no interior das células.

Para se ter uma relativa certeza dos resultados da descontaminação durante a operação de intervenção, realizaram-se experimentos em laboratório, relativos a determinadas superfícies (principais materiais de construção da parte interna das células quentes), para minimizar a contaminação alfa. O principal objetivo da pesquisa foi escolher a melhor metodologia e os reagentes a serem usados.

A Tabela 4 mostra os resultados experimentais obtidos em amostras de aço inoxidável contaminadas. Os experimentos foram realizados em fase anterior ao processo de intervenção no interior das células quentes. Durante os experimentos, as superfícies das amostras foram contaminadas com 50  $\mu$ L de soluções aquosas e orgânicas contendo alfa emissores

TABELA 4. Resultados Experimentais de Descontaminação

Reagentes	Superfície	Fase Aquosa		F D	Fase Orgânica		F D
		A <sub>i</sub> (Bq)	A <sub>f</sub> (Bq)		A <sub>i</sub> (Bq)	A <sub>f</sub> (Bq)	
EDTA	AI-304	62242	66	943	6740	73	92,3
	Borracha	12497	1142	8,7	439	83	5,3
	Acrílico	71135	377	188,7	2662	74	36
	PVC	70361	1399	50,3	2,299	455	4,9
HNO <sub>3</sub>	AI-304	71474	101	707,6	8804	124	71
	Borracha	20327	1123	18,1	1824	293	6,2
	Acrílico	59603	399	149,4	3104	31	100,1
	PVC	60184	2418	24,9	1749	544	3,2
Etanol	AI-304	-	-	-	7949	367	21,7
	Borracha	-	-	-	855	226	6,9
	Acrílico	-	-	-	3871	124	31,2
	PVC	-	-	-	1539	687	2,2
n-dodecano	AI-304	-	-	-	8121	156	52,1
	Borracha	-	-	-	480	318	1,5
	Acrílico	-	-	-	3312	657	5,0
	PVC	-	-	-	1783	1033	1,7

A<sub>i</sub> = atividade inicial

A<sub>f</sub> = atividade final

FD = fator de descontaminação

AI = Aço Inoxidável

EDTA = ácido etileno di-amino tetra acético

A partir dos dados mostrados na tabela anterior, conclui-se que o EDTA e o ácido nítrico, são os reagentes mais eficazes para a descontaminação do aço inoxidável-304 (FD=943 para o EDTA e 707,6 para o HNO<sub>3</sub>). Tendo por base estes resultados, decidiu-se utilizar os dois reagentes para proceder a limpeza e a descontaminação do interior das células quentes. Para a borracha e acrílico, o EDTA é melhor do que o HNO<sub>3</sub>, pois este ácido promove

ataque das superfícies, como foi observado em experimentos anteriores.

## RESULTADOS EXPERIMENTAIS

Os resultados dos experimentos são baseados nos fatores de descontaminação. A atividade inicial (A<sub>i</sub>) foi

obtida por medição da superfície contaminada das amostras.

Após a descontaminação, usando os reagentes selecionados (EDTA e  $\text{HNO}_3$ ), mediram-se as atividades remanescentes na superfície das amostras ( $A_i$ ). O fator de descontaminação [3], foi definido por  $FD = A_i \times A_i^{-1}$ . Estabeleceu-se, ao final, utilizar  $\text{HNO}_3$  1M; solução aquosa de EDTA 0,1M e NaOH 1 M (usado somente no caso de ser necessário neutralizar o ácido). Deste modo, assegurou-se a proteção individual dos operadores e equipamentos durante as operações de intervenção.

### CONCLUSÃO

A descontaminação química utilizada durante a intervenção nas células quentes da CELESTE I, provou ser útil para minimizar a exposição à contaminação dos operadores. Os trabalhos de intervenção atingiram os resultados esperados, principalmente porque o objetivo principal não era descontaminar completamente as células quentes, como desejável na maior parte dos casos de descomissionamento.

Ao final foi possível baixar o nível de contaminação interna, permitindo aos operadores efetuarem a manutenção requerida, proceder a substituição de equipamentos e deixar a instalação pronta para readaptação.

### AGRADECIMENTO

Os pesquisadores do IPEN, envolvidos no desenvolvimento deste trabalho agradecem a colaboração da IAEA (International Atomic Energy Agency), pelo apoio dado, por intermédio do patrocínio do "Research Contract/Agreement Nº 7958/R1/RB: "Decontamination and Refurbishing of Celeste I Installation" e ainda, a participação no IAEA-Co-Ordinated Research Programme on New Methods and Techniques for Optimization of Decontamination for Maintenance or Decommissioning, 1994-1998".

### REFERÊNCIA BIBLIOGRÁFICA

[1] ARAÚJO, J. A., ARAÚJO, B. F., MATSUDA, H. T., LOBÃO, A. S. T., COHEN, V. H., CARVALHO, E. I., CAMILO, R. L., YAMAURA, M., KUADA, T. A., ARAÚJO, I. E., FORBICINI, S. Descontaminação e Intervenção nas Células Quentes Celeste I no IPEN-CNEN/SP, Anais do 4º Congresso Geral de Energia Nuclear, vol. 1, p. 257, Rio de Janeiro, 1992.

[2] Norma: Diretrizes Básicas de Radioproteção, CNEN-NE-3.01, julho de 1988, p. 34, item 6.b.

[3] LONG, J.T., *Engineering for Nuclear Fuel Reprocessing*, Gordon and Breach Science Publishers INC, Nova York, 1967.

### ABSTRACT

This paper is a continuation of the work reported during the IV-CGEN meeting. It deals with the decontamination/intervention of IPEN's R&D reprocessing installation named CELESTE I. An evaluation of the radiological risks observed inside the hot cells are presented. The internal contamination was due to Am-241, Cs-137, Ce-144, U-238, Th-234, U-235, Ra-226 and Pu-239, in small amounts.

Experiments on chemical decontamination have shown the best methodology and chemicals that must be used on stainless steel surface and other construction materials from the hot cells. It was concluded that nitric acid 1M and the complexing agent EDTA (aqueous solution 0,1M) have presented the desired effects to reduce the contamination.

Due to surface contamination level in the hot cells, a first chemical remote decontamination was required in order to reduce the gross alpha, beta and gamma activities, followed by a direct cleaning and local decontamination. These actions make possible to remove and replace equipments as well as to take out the wastes.