



I Congresso Geral de Energia Nuclear

Rio de Janeiro, 17 a 20 de Março de 1986

ANAIS - PROCEEDINGS

SOLIDIFICAÇÃO DE SOLUÇÕES RADIOATIVAS DE ^{137}Cs

Ieda I.L.Cunha
Leonardo Condim de Andrade e Silva

Divisão de Radioquímica
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares
Comissão Nacional de Energia Nuclear-SP
Caixa Postal 11049 - Pinheiros
São Paulo - SP

SUMÁRIO

Na fissão do urânio formam-se muitos produtos de fissão, que por apresentarem determinadas características nucleares, tais como meia vida longa e alto rendimento de fissão, são importantes do ponto de vista de disposição de rejeitos radioativos ou para serem utilizados como fontes de radiação. Um dos produtos de fissão que apresentam essas características é o ^{137}Cs .

Com o objetivo de colaborar para a solução dos problemas de disposição de rejeitos radioativos, estão descritas no presente trabalho as condições de solidificação de soluções radioativas de ^{137}Cs , convertendo o césio em um composto sólido, que servirá de material de partida para uso como fontes de radiação gama.

Vários métodos foram aqui estudados para a solidificação de ^{137}Cs , a saber: evaporação, vitrificação, adsorção em trocadores inorgânicos e coprecipitação.

ABSTRACT

Of the many fission-products formed in the fission of uranium, some are of sufficiently long half-life and formed in sufficient yield to be of major importance from the standpoint of long-term waste disposal or retention, or for recovery for utilization as radiation sources. One of the most important fission-products is ^{137}Cs .

This paper describes some processes such as, evaporation, vitrification, adsorption on inorganic ion exchangers and coprecipitation, which were employed for the solidification of ^{137}Cs , as a step in a waste treatment program.

The purpose of this work was to convert cesium into a solid compound (^{137}Cs pellet) for use as a gamma radiation source.

Introdução

Um dos maiores problemas no campo da energia nuclear se refere a disposição de rejeitos radioativos.

Rejeitos radioativos com atividade suficientemente baixa podem ser descarregados diretamente no ambiente. Se a atividade do rejeito estiver em nível superior ao permissível este deve ser estocado de modo seguro a fim de evitar qualquer possibilidade de contaminação do ambiente ou será submetido a tratamento químico para concentrar e solidificar os radionuclídeos.

A recuperação de produtos de fissão, particularmente a remoção de ^{137}Cs e ^{90}Sr de rejeitos radioativos, pode ser considerada no tratamento de rejeito.

O conceito comum é que se esses radioisótopos de meias vidas longas são retirados do rejeito, este pode ser facilmente disposto depois de um período de estocagem relativamente curto durante o qual outros radioisótopos de meias vidas curtas decaem para níveis permissíveis de atividade e também reduzem os problemas de disposição de rejeitos radioativos em relação à geração de calor.

Vários pesquisadores têm desenvolvido métodos para a separação de ^{137}Cs de rejeitos radioativos, obtendo-o em uma forma adequada para a produção de fontes de césio.

Enomoto e colaboradores (1) descrevem a preparação de uma fonte de césio usando um zeólito sintético. O trocador é prensado para formar uma pastilha, a qual é impregnada com solução de ^{137}Cs e aquecida em alta temperatura (1100°C) para formar uma fonte cerâmica.

Smit e colaboradores (2) têm utilizado o fosfomolibdato de amônio (AMP) como trocador catiônico efetivo para a remoção e solidificação de césio de soluções radioativas.

Para a produção de fontes seladas de ^{137}Cs , Jones (3) evapora a solução radioativa contendo o césio até a secura com a formação de $\text{CsCl}(\text{pó})$. O pó de cloreto de césio é comprimido para formar as pastilhas de ^{137}Cs que são a seguir encapsuladas. Empregando a mesma técnica, Warner (4) procede a transferência de soluções radioativas de césio para um evaporador e a solução é concentrada até um determinado volume. O líquido concentrado é transferido para formas individuais de platina e levado à secura por ação de raios infra-vermelhos.

Para o desenvolvimento de uma fonte vítrea de césio, Ottinger e colaboradores (5) procedem à precipitação de césio com tetrafenilborato de sódio. O precipitado é calcinado e misturado com sílica a temperaturas elevadas (1200°C) para produzir o borossilicato de césio. Nesta etapa ocorrem evaporação, denitração, sinterização e formação da fonte vítrea.

Na Área de Radioquímica do IPEN-CNEN/SP vem sendo desenvolvida uma linha de pesquisas que tem como objetivo a recuperação de produtos de fissão de rejeitos radioativos.

Cunha e Andrade e Silva (6) apresentam um procedimento radioquímico para a separação de ^{137}Cs de soluções simuladas do processo Purex, com o emprego dos trocadores inorgânicos sílica gel e fosfato de zircônio.

Dando prosseguimento a essa linha de estudos, foram definidas no presen

te trabalho as condições de solidificação do ^{137}Cs , recuperados de soluções de rejeitos radioativos, convertendo o césio em um composto sólido, que servirá de material de partida para uso como fontes de radiação gama.

Várias técnicas foram estudadas, preliminarmente para a solidificação de soluções de ^{137}Cs , a saber: evaporação, vitrificação, adsorção em trocadores inorgânicos e coprecipitação.

Parte Experimental

A solução simulada do processo Purex contendo urânio e os produtos de fissão ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{106}Ru e ^{144}Ce é percolada por uma coluna de sílica gel onde ficam adsorvidos os elementos zircônio e nióbio. Para a separação do césio dos demais produtos de fissão a solução efluente da coluna de sílica gel é percolada pela coluna de fosfato de zircônio, que é um trocador seletivo para césio. O césio é eluído da coluna com solução de ácido nítrico 6M.

O ^{137}Cs recuperado de soluções simuladas do Processo Purex está presente em 500 ml de solução 6M em ácido nítrico e sua concentração é 10^{-5}M .

Pensou-se inicialmente que o método mais simples de solidificação do ^{137}Cs seria a evaporação da solução, por ação de raios infra-vermelhos, obtendo um produto seco e sólido. Porém, os resultados mostraram que o processo não é viável, uma vez que as perdas de césio variaram de 40 a 60%.

Baseando-se no trabalho do Ottinger e colaboradores⁽⁵⁾, foram feitos vários experimentos com o objetivo de produzir fontes vítreas de césio. Os resultados experimentais foram positivos em relação à obtenção do vidro de borossilicato de césio, porém há dificuldades práticas que devem ser consideradas ao se adotar esta técnica para a solidificação do césio. A fusão do precipitado de tetrafenilborato de césio com a sílica tem que ser feita em formas individuais de platina a temperatura de 1150°C . Considerando a produção de fontes de césio de 4 mm de diâmetro por 4,5 mm de altura, há dificuldade na transferência de pequenas porções de massa (50 mg) para cada forma, que são de elevado custo e não recuperáveis. Outro aspecto a ser considerado, é que para ocorrer a formação do precipitado de tetrafenilborato de césio há necessidade de diminuir a acidez da solução contendo o césio de 6 Molar para 0,1 Molar, o que dificulta a precipitação do césio por estar presente em quantidade muito pequena.

Para o estudo da adsorção do ^{137}Cs em trocadores inorgânicos, foram utilizados o fosfato de zircônio (ZP), o pentóxido de antimônio hidratado (HAP), e o fosfomolibdato de amônio (AMP).

Os trocadores inorgânicos foram usados sob a forma de pó (experimentos em "batch") e sob a forma de pastilhas que foram obtidas prensando-se o trocador com vários aglomerantes (teflon, PVA, sílica e alumina). As condições experimentais de impregnação de soluções de ^{137}Cs em pastilhas foram baseadas no trabalho de Enomoto e colaboradores⁽¹⁾.

Foi estudada a influência da composição da solução e das condições de produção das pastilhas (natureza e quantidade do aglomerante, temperatura de sinterização) na adsorção do césio. Os resultados obtidos mostra-

ram que este método não é viável para a solidificação de ^{137}Cs , uma vez que a adsorção do césio foi muito baixa.

No estudo da solidificação de ^{137}Cs por meio da técnica de coprecipitação, foi escolhido como coprecipitante do césio o AMP. Na solução contendo ^{137}Cs procedeu-se à síntese do AMP como descrito por Terada e colaboradores⁽⁷⁾, e a coprecipitação obtida para o césio foi de 90%. Após a coprecipitação, o AMP contendo ^{137}Cs é misturado com o teflon (1:1) e com o emprego de uma prensa hidráulica obtêm-se pastilhas de ^{137}Cs .

Discussão

Levando-se em consideração o rendimento de recuperação obtido para o ^{137}Cs e a simplicidade das operações químicas, a coprecipitação do césio com o AMP mostrou ser um método eficaz para a solidificação de ^{137}Cs .

A aplicação deste método para a solidificação de ^{137}Cs é útil na disposição de rejeitos de alta atividade, uma vez que elimina um produto de fissão de meia vida longa, simplificando a disposição dos constituintes remanescentes do rejeito. O césio solidificado com o AMP na forma de pastilhas, constitui o material de partida para a produção de fontes de ^{137}Cs .

Referências Bibliográficas

1. Enomoto, S.; Maeda, S.; Senoo, M. - A simplified method for preparation of ^{137}Cs pollucite γ -ray source. Inter.J.Appl.Radiat.Isot., **32**:595, 1981.
2. Smit, J. Van R.; Robb, W.; Jacobs, J.J. - AMP-Effective ion exchanger for treating fission waste. Nucleonics, **17**:116, 1959.
3. Jones, J.A. - Fabrication of ^{137}Cs sources. Oak-Ridge, ORNL, 1964 (ORNL-3675).
4. Warner, B.F. - La fabrication de sources de ^{137}Cs d'un Kilocurie. Energie Nucl., **1**:161, 1967.
5. Ottinger, C.L.; Pierre, E.E.; Schaich, R.W. - Preparation of a cesium (^{137}Cs) Borosilicato glass power source. Oak-Ridge, ORNL-3669.
6. Cunha, I.I.L.; Andrade e Silva, L.G. - Estabelecimento de um Método Radioquímico para a Separação de ^{137}Cs de Misturas de Produtos de Fissão. XVI Congresso Latino-Americano de Química, Rio de Janeiro, 1984.
7. Terada, K.; Hayakawa, H.; Sawada, K.; Kiba, T. - Silica gel as support for inorganic ion exchangers for the determination of cesium-137 in natural waters. Talanta, **17**: 955, 1970.