

## PROJETO DE COLUNA DE TROCA IÔNICA PARA RECUPERAÇÃO DE PLUTÔNIO

José Adroaldo de Araújo\*; Harko Tamura Matsuda\*;  
Afonso dos Santos Tomé Lobão\*; Adolfo Calixto Quesada\*\*  
\*Comissão Nacional de Energia Nuclear-IPEN-CNEN/SP  
\*\*Centro Atômico de Constituintes-CNEA/ARGENTINA

### RESUMO

Apresenta-se o projeto de uma coluna de troca iônica para recuperação de refugados de plutônio da fabricação de elementos combustíveis MOX. A coluna é construída em aço inoxidável 304 e vidro borossilicato, camisa de aquecimento e dispositivos para controle de temperatura e alívio de pressão. No projeto foram considerados os aspectos de segurança exigidos no manuseio de núcleos emissores alfa. O detalhamento e a execução do projeto foram realizados no IPEN. O equipamento é parte de uma unidade para a "Facilidade Alfa" do Centro Atômico de Constituintes.

### INTRODUÇÃO

Dentro do acordo de cooperação técnica Brasil-Argentina, iniciado em 1990, o Projeto Reciclagem de Combustíveis, constitui um dos programas estabelecidos pelos dois países na área do Ciclo do Combustível. Esse projeto tem como objetivo os trabalhos de pesquisa e desenvolvimento na fabricação de combustíveis cerâmicos de óxidos mistos (MOX) para reatores avançados.

Em reuniões técnicas ocorridas entre pesquisadores brasileiros (IPEN-CNEN/SP) e argentinos (CNEA), estabeleceu-se como primeira meta, a recuperação de plutônio de "scraps" da fabricação de combustíveis de óxidos mistos ((U,Pu)O<sub>2</sub>) resultantes dos trabalhos já desenvolvidos no laboratório de "Tecnologia de Plutônio" (TecnoPu) do Centro Atômico de Constituintes (CAC), Buenos Aires.

O processo global de recuperação de "scraps" envolve uma fase inicial de dissolução de pastilhas de (U-Pu)O<sub>2</sub> com HNO<sub>3</sub>, seguido da fase de separação dos actínidos de impurezas metálicas e, finalmente, a obtenção de óxidos. Esta última fase inclui o processo de evaporação e desnitração do produto em forno de microondas, refabricação das pastilhas MOX, sinterização e caracterização. Todos os trabalhos experimentais serão realizados com a participação de pesquisadores brasileiros na "Facilidade Alfa" do CAC, onde já existe toda a infra-estrutura necessária para este tipo de procedimento.

Na fase de separação entre as técnicas conhecidas e aplicadas normalmente na recuperação de U e Pu, optou-se pela técnica de separação por coluna de troca iônica, dadas as características e a composição do combustível a ser tratado [1,2].

Assim, apresenta-se neste trabalho, o projeto de uma coluna de troca iônica, observando-se as normas de segurança exigidas no manuseio de materiais radioativos de alta toxicidade e as condições operacionais em caixas de luvas [3]. O equipamento será implantado na "Facilidade Alfa", visando o tratamento de 100kg de "scraps".

### PROCESSO DE SEPARAÇÃO

O processo de separação U-Pu, em colunas trocadoras de íons, baseia-se, fundamentalmente, na diferença de afinidade dos íons complexos do tipo [Pu(NO<sub>3</sub>)<sub>6</sub>]<sup>2-</sup> que se formam com Pu<sup>4+</sup> em meio HNO<sub>3</sub> > 7M com aqueles que se formam com UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>, pelas resinas aniônicas fortes. Os complexos aniônicos de Pu<sup>4+</sup> apresentam uma distribuição de aproximadamente 3.500, ficando completamente retidos na coluna, enquanto que os nitratos complexos de UO<sub>2</sub><sup>2+</sup> apresentam uma distribuição de aproximadamente 8, com uma fraca sorção, podendo facilmente ser eluído mediante lavagem com HNO<sub>3</sub> 7M.

A solução resultante da dissolução de pastilhas de (U-Pu)O<sub>2</sub> com HNO<sub>3</sub> será utilizada como solução de alimentação para o processo de separação em coluna de troca iônica [4] que consta basicamente de:

- ajuste do estado de oxidação do plutônio a Pu<sup>4+</sup> com H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> e a concentração de HNO<sub>3</sub> a 7,5M.
  - percolação da solução de alimentação pela coluna contendo resina aniônica forte Dowex 1x4, previamente condicionada mediante lavagem com HNO<sub>3</sub> 7,5M.
  - lavagem da coluna com HNO<sub>3</sub> 7,5M para eluição do urânio retido.
  - eluição do plutônio retido com HNO<sub>3</sub> 3,5M.
- O produto, solução de nitrato de plutônio, segue as fases seguintes, até a obtenção dos óxidos.

### DADOS DO PROJETO

#### Dados do combustível.

- quantidade total: 100kg de "scraps" de fabricação de combustível MOX;
- composição: pastilhas de (U,Pu)<sub>2</sub> com relação U/Pu = 135.

#### Dados de processo.

- todas as fases do processo de separação são realizadas à temperatura de 60°C, devendo a coluna ser projetada com camisa de aquecimento e sistema de controle de temperatura no interior da coluna em pelo menos 3 pontos;
- a coluna deve ter uma capacidade mínima para 500mL de resina, correspondente a 40cm de altura do leito da coluna;
- a coluna deve ter sistema de alimentação de soluções que permita distribuição homogênea das mesmas no topo do leito da resina;
- o processo ocorre totalmente em meio HNO<sub>3</sub> (concentração máxima=7,5M);
- a coluna deve dispor de sistema de alimentação de soluções que permita a troca da resina, em operação da caixa de luvas;
- serão utilizadas duas colunas em série para minimização de perdas;
- será processada, em cada operação, a solução resultante da dissolução de 3kg de pastilhas (U,Pu)O<sub>2</sub>.

### PROJETO CONCEITUAL

A coluna é composta por corpo de vidro com camisa de aquecimento, contendo internamente um êmbolo em aço inoxidável, com uma placa porosa de aço inoxidável sinterizado. Esta atua como meio filtrante, permitindo a distribuição homogênea da solução na superfície superior da resina, mantendo ao mesmo tempo o nível do leito da resina. O conjunto êmbolo-placa de aço inoxidável, deve deslizar ao longo da parte livre da coluna por motivo de segurança, em casos de aumento da pressão interna.

A parte inferior da coluna dispõe, também, de uma placa de aço inoxidável sinterizado que serve de suporte do leito da resina.

O controle da temperatura interna da coluna será feito por termopares e o controle da pressão interna por manômetro e válvula de alívio. Esses dispositivos de segurança devem ser

instalados na flange inferior e superior da coluna, respectivamente.

#### Projeto detalhado.

- material da coluna: vidro borossilicato
- diâmetro interno da coluna: 40,00mm
- diâmetro externo da coluna: 50,00mm
- comprimento útil da coluna: 700,00mm
- diâmetro externo da camisa de aquecimento: 80,00mm
- temperatura de operação: 60°C
- contra-flange superior e inferior: alumínio com revestimento de epoxi, com dimensões e tolerâncias segundo as normas Schott SHE 80
- guarnição da contra-flange: baquelite Ø 14,00 x 125,00mm
- flange superior e inferior: aço inoxidável AISI 304
- parafusos das flanges: aço inoxidável AISI 304
- juntas das flanges: teflon Ø 2,50 x 108,00mm, referência Schott
- entrada e saída do líquido de aquecimento: oliva flangeada na camisa de aquecimento, com inclinação de 40° a 7,5cm da base da coluna
- êmbolo: aço inoxidável AISI 304, com vedações em anéis de viton, dimensões de 1" x 20mm x 470mm, com placa de aço inoxidável sinterizado na parte inferior.

**Dispositivo de segurança.** O controle de temperatura é feito por três termopares distanciados de 10cm, no interior da coluna. O termopar é do tipo Pt 100, com diâmetro do poço de 6,35mm e comprimento do poço de 45cm.

O controle da pressão interna é feito por manômetro de membrana, de 1 a 2bar, e válvula de alívio com pressão de abertura a ser determinada em testes operacionais.

As Figuras 1, 2 e 3 mostram a coluna de vidro com camisa de aquecimento, o êmbolo interno em aço inoxidável e o posicionamento dos dispositivos de segurança, respectivamente.

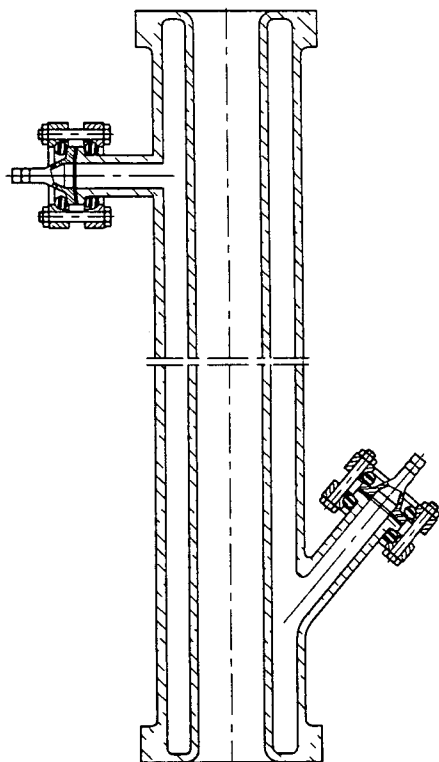


Figura 1 Coluna de vidro com camisa de refrigeração

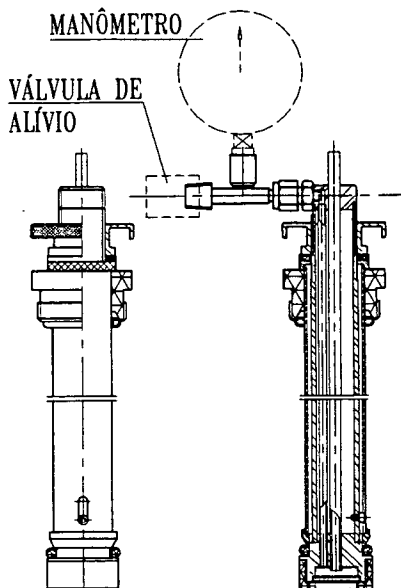


Figura 2 Êmbolo da coluna

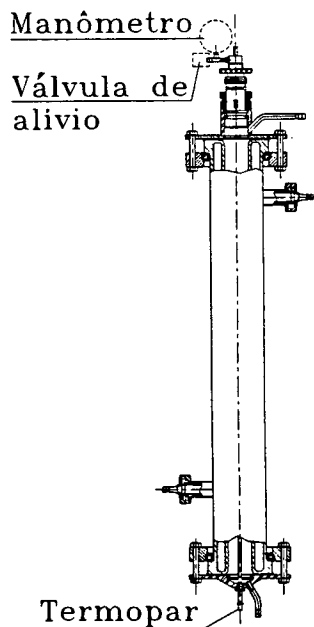


Figura 3 Dispositivos de segurança

#### CONCLUSÃO

O projeto da coluna foi concluído e totalmente executado no IPEN-CNEN/SP. Os testes operacionais serão realizados no CAC, Buenos Aires e, em seguida, implantado na "Facilidade Alfa", para tratamento e 100kg de "scraps" para recuperação de Pu e refabricação de pastilhas MOX.

Basicamente, a coluna não difere daquela utilizada em processos químicos convencionais. Entretanto, para a aplicação desse tipo de coluna no tratamento de materiais de radiotoxicidade alta, que exige operações em caixas de luvas estanques, considerou-se no projeto, aspectos adicionais de segurança, após a avaliação de possíveis riscos neste tipo de instalação.

Os principais focos de acidentes considerados foram a elevação da temperatura no leito da resina, formação de gases, com conseqüente aumento da pressão, e, ainda, a necessidade de manter o leito da resina sempre úmido, durante e após a operação.

O projeto de coluna apresentado é o resultado de todas as

considerações citadas, somadas a outras, como facilidades operacionais para trabalho em caixa de luvas e limitações de "layout" da instalação.

## REFERÊNCIAS

- [1] RYAN, J.L.; WHEELWRIGHT, J. Recovery and Purification of Plutonium by Anion Exchange. *Industrial and Engineering Chemistry*, 51: 60-65, 1959.
- [2] AIKIN, A.M. An Ion Exchange Process for the Recovery of Plutonium from Irradiated Fuels. *Chemical Engineering Progress*, 53: 127-133, 1957.
- [3] MILES, F.W. Ion-Exchange-Resin System Failures in Process Actinides. *Nuclear Safety*, 9: 394-405, 1968.
- [4] TALLENT, O.K.; MAILEN, J.C. Study of the Dissolution of Refractory  $\text{PuO}_2$  in Nitric-Hydrofluoric Acid Dissolvents at 100°C. *Nuclear Technology*, 32: 167-174, 1976.

## ABSTRACT

An ion exchange column design for plutonium recovering from scraps of the MOX fuel elements fabrication is presented. The proposed column is constructed in 304 stainless steel and borosilicate glass provided of heating-jacket and temperature control and pressure relief devices. Safety aspects required for alpha emitters handling have been also considered. The design and construction were performed totally at IPEN-CNEN/SP. The equipment will be used in the plutonium separation step as a part of an installation named "Facilidade Alfa" at the Centro Atomico de Constituyentes-CNEA/Buenos Aires, where other processes, including dissolution, denitration by microwaves and final steps of MOX pellets refabrication will be performed. The acquaintance of advanced fuel cycle technology and implementation of recycling project within Brasil/Argentina nuclear agreement are the main purposes of this join-venture programme.