21



- 3.3.1.

UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA DE MEXICO

FACULTAD DE ESTUDIOS SUPERIORES CUAUTITLAN

ETAPAS QUE SIGUEN LOS COMBUSTIBLES NUCLEARES URANIO Y PLUTONIO

T E S I S QUE PARA OBTENER EL TITULO DE: INGENIERO QUIMICO P R E S E N T A : HECTOR SOLORZANO DIAZ

ASESOR: M. EN C. RAMON FUENTES VILLASEÑOR

CUAUTITLAN IZCALLI, EDO. DE MEX.,



Universidad Nacional Autónoma de México



UNAM – Dirección General de Bibliotecas Tesis Digitales Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS © PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.



FACULTAD DE ESTUDIOS SUPERIORES CUAUTITLAN UNIDAD DE LA ADMINISTRACION ESCOLAR DEPARTAMENTO DE EXAMENES PROFESIONALES

ASUNTO: VOTOS APROBATORIOS

redad Nacyonae Newska le Mexico

RESENTE

DR. JUAN ANTONIO MONTARAZ CRESPO DIRECTOR DE LA FES CUAUTITLAN U. N. A. M. FACULTAD DE ESTUDIC, SUPERIORES CUAUTITURS



ATN: Q. Ma. del Cartmene Gatche Mijares Jefe del Departamento de Exámenes Profesionales de la FES Cuautitán

on base en el art. 28 del Reglamento General de Exámenes, nos permitimos comunicar a sted que revisamos :

1	La tesis:	Etapas qu	ie siguen	los Combus	tibles
]	Nucleares	<u>Uranio</u> y	Plutonio	•	
•			-	,	· ·C
					,
ie presenta <u>el</u> pas	ante: <u>Héct</u>	or Solór:	zano Díaz		
in número de cuenta:	9155964	<u>–5</u> par	a obtener el	título de :	,
	Ingenie	ero Químic	20		

onsiderando que dicho trabajo reúne los requisitos necesarios para ser discutido en el (AMEN PROFESIONAL correspondiente, otorgamos nuestro VOTO APROBATORIO.

T E N T A M E N T E OR MI RAZA HABL/ autitlán Izcalli, Méx. a	ARA EL ESPIRITU" a <u>10</u> de <u>Octubre</u> de <u>2000</u> .
	M on G. Bomén Friender Willingston Cate
ESIDENTE	M. en C. Ramon Fuentes VIIIasenor
CAL	I. Q. Ana Leticia Fernández Osorio Que Litim. Foloz d.
CRETARIO	M. en C. Ines Nicolas Vázquez
	M. en C. Cesar Soto Figueroa
GUNDO SUPLENTE	Dra. Esther Agacino Valdés
-	U A

A MI AS ES OR

M. en C. Ramón Fuentes Villaseñor
Y HONORABLE JURADO
I. Q. Ana Leticia Fernández Osorio
M. en C. Ines Nicolas Vázquez
M. en C. Cesar Soto Figueroa
Dra. Esther Agacino Valdés

A MIS MAESTROS

Por sus valiosas observaciones, estímulo y orientación que me proporcionaron para concluir esta tesis y examen profesional.

۰.

·

A MI ESCUELA F.E.S. CUAUTITLAN Con respeto y cariño

ŝ,

ş,

A MIS PADRES Que con su esfuerzo y apoyo incondicional hicieron posible el haber logrado esta carrera.

A MIT FAMILIARD

<u>ء</u>،

١

ų

•

.

<u>I N D I C E</u>

ų,

CAPITULO PAGINA PROLOGO RESUMEN DE LOS CONCEPTOS BASI 1 COS DE FISICA NUCLEAR Y DE --REACTORES NUCLEARES . A.- Antecedentes Históricos-de la Física Nuclear. . . . 1 B.- Estructura Atómica. 4 8 D.- Masa y Energía. 10 E.- Radiactividad 12 F.- Reacciones Nucleares. 15 G.- Fusión y Fisión Nuclear . . . 17 H.- Empleo de la Energía de fisión. 20 11 CICLO DEL COMBUSTIBLE NUCLEAR. . . . A.- Generalidades 26 B.- Materiales Combustibles 27 C.- Producción de Combustibles Nu--31 D.- Separación de los Isótopos del-Uranio 38 111 REPROCESADO DE COMBUSTIBLES. A.- Generalidades 68 B.- Productos de Fisión 69 C .- Enfriamiento de los Elementos -combustibles irradiados . . . 73 D.- Tratamientos Previos. 76 E.- Tratamientos de Separación. . . 81 F.- Química de los Elementos Pesados. 82

.

1V

v	
DESCRIPCION DE LOS TRATAMIEN	
TOS DE SEPARACION.	
A Separaciones por volatiliz <u>a</u>	
ción	86
B Procesos Pirometalúrgicos	88
C Separaciones por Intercambio	
Iónico	91
D Separaciones por Extracción	95
TRANSPORTE Y ELIMINACION DE LOS	
DESECHOS NUCLEARES.	
A Almacenamiento y Transporte	
del Combustible gastado	108
B Clasificación de los Productos	
de desecho	112
C Opciones para la Eliminación	
de desechos Nucleares	113-
D Almacenamiento y Eliminación	•
a largo Plazo de Combustible	
Nuclear G astado	115
E Almacenaje y Eliminación de Pr <u>o</u>	
ductos de Fisión Provenientes -	
de Plantas de Reprocesamiento	120
F Eliminación de Otros Materiales.	123
G Ejemplos	126
CONCLUSIONES	130
BIBLIOGRAFIA	134

١

V

•

,

<u>O B J E T I V O S</u>

<u>Objetivos Generales</u>: Presentar un trabajo monògráfico de la aplica ción de la Ingeniería Química en la Ingeniería Nuclear, específica mente exponiendo la aplicación de algunas de las operaciones básicas de la Ingeniería Química y bajo que circunstancias se utilizauna u otra de estas operaciones durante el ciclo que sigue el combustible Nuclear.

<u>Objetivos Farticulares</u>: Realizar una descripción del camino que si gue el material combustible Nuclear y las etapas por las que estepasa, desde su obtención de la naturaleza, su preparación para ingresar a un reactor nuclear, los tratamientos para su recuperación al salir del reactor, hasta su transporte y eliminación de maneradefinitiva.

Proporcionar la explicación y las ecuaciones necesarias para el di seño y optimización de una etapa de difusión gaseosa para separarlos isótopos uranio-235 y uranio-238, así como las ecuaciones para balances de materia, potencias y número de etapas de un sistema completo multietapas de difusión gaseosa.

PROLOGO

En este trabajo de tesis se presenta una descripción del ci-clo del combustible nuclear, comprendiendo esto, toda la trayectoria y las diversas etapas que sigue el material combusti ble de un reactor nuclear. Se comienza con una explicación re sumida de los conceptos básicos de física nuclear que se rela cionan y tienen aplicación en el tema del trabajo; proporcionándose como aplicación de la energía de fisión nuclear la enu meración de los principales tipos de reactores que utilizan combustible nuclear. A continuación, se empieza con la explicación de las etapas del ciclo del combustible nuclear; ini--ciándose con una presentación de los tipos y característicasde los materiales combustibles, la obtención del combustiblenuclear desde sus fuentes en la naturaleza y la preparación-del combustible para su ingreso al reactor nuclear. En la par te de la preparación del combustible para su ingreso al reactor, se hace énfasis en la etapa de separación isótópica deluranio, en la que se expone en detalle la operación de difu---sión gaseosa, proporcionándose las ecuaciones necesarias para el diseño de una etapa de difusión gaseosa y su optimización, el número de etapas necesarias en un sistema de difusión y otros parámetros de interés.

En la siguiente parte se establece el tratamiento del combusti ble nuclear a su salida del reactor, se ofrece una explica---ción de los demás productos de fisión del reactor y de la quí mica de los elementos pesados. Posteriormente, se enumeran ydesglosan los métodos de separación del combustible nuclear de los demás productos del reactor para su posterior reutilización (procesos de disolución œuosa, volatilización y pirometalúrgicos), proporcionándose la configuración y accesorios de algunos equipos que se pueden utilizar en el método de extracción .

Finalmente, se plantea el almacenamiento, transporte y eliminación de los desechos, ofreciéndose algunas aplicaciones ---prácticas de la transferencia de calor.

CAPITULO 1

RESUMEN DE LOS CONCEPTOS BASICOS DE FISICA NUCLEAR Y DE REACTORES NUCLEARES.

A.- Antecedentes Históricos de la Física Nuclear. (1)

Hace más de 2400 años el filósofo griego Demócrito nacido en el <u>a</u> ño 460 a. de C. intuyó que el mundo debía estar formado por sim -ples y minúsculos granos de materia primordial a los que dió el -nombre de átomos, que en griego quiere decir "indivisibles". Cadauno sería distinto según la sustancia a la que perteneciera. Hasta ahí, el filósofo tenía razón. Lo erroneo es que, a la hora de expli car las diferencias entre unas partículas y otras, pecó de ingenui dad: los átomos del agua serían suaves y redondeados; los del fuego estarían cubiertos de espinas y los de la tierra tendrían arrugas.

Su revolucionaria teoría tuvo que luchar con la fama y autoridad del gran maestro Aristóteles, quien postulaba la existencia de una materia primigenia que existía tan solo potencialmente hasta que se manifestaba en los cuatro elementos que componían todos 'os seres y objetos: agua, tierra, aire y fuego.

Durante siglos, los alquimistas que jamás creyeron en el átomo, se empeñaron en buscar dicha materia prima sin ningún éxito.

Tuvieron que pasar muchos años para que, en 1803, el químico ingles John Dalton desempolvara el viejo término acuñado por Demócrito.S<u>e</u> gún su teoría, la materia se podía dividir en dos grandes grupos: el de los elementos y el de los compuestos.

Los primeros serían unidades simples o fundamentales, de las que existiría un número reducido, y a las que denominó "átomos". Los segundos serían combinaciones de los primeros que, de acuerdo conciertas reglas, darían lugar a estructuras mas complejas denominadas moléculas. Acababa de poner las bases de la física de partículas moderna.

Ya en las postrimerías del siglo, en 1891, el físico ingles J. J. Thompson iba a dar,sin pretenderlo, con una nueva clave de la composición de la materia. Mientras estudiaba la naturaleza de los rayos catódicos, observó que estos estaban formados por enormes -cantidades de pequeñas partículas cargadas de electricidad negativa. La existencia de dichos corpúsculos, los electrones, había sido --predicha por el Físico Irlandés Stoney, pero Thompson fué el primero en aisiar uno de ellos, que resultó tener una masa 1836 veces menorque la del átomo de Hidrógeno, el menor de todos.

Así que el átomo ya no podía ser la partícula más pequeña; ni tan s<u>i</u> quiera era indivisible.

El hecho de que el electrón formara parte de él planteaba el cuestio namiento de fondo: ; cómo se conformaba la estructura atómica ? --La primera gran aproximación al concepto actual se debe a Ernest Rutherford, un Físico de la Universidad de Manchester que en 1911 propuso un modelo practicamente calcado del sistema solar: el átomo estaría formado por un nucleo central, con carga positiva, en el que se concentraría casi toda la masa y alrededor del cual girarían en órbitas concéntricas los electrones desempeñando un papel semejanteal de los planetas. Esta teoría fué plenamente confirmada por el Físico Danés Niels Bohr.

Ahora bién, si se había descubierto una partícula más pequeña que el átomo, bién podrían existir otras de características similares.

En 1914 el propio Rutherford dió con el protón, mucho mayor que el electrón, pero todavía menor que el átomo. También poseía carga elé<u>c</u> trica, aunque en este caso, de signo positivo.

El Inglés James Chadwick remató la terna al descubrir en 1932 el neu trón, que, junto con el protón, forma el núcleo atómico.

La familia parecía estar completa. Pero las investigaciones realizadas en los años 30 sobre la desintegración radiactiva, en particular el estudio sobre la llamada desintegración beta, iban a introducir <u>u</u> na nueva y misteriosa partícula.

De las observaciones y mediciones llevadas a cabo en los laboratorios parecía deducirse que durante el proceso de desintegración nuclear desaparecía una pequeña cantidad de energía, algo que según la Física es imposible.

La hipótesis propuesta en 1931 por el Físico Austriaco Wolgang Pauli más bién parecía una solución de compromiso, aunque fué aceptada como un mal menor. Este científico sospechó que durante la desintegración, además de las partículas ya conocidas, el núcleo atómico de-bía expulsar una nueva partícula que era portadora de la energía que faltaba.

Este nuevo miembro, que no tendría carga eléctrica ni practicamente masa, fué bautizado por el Físico Italiano Enrico Fermi con el ----

nombre de "neutrino " (pequeña cosa neutra). Pauli estaba en lo cierto, pero no fué fácil comprobarlo. El neutrino esquivó una y otra vez los intentos de los físicos por atraparlo, ya que apenas interacciona con la materia; puede atravesar la tierra sin -interaccionar con nada. Los físicos se plantearon incluso modificar el principio de conservación de la energía. Pero, por fín en 1956, Cly de L. Cowan y Frederick Reines lograron capturarlo en las emanaciones de un reactor nuclear.

Con la propuesta de Pauli había quedado resuelta la estructura at<u>ó</u> mica, que estaría integrada por 4 tipos de partículas - electrón, protón, neutrón, y neutrino - consideradas durante mucho tiempo como fundamentales. Pero en los años 50 y 60, los primeros aceleradores de partículas revelaron que estos elementos no estaban solos, sino que pertenecían a una familia conocida como los hadro--nes. A mediados de los años 60, el número de partículas elementales se acercaba al centenar, sin embargo se encontró que la mayoría de estas partículas no son elementales, sino partículas com--puestas o estados excitados de las auténticas partículas elementales: 6 quarks, 1 electrón y 3 neutrinos.

B.- Estructura Atómica. (1) (2) (3) ,

Las partículas fundamentales (elementales) son, en teoría, los com<u>o</u> nentes irreductibles del mundo material. En 1972 se consideraba la existencia de más de 20 partículas elementales, aunque el número exac to depende del tipo de clasificación empleado. Hasta 1998 se conocen 10 partículas elementales de la materia. Las nuevas técnicas experimentales conducen al decubrimiento de un mayor número de partículas; los avances en la teoría indican que algunas están compuestas, a su vez, por partículas. Por ejemplo, los átomos y los núcleos atómicosse consideraron en un tiempo como partículas sin componentes. El átomo que es la unidad básica de cualquier elemento químico, está formado por un núcleo central rodeado por electrones.

El número de electrones determina sus características químicas y enlos átomos de carga eléctrica neutra, su carga es igual a la carga positiva del núcleo. El electrón es portador de una unidad de cargaeléctrica negativa (que se define como 1.6 X 10⁻¹⁹ coulomb (C)) y -tiene una masa en reposo igual a 1/1836 veces la masa del átomo de Nidrógeno. Los electrones que emiten los átomos radiactivos se conocen como rayos beta (β), y tienen energías superiores a varios Mev -(millones de electrón-volts).

Los núcleos de los átomos están formados de protones y neutropes, a excepción del núcleo del átomo de Hidrógeno, que está formado sólo-por un protón.

Un protón es portador de una unidad de carga eléctrica positiva i-gual en magnitud que la del electrón y su masa en reposo es igual a 1.0072764 unidades atómicas de masa (uma) (cuando l uma (1.66057 \times 10^{27} kg); se define como 1/12 de la masa de un átomo neutro del isótopo más abundante de carbono). Es idéntico al núcleo del átomo de Hidrógeno. El protón está formado por 3 quarks y no son emitidos en forma espontanea por los núcleos atómicos.

El <u>neutrón</u> tiene una masa ligeramente mayor que la del protón, pero carece de carga eléctrica, por lo cual no puede detectarse su presen cia por medio de campos eléctricos o magnéticos; el neutrón está for mado por 3 quarks y su presencia solo puede determinarse por medio de su interacción con otras partículas.

Se han reconocido varios tipos fundamentales de fuerzas en las que se basan todos los fenómenos naturales. La primera es la interacción fucrte que actua en el seno del núcleo atómico. Su oponente es la interacción débil responsable de las desintegraciones radiac------

tivas y que junto al electromagnetismo forma la llamada fuerza elec trodébil, por último está la más famosa de todas, la gravitación. El conocimiento de esas fuerzas ha servido a la ciencia para simpli ficar poco a poco el árbol genealógico de la materia, extremadamente complicado tras la aparición de cientos de componentes durante los años 60. Así, para resumir, las cosas, Murray Gell Mann, del --Instituto de Tecnología de California y George Zweig, por entoncesinvestigador del centro Europeo de Física de partículas (CERV), en Ginebra, propusieron en 1964 reunir los cientos de partículas per tenecientes a la familia de los hadrones - es decir, las que son sen sibles a las interacciones fuertes - en un único grupo. Entre ellas estaban el protón y el neutrón, además de una lista de partículas que pasa del centenar. Todas ellas tenían una característica común: estaban compuestas por unos corpúsculos hasta entonces desconocidos a los que llamaron " quarks ".

Paralelamente, comenzaba a establecerse una analogía entre los ---quarks y los "leptones ", la otro gran familia de partículas que--solo son sensibles a la interacción electrodébil.

Tabla 1.a.- Partículas de Materia.

LEPTONES			QUARKS		
Electrón	Neutrino del Electrón.	Up (arriba)	Down (abajo)		
Responsable de la elec- tricidad y- reacciones- químicas. tiene una - carga con - valor de-1.	Partícula sin carga eléctri ca. Miles de- millones atra viesan la tie rra cada seg.	Tiene carga eléctrica - de + 2/3.	Tiene carga <u>e</u> léctrica de - - 1/3 .		
Muón	Neutrino del Muón.	Charm (encanto)	Strange (estraño)		
Un pariente cercano del electrón, - mas pesado. Vive duran- te solo 2mi llonésimas de segundo.	Surge entre - los muones - cuando algu - nas partícu - las se desin- tegran.	Más pesado- que el Up. Descubierto en 1974.	Más pesado que el Down. Descu bierto en 1964.		
Tau	Neutrino del Tau.	Top (cima)	Bottom (fondo)		
Todavía más pesado y muy inesta- ble. descu bierto en - 1975.	Aparéce en procesos de - alta energía- que involu cran al Tau.	Todavía más pesado,se - descubrió - recientement	Más pesado que el Charm.Descu bierto en 1977. e		
	LEPTO Electrón Responsable de la elec- tricidad y- reacciones- químicas. tiene una - carga con - valor de-l. Muón Un pariente cercano del electrón, - mas pesado. Vive duran- te solo 2mi llonésimas de segundo. Tau Todavía más pesado y muy inesta- ble. descu bierto en - 1975.	LEPTONESElectrónNeutrino del Electrón.Responsable de la elec- tricidad y- reacciones- químicas.Partícula sin carga eléctri ca. Miles de- millones atra viesan la tie rra cada seg.químicas. tiene una - carga con - valor de-1.Partícula sin carga eléctri ca. Miles de- millones atra viesan la tie rra cada seg.MuónNeutrino del Muón.Un pariente cercano del electrón, - mas pesado.Surge entre - los muones - cuando algu - nas partícu - las se desin- tegran.Todavía más pesado y muy inesta- ble. descu bierto en -Aparéce en procesos de - alta energía- que involu cran al Tau.	LEPTONESQUAElectrónNeutrino del Electrón.Up (arriba) Up (arriba)Responsable de la elec- tricidad y- cac. Miles de- millones atra químicas. viesan la tie tiene una - carga con - valor de-1.Tiene carga eléctrica - de + 2/3.MuónNeutrino del Muón.Charm (encanto)Un pariente cercano del electrón, - cuando algu - mas pesado.Surge entre - los muones - en 1974.Charm (encanto)Un pariente s pesado.Surge entre - los muones - en 1974.Más pesado- que el Up. Descubierto en 1974.Todavía más pesado y pesado y ble. descu de segundo.Neutrino del Tau.Todavía más pesado, se - alta energía- de scubrió - cran al Tau.1975.		

.

۰,

Tabla 1.b.- Partículas de Fuerza.

.

÷

.

		A	
Gluones	Fotones	Bosones	Gravitones
S on los que trans portan la fuerza- que mantiene uni- dos a los quarks. La energía libera da en una explosión nuclear es el re- sultado de la fue <u>r</u> za fuerte.	Son los que trans portan la energía electromagnética- La electricidad,- la luz, el megnetís- mo y la química son el resultado de la- fuerza electromagné tica. También la vi da.	Llevan la fuerza débil y son respon sables de al gunas formas de radiactivi dad.	Transportan la gravedad (no - han sido, detec tados).

· · ·

¥,

C.- Isótopos. (2) (3) (4)

Los isótopos son elementos que tienen características químicas -idénticas, pero difieren en su masa atómica; es decir ciertos áto mos de un mismo elemento tienen diferente número de neutrones ensu núcleo.

Existen más de mil isótopos de los elementos conocidos; de éstos, solo 320 existen en forma natural y de ellos en forma aproximada, 40 son inestables y radiactivos.

Por ejemplo, el Hidrógeno tiene 3 isótopos, uno de ellos es el H<u>i</u> drógeno ordinario con un protón en el núcleo; otro es el deuterio, cuyo núcleo está formado por un protón y un neutrón, y el tercero es el tritio, formado por un protón y dos neutrones.

El más pesado de los elementos naturales, es el Uranio, con 92 -protones; cuando éste tiene 146 neutrones se tiene el U-238 que representa el 99.28 % del Uranio natural; el resto de éste elemen to está formado por 0.006 % de U-234 y 0.71 % de U-235. Este últi mo isótopo contiene 92 protones y 143 neutrones, es el único de los 3 que se físiona con facilidad y también es uno de los más -empleados en los reactores de potencia nuclear.

En la figura 1.1 se observa una representación del número de neutrones existentes en cada uno de los 270 núcleos estables conocidos, en función del correspondiente número de protones. Se ha representado también la recta diagonal, sobre la que se sitúan losnúcleos con igual número de neutrones y protones. Como se observa en la mayoría de los núcleos estables de número másico pequeño, hasta 40, los números de neutrones y protones son iguales o muy aproximadamente iguales. Dicho de otra manera, la relación neutrón/ protón es exactamente la unidad o ligerísimamente superior; en -cambio, para valores crecientes del número másico - o atómico - un núcleo es estable cuando contiene mayor número de neutrones que de protones. Así, se puede observar que en los núcleos estables máspesados, de número atómico superior a 80, la relación neutrón/pro tón ha subido hasta aproximadamente 1.5.



.

١,•

Figura 1.1.- Número de neutrones existentes en los núcleos estables y radiactivos en función del correspondiente número de protones.

es.

D_{-} Masa y Energía.(2) (3) (4) (5)

La energía y la masa se emplean en forma indistinta en física nu clear y la energía total de un núcleo puede determinarse por medio de su masa exacta "m", la cual se relaciona con su energía, a través de la ecuación de Einstein:

(1.1)

en la que "c" es la velocidad de la luz, igual a 3X10^{'o} cm/s. Esta ley de la equivalencia de la masa y la energía unifica dos l<u>e</u> yes aceptadas desde hace tiempo: la ley de la conservación de la <u>e</u> nergía y la ley de la conservación de la materia. De manera simple a estas leyes se les puede considerar, con un alto orden de aprox<u>i</u> mación, que resulta adecuado para cualquier campo de la ingeniería excepto para la energía nuclear. La masa exacta del núcleo difiere sólo en unas pocas centésimas de un porcentaje de un número entero de la masa del protón, pero esta pequeña desviación es altamente significativa en la teoría nuclear, ya que esto mide la diferencia en energía entre el núcleo y sus componentes separados, esto es, su energía de amarre.

Masa Relativista.

Cuando la velocidad de las partículas en movimiento se aproxima a la de la luz, la determinación de la energía cinética por medio – de $1/2 m_0 v^3$ falla; es necesario, entonces, aplicar la ecuación --(l.l) y usar la masa relativista, una función que aumenta con la velocidad de acuerdo con la ley:

$$m = m_o / \sqrt{1 - (v/c)^2}$$
 (1.2)

en donde "mo" es el valor de la masa en reposo (esto es, la masa según la mecánico newtoniana) y "v" la velocidad de la partícula.

Energía de Amarre.

Con la relación entre la masa y la energía, es posible determinar una importante propiedad del núcleo: su energía de amarre,que es la energía necesaria para desintegrar un núcleo en sus partículas componentes y es la medida de su estabilidad: cuanto mavor es la <u>e</u> nergía de amarre, mayor es la estabilidad del núcleo.

Dividiendo la energía de amarre de los núcleos por el número de -nucleones, se obtiene un promedio de la energía de amarre por nu cleón.

Se han representado en la figura 1.2 valores de la energía de enlace por nucleón para algunos núcleos atómicos en función del númeromásico. La mayoría de los puntos (núcleos) se distribuyen sobre la curva, o están muy próximos a ella. Esta curva muestra que la -energía de enlace por nucleón aumenta bruscamente para núcleos de número másico pequeño, hasta alcanzar un máximo alrededor de entre-8 y 9 Mev en la zona de masas comprendida entre 50 y 75; a partir de aquí, la energía de enlace por nucleón disminuye de modo constan te.

La mayor energía de enlace por nucleón (estabilidad) de los nú--cleos con zone de masas comprendidas en el máximo de la curva, se atribuye a la presencia de capas completas - o cerradas - de neutro nes, de protones o de ambos. Esto es análogo a lo que ocurre con los elementos inertes, los cuales poseen capas cerradas de electrones que les confieren gran estabilidad química, así también estas especies nucleares muestran una mayor estabilidad nuclear. La energía de enlace tiene su justificación admitiendo la existencia de las fuerzas intranucleares. En primer lugar se encuentran las fue<u>r</u> zas atractivas entre los nucleones, todas ellas del mismo orden demagnitud, es decir, protones atraen a otros protones, neutrones atr<u>a</u> en a neutrones y protones atraen a neutrones.



Figura 1.2.- Energía de amarre por nucleón en función del número - másico.

Esta fuerza solamente actúa a distancias muy cortas, del orden de -10^{-13} cm. Como consecuencia de su corto alcance, la fuerza atractiva total es proporcional al número de nucleones existentes en el núcleo. Además de las fuerzas de corto alcance (atractivas), existen lasfuerzas repulsivas de caracter electrostático que se ejercen entrelos protones y compiten con las fuerzas atractivas.

E.- Radiactividad. (2) (3) (4)

La radiactividad se presenta cuando un núcleo inestable se somete – a desintegración atómica, emitiendo partículas \propto , β , o β ⁺, o bién radiación electromagnética en forma de rayos x o γ .

Partículas alfa (\propto).- Son idénticas al núcleo del átomo del Helio. La emisión de una partícula alfa (\propto) da lugar a la creación de un nuevo núcleo, en el cual el número atómico se reduce en dos unidades y la masa atómica en cuatro unidades.

Partículas beta (β^{-}).- El decaimiento por emisión de una partícula beta (β^{-}) se logra cuando el núcleo de un átomo emite un electrón. El núcleo en sí no contiene electrones, de manera que, en la desintegración beta (β^{-}), el electrón procede de la conversión espontánea de un neutrón en un protón, según el esquema siguiente:

Neutrón — Protón + Electrón (partícula beta) + Neutrino 🧉

La partícula supletoria, neutra, de masa prácticamente nula, el neu trino se lleva parte de la energía liberada en la transformación ra diactiva.

Positrón (β^{+}).- Es una partícula con masa igual a la del electrón y carga también igual en magnitud, pero de signo opuesto. La emisión de un positrón se refleja en una disminución del número atómico en una unidad. La formación del positrón se realiza como resultado dela transformación que se muestra en el esquema siguiente:

Protón - Neutrón + Positrón + Neutrino

Aunque se conocen numerosas especies radiactivas que muestran actividad beta positiva, ninguna de ellas aparece en el funcionamiento de los reactores nucleares. Rayos x-son pérdidas energéticas, que se presentan en los ajustes de energía, cuando los electrónes se mueven entre las capas orbitales exteriores cercanas al núcleo.

Captura de un electrón (EC).- Se efectua cuando un átomo inestable decae por captura de un electrón orbital en el núcleo, lo cual da po resultado una disminución del número atómico en una unidad. Este ele trón capturado se combina luego con un protón para formar un neutrón más un neutrino; el resultado neto es asímismo un aumento de la rela ción neutrón-protón. Esta captura da lugar a la creación de una va-cante en la capa electrónica inmediata al núcleo, la cual se ocupa en forma inmediata al moverse un electrón de una capa exterior, produciéndose así los rayos x característicos.

Rayos gamma (δ).- Son radiaciones electromagnéticas penetrantes, de gran energía, esencialmente idénticas a los rayos x. La única dife-rencia entre los rayos gamma y los rayos x estriba en que los primeros proceden de un núcleo atómico, mientras que los segundos se originan mediante procesos que tienen lugar fuera del núcleo.

Aparece radiación gamma, en una transformación radiactiva, cuando el núcleo resultante queda en lo que se llama un estado excitado, es d<u>e</u> cir, un estado que posee mayor energía interna que el estado normal o fundamental de dicho núcleo. El exceso de energía se emite⁻entonces casi instantáneamente, en forma de radiación gamma.

Ley cinética para el decaimiento radiactivo.- Cualquier núcleo de un isótopo radiactivo tiene una cierta probabilidad de romperse en una unidad de tiempo. El número -dN de núcleos que se descomponen en el tiempo dt (el número de núcleos radiactivos decrece con el tiempo, por lo que dN es negativo) es, por consiguiente, proporcional al número N de núcleos radiactivos presentes normalmente en el sistema y también al intervalo de tiempo en cuestión: -dN ∞ Ndt, o:

$$dN/dt = -\lambda N \qquad (1.3)$$

donde la constante de proporcionalidad se denomina constante de d<u>e</u> caimiento.

Las variables en la ecuación (1.3) son N y t. Reagrupando esta ecuación para separar N y t en lados opuestos, se tiene:

$$dN/N = - \lambda dt$$

Integrando desde No a N y to = O a t:

$$\int_{\lambda_{0}} \frac{dN}{N} = -\int_{0}^{\lambda} dt$$
$$\ln \frac{N}{N_{0}} = -\lambda t$$

y por la propiedad de los logaritmos (ln x = s equivalente a $---x = C^{5}$):

$$\frac{N}{N_o} = e^{-\lambda t}$$

$$N = N_o e^{-\lambda t}$$
(1.4)

Por lo tanto, si N₀ es el número inicial de núcleos inestables, el número de núcleos que quedan después de un tiempo t está dado por la ecuación (l.4). La constante de decaimiento λ se expresa en s⁻¹ (o en la inversa de cualquier otra unidad de tiempo). La ecuación (l.4) se representa en la figura siguiente (l.3):



Figura (1.3).- Desintegración radiactiva en función del tiempo.

Para cada núcleo radiactivo hay un intervalo de tiempo T fijo, ll<u>a</u> mado vida media, durante el cual el número de núcleos que había al comienzo del intervalo se reduce a la mitad al término del mismo. Así, si se tienen inicialmente N_o núcleos (`o átomos), después del intervalo de tiempo T sólo quedan N_o/2, después de 2T, N_o/4 y así sucesivamente.

Para encontrar el tiempo T, haciendo N = (1/2) N_o y t = T en la ecuación (1.4), entonces:

(1/2) $N_o = N_o e^{-\lambda T}$ o $e^{\lambda T} = 2$ (1.5) Tomando logaritmos a ambos lados de la ecuación (1.5) se obtiene: $\lambda T = \ln 2 = 0.693$

$$T = 0.693/\lambda$$
 (1.6)

la cual relaciona T con λ . Las vidas medias determinadas van desde un gran número de años - tal como la vida media de la desintegra ción del Bi-209 que es de más o menos 2 x 10⁸ años y la de la ---

14

-2

desintegración β del In-115, que es de unos 6 x 10⁸ años - hasta -fracciones de segundo (el Be-8 tiene una vida media de desintegración del orden de 10⁻¹⁶5.).

Actividad de una austancia radiactiva.- Por medio de la ecuación --(l.3) se puede encontrar la rapidez con la cual los núcleos se de-sintegran. For consiguiente la tasa de desintegración dN/dt disminu ye en la misma proporción y con la misma vida media que el número -N de núcleos.

El valor absoluto (dN/dt) de la tasa de desintegración se denominaactividad de une sustancia radiactiva.

Hauahaente las tasas de desintegración se expresan en curies, abreviado ci, en honor de Pierre y Marie Curie, descubridores del polonio y del radio. El curie se define como la actividad de una sus-tancia rediactiva en la cual se desintegran 3700 x 10¹⁰ núcleos porsecundo. El milicurie (l mei = 10^{-3} ci) y el microcurie (l Aci = 10^{-6} ci) son submittiplos de esta unidad. Las ecuaciones: (1.4) y -(1.3) son leyes estadísticas válidas solamente cuando el número denúcleos es muy grande y pueden ser interpretadas del siguiente modo. Hay una probabilidad de desintegración por unidad de tiempo λ de que un núcleo inestable se desintegre según un proceso específico. La -probabilidad de que un núcleo se desintegre en el intervalo de tiempo dt es λ dt. Si hay N núcleos presentes (siendo N muy grande), se puede esperar que un número de núcleos igual a (λ dt)N se desintegre en el tiempo dt.

El cálculo de la probabilidad de desintegración por unidad de tiempo para cada proceso de este tipo es un problema importante para el que se deben usar técnicas refinadas de la mecánica cuántica.

F.- Reacciones Nucleares. (2) (4) (5)

Las reacciones nucleares se producen cuando se rearreglan las partículas que forman el núcleo de un átomo, a diferencia de una reacción química, que es causada por los cambios en la estructura de las ca-pas electrónicas que rodean el núcleo.

Las reacciones nucleares se producen comunmente bombardeando un nú-cleo atómico que sirve de blanco representado por (Mi) con un --proyectil nuclear representado por (mi), en la mayoría de los ca-sos un nucleón (neutrón o protón) o un núcleo ligero tal como un deuterón o una partícula alfa.

Generalmente no se emplean núcleos más pesados debido a que para ven cer la repulsión eléctrica entre núcleos pesados se necesita un provectil con gran energía cinética.

Algunas veces se usan fotones como proyectiles. En la mayoría de las reacciones se produce la misma u otra partícula representada por (mf) dejando un núcleo final o residual representado por (Mf) en su estado fundamental o en un estado excitado. La forma general de las reac ciones se designa con la forma: Mi (mi, mf) Mf, donde los núcleosinicial y final aparecen a la izquierda y a la derecha del parénte-sis y las partículas ligeras, la entrante y la saliente, están en -el interior del mismo.

Por ejemplo, cuando se bombardea N-14 con partículas alfa(He-4), el -resultado puede ser un protón y un núcleo residual 0-17. Este proceso se puede escribir en la forma:

 ${}^{14}_{4}$ H + ${}^{14}_{2}$ H = ----- ${}^{14}_{4}$ H + ${}^{17}_{8}$ O

o usando la notación abreviada: "N (x,p)"C.

Como ejemplo de las reacciones que presentan interés especial en relación con el funcionamiento de los reactores nucleares, se tienen las siguientes:

Estas reacciones se denominan (γ , n), puesto que la partícula inc<u>i</u> dente es un fotón gamma y se expulsa un neutrón. Les fuentes basadas en reacciones (γ , n) reciben el nombre de fuentes fotoneutrónicas. Tienen el inconveniente de que exigen, para su manejo, blindaje para radiaciones gamma.

La reacción (\forall , n) solamente se producirá cuando la energía de los rayos gamma sea igual, por lo menos a la energía de enlace del neutrón en el blanco. El empleo tan generalizado del deuterio y del berilio para preparar fuentes (\forall , n), se debe a que la energía de enlace es excepcionalmente baja en estos núcleos (2.2 Mev en deuterio y 1.6 Mev en berilio). Para obtener fuentes fotoneutrónicas a partir de otros elementos, se necesitan como mínimo rayos gamma de -6 a 8 Mev. Para fotones de una energía determinada, los neutrones ob tenidos son monoenergéticos, viniendo dada su energía por la diferen cia entre la energía del fotón y la energía de enlace del neutrón en el blanco.

Las reacciones nucleares, como las químicas, al producirse van acompañadas por desprendimiento o absorción de energía, pero la energíade las reacciones nucleares es del orden de un millón de veces mayor que las de las químicas.

;

Se calculan las energías de reacción por la variación de masa que le produce en el curso del proceso. Sin embarco, en gran número de casos no es conocida la masa del producto derivado de la reacción, generalmente inestable, y en algunos de ellos se calcula la energía determinando la energía cinética de las partículas proyectiles y la del producto.

G.- <u>Fusión y Fisión Nuclear</u>.(2) Fusión.

La fusión nuclear consiste en la formación de un núcleo más pesado a partir de dos núcleos que chocan. Debido a la repulsión electros tática entre los núcleos, éstos deben tener una cierta energía cinética para vencer la barrera de potencial coulombiana y llegar asituarse lo suficientemente cerca uno del otro a fin de que las -fuerzas nucleares produzcan la acción consolidante necesaria. Este problema no se presenta en la fisión nuclear debido a que el neu trón carece de carga eléctrica y, por lo tanto, puede aproximarseal núcleo aún cuando su energía cinética sea muy pequeña o prácticamente nula.

Como la repulsión electrostática aumenta con el número atómico, la fusión nuclear ocurre a energías cinéticas razonables sólo en nú cleos muy ligeros con bajo número atómico (carga nuclear vequeña). Debido a que la energía cinética es proporcional a la temperaturaabsoluta, la fusión se realiza en forma efectiva solo cuando la tem peratura es muy elevada, una temperatura mucho mayor que las genera das por las mas exotérmicas de las reacciones químicas.

Estas temperaturas extremas crean un problema: el recipiente para contener las partículas en reacción, ya que no se conoce ningún ma terial que soporte tales temperaturas.

Además, a estas temperaturas los núcleos están privados de todos sus electrones circundantes (debido a las colisiones) y la sustan cia consiste en una mezcla de núcleos cargados positivamente y elec trones negativos llamada plasma. Se ha intentado contener este plas ma por medio de campos magnéticos.

Además, cuando la intensidad de los campos magnéticos crece rápida mente, el plasma se comprime adiabáticamente y su temperatura au menta hasta que comienza la fusión.

Cuando dos núcleos livianos se funden en uno más pesado la energía de amarre del núcleo producto es mayor que la suma de las energías de amarre de los núcleos separados, y esto da lugar a una libera ción de energía.

Si las condiciones son apropiadas, la energía liberada en la fusión es suficiente para excitar otros núcleos, originándose una reacción en cadena. Esta se convierte en una explosión nuclear por un meca-nismo similar al de una explosión química, pero en este caso, dicha explosión se debe a fuerzas nucleares en lugar de eléctricas. Para que la fusión continúe como una reacción en cadena, es menester además, que las colisiones nucleares se lleven a cabo con suficiente frecuencia para mantener la temperatura muy elevada a pesar de las pérdidas ocasionadas por la radiación de calor. La condición necesa ria para que se efectúen colisiones frecuentes es una presión alta. La fuente principal de energía en las estrellas está dada por las reacciones en cadena de los elementos ligeros, el Hidrógeno se convierte en helio como resultado final de un proceso de múltiples pasos o grados. La temperatura y presión que se necesitan para que la reacción continúe por sí sola en el centro del sol son alrededor de 35 millones de "F y de 1.5 X 10" lb/pulg², respectivamente. La reacción deuterio-deuterio puede sostenerse a temperaturas y pre siones bastante más bajas de aquellas presentes en las reacciones estelares, pero, aun así, son en extremo elevadas en comparación -con las mismas condiciones normales en la tierra. La realización de una reacción en cadena controlada a partir de elementos ligeros para lograr la generación de potencia, por medio de la fusión, depende de la producción de partículas con altas ve-locidades y grandes densidades, obtenides en el sitio de la reacción por medios electromagnéticos, sin que ni la temperatura ni la pre--

sión se incrementen en grandes cantidades en las paredes del reci--piente, sunque todavía no se ha construido un reactor de fusión com pletamente satisfactorio.

La fisión nuclear consiste en la división de un núcleo pesado en -dos fragmentos de tamaño comparable.

La fisión como proceso natural es muy rara. (se cree que el U-238 se fisiona espontaneamente con una vida media de aproximadamente -10^{15} años).

Como proceso artificial o inducido la fisión se realiza mediante -un bombardeo con neutrones, partículas \propto , rayos gamma \vee , deutero-nes o protones.

La fisión no es"un proceso simétrico; en general los dos fragmentos separados tienen números másicos desiguales.

La división con más probabilidad es la que da lugar a fragmentos con números másicos próximos a 95 y 135 respectivamente. Del proceso de fisión puede obtenerse una energía liberada del or-den de 10 veces mayor que la que se obtiene de un combustible quími co. Por ejemplo, la energía liberada en la fisión del U-235 es:

> Mev Energía cinética de los productos de la fisión 168 Energía cinética de los neutrones de fisión 5 Energía de los rayos γ 10 Energía de los rayos 5 B Energía de los neutrinos 11 199

La cantidad de 199 Mev es equivalente a 3.2×10^{-11} W.s, lo cual indica que se necesita la fisión de l.l2 x 10^{11} átomos para liberar un Kilowatt-hora de energía. Este número de átomos forma solo un pe-queño punto del orden de 6 milésimas de pulgada en una porción de -materia con una pulgada de diámetro.

El hecho de que por cada neutrón absorbido para producir una fisión son emitidos más de dos neutrones (en promedio) sugiere la posibi lidad de una reacción en cadena. Esto es, si las cosas se arreglan de tal modo que después de cada fisión al menos uno de los nuevos neutrones produzca otra fisión, y de los neutrones liberados en ésta, al menos uno produzca una fisión, y así sucesivamente, entonces resulta un proceso autosostenido o reacción en cadena. (Las reaccio nes en cadena son muy comunes en química. La combustión es una reac ción en cadena. Para que una sustancia arda se necesita que una desus moléculas sufra una ruptura homolítica de enlaces de modo que pueda combinarse con el oxígeno. Pero una vez que uno de los radica les libres se ha combinado con el oxígeno, la energía liberada es suficiente para formar más radicales libres del combustible y en -consecuencia la combustión prosigue.) Si en cada etapa del proceso más de un neutrón por fisión produce una nueva fisión, el número de éstas crece exponencialmente resultando una reacción en cadena di--vergente. Esto es lo que sucede en una bomba atómica. Pero si en promedio solo un neutrón produce una nueva fisión, resul

ta una reacción en cadena uniforme que se puede mantener bajo - ---

ŝ

condiciones controladas. Esto es lo que sucede en un meactor nu -clear.

En los reactores nucleares rápidos se utiliza los neutrones con la misma energía con la cual son liberados en el proceso de fisión. -En los reactores nucleares térmicos orimero se reduce la velocidad de los neutrones haciéndolos chocar con los átomos de alguna otrasustancia, llamada moderador, hasta que alcanzan el equilibrio té<u>r</u> mico con la sustancia. Se dice entonces que los neutrones son térmicos. El moderador debe ser una sustancia que tenga pequeño número másico y pequeña sección eficaz de captura neutrónica. El agua, el agua pesada y el grafito son las sustancias que más se usan como moderadores.

La energía liberada en un reactor nuclear se extrae por medio de un fluído circulante llamado refrigerante. En los reactores de potencia esta energía se usa para calentar o generar potencia eléc trica. En los reactores de investigación los neutrones son empleados en diferentes clases de experimentos, en la producción de isótopos, etc.

H.- Empleo de la Energía de Fisión.(3)

Tipos de reactores que no generan potencia.

۲

Los reactores nucleares se emplean en otras actividades diferentes de la generación de potencia útil; éstas se clasifican en tres tipos generales: reactores para enseñanza, de investigación y de prue ba.

a.- Reactores de enseñanza: entre las características de los reactores de enseñanza, se encuentran las siguientes: muy poca reactividad, baja capacidad (de uno a unos pocos miles de watts de energía calorífica) y de acceso más o menos fácil al núcleo mismo. Es te tipo de reactores se emplea de manera principal para determinar con fines de instrucción el comportamiento de los reactores, además en estos pueden practicar los operadores que se inician hasta adquirir la experiencia necesaria sobre las respuestas de la ins-trumentación del reactor cuando se introduce la reactividad y se aproxima a la condición crítica, el comportamiento justo en el --" punto crítico " y el aumento o disminución de la potencia. Por lo general estos reactores son propiedad y están operados por las universidades; se emplean también para entrenar operadores --

20

y pueden usarse en una gran variedad de experimentos con fines deinstrucción dentro del campo de la Ingeniería Nuclear.

Los experimentos típicos incluyen las medidas de la distribución del flujo de neutrones y de los parámetros que afectan los controles, que son características necesarias en el diseño de un reactor nuclear. Aun cuando el flujo de neutrones disponible en un reactor de este tipo es pequeño, es significativo y puede emplearse para una producción limitada de radioisótopos.

b.- Reactores de Investigación: Por lo general tienen capacidad para producir potencia de 10 megawatts térmicos más o memos.

Se emplean para suministrar una fuente de radiación intensa de neu trones y rayos V. Estos reactores se diseñan por lo general para tener una elevada fuga de flujo en virtud de facilitar su empleo como fuente de radiación.

Los neutrones producidos en un reactor de investigación tienen una gran variedad de usos, entre los cuales se incluyen el análisis por activación de neutrones, radiografía de neutrones, y producción de radioisótopos. Los rayos gamma se aplican en materiales de pruebay en estudios que aprovechan la interacción de éstos con el núcleo de varios elementos.

c.- Reactores de Prueba: Tienen por lo general, una capacidad para producir potencia que varía dentro de un intervalo de 25 a 100 megawatts térmicos. Estos se emplean para suministrar al medio una--radiación experimental similar a la que se encuentra en el núcleo de un reactor de potencia; también se utilizan en gran escala para la producción de radioisótopos.

Algunos reactores de prueba, que han sido operados en E.U.A., son los reactores de pruebas de materiales, los reactores de pruebasde Ingeniería y los reactores de pruebas avanzadas.

Otro es el reactor de prueba General Electric operado por la General Electric. Estos reactores tienen instalaciones experimentales, en las cuales el prototipo del reactor de potencia de ensambles de combustible puede ser operado a la densidad de potencia, presión, temperatura y flujo de refrigerante, que será experimentado en --sus condiciones de aplicación reales.

Arros componentes de los reactores de potencia que pueden ser ex-puestos a un núcleo del tipo de medio ambiente pueden ser someti-dos a pruebas similares para verificar las características de dise ño.

Ciclos de Potencia.

Aun cuando la energía de la fisión aparece como energía cinética--(85%) y energía de fotones de rayos %, no existe un método prác tico para convertir esta energía en forma directa en trabajo útil a gran escala. Por esto, un reactor nuclear se debe tratar como una fuente de calor que, a diferencia de una del tipo química, no re quiere de oxígeno y en el cual el calor no tiene que ser separadode los productos gaseosos de la combustión que tienen propiedadespara la transmisión de calor muy pobres.

En las instalaciones de gran potencia, asociadas con plantas nuclea res de potencia, el ciclo de vapor Rankine es el que más se utiliza. Este ciclo parece el más apropiado para las plantas nucleares, debi do a: (l) que la máxima temperatura de operación factible para un reactor corresponde a o es menor que la temperatura usada en el ci clo de vapor Rankine convencional; (2) el problema de contaminación debido a la radiactividad está resuelto de mejor manera en es te ciclo que en cualquier otro, y (3) los reactores son más económicos en grandes medidas, como sucede en las máquinas Rankine. Se han empleado tres variaciones del ciclo Rankine, de ellos el me nos complicado es el ciclo directo y también es el más deseable; sin embargo, presenta las desventajas siguientes: durante el proce so de ebullición no permite grandes densidades de potencia, las -cuales son accesibles con enfriamiento líquido y el vapor radiact<u>i</u> vo es transportado dentro de la turbina y del condensador.

En el ciclo indirecto, se obtiene mayor densidad de potencia y se elimina la radiactividad en la turbina; además, también se produce vapor a mas baja presión y temperatura que las consideradas más eficientes dentro de las turbinas modernas. Ambos conceptos están muy desarrollados en la actualidad y se encuentran disponibles en el comercio.

Otro ciclo que ha sido tomado en consideración es el ciclo de Bray ton. Se ha descartado el empleo de un ciclo abierto de Brayton uti lizando aire, debido a la diseminación de los productos de activación provenientes del escape de la turbina y a los problemas de co rrosión en el núcleo del reactor y en los elementos combustibles. El empleo de un ciclo cerrado de Brayton en combinación con react<u>o</u> res de alta temperatura enfriados con gas tiene las ventajas pote<u>n</u> ciales de que las temperaturas del gas pueden igualarse a las quese obtienen en los diseños de turbinas de gas más modernos y ade-más la construcción de las plantas puede hacerse muy compacta. Enla siguiente figura (1.4) se muestra el ejemplo de una planta con acoplamiento de ciclos con el fluido de trabajo.



Figura (1.4).- planta con acoplamiento de ciclos con el fluido de trabajo.

Tipos de reactores que generan potencia.

Durante los primeros años de desarrollo de los reactores de potencia, se investigaron posibles diseños de reactores en un gran núm<u>e</u> ro; en el estado actual de la industria, los diseños que han ganado la mas grande aceptación son todos los que emplean combustiblesólido en forma de dióxido de uranio.

El moderador puede ser grafito o agua y como refrigerante puede em plearse agua, gas o sodio líquido.

a.- Reactores de agua en ebullición (BWR): son de diseño simple y pueden utilizar vasijas de paredes relativamente delgadas ya que trabajan con presiones moderadas, en comparación con las que desarrollan los reactores con agua presurizada. Las temperaturas que -

.

cubre el combustible solo son ligeramente superiores a las temper<u>a</u> turns del vapor y existe un factor de seguridad inherente debido a que el volumen vacío de vapor aumenta conforme la potencia sufre un sumento pasajero.

Las limitaciones de la densidad de potencia impuestos por los huecos de las salidas (esto es, el volumen del vapor que está salien do de la mezcla vapor-agua derde el núcleo del reactor) representan une desventaja, en la cual la baja densidad de potencia contr<u>i</u> buye a crear un elevado inventario de cargas de combustible. b.- Reactores de agua presurizada (PWR): las propiedades del agua y del vapor, que los llevan a obtener predominancia como medios de transmisión de calor para fines generales, han sido la causa del a<u>m</u> plio campo de aplicaciones que cubren como refrigerantes en los reactores. La mayor desventaja del agua presurizada se debe a su relativamente elevada presión de vapor. Aun cuando ésta puede superarse aunque sea en forma parcial, si se permite su ebullición en el reactor. Es posible obtener un rendimiento térmico de hastaun 36%.

El empleo de agua como refrigerante y moderador se basa en el co-rrecto desarrollo de la tecnología, la cual indica que la capaci-dad debe estar supeditada en primer lugar a los requerimientos detransmisión de calor. El flujo promedio de calor q/A, tiene un valor aproximado de 630000 γ/m^3 , hasta llegar a un máximo aproximado de 1890000 γ/m^3 .

c.- Reactores de agua ligera (LWR): necesitan para su funciona-miento combustible con un ligero grado de enriquecimiento. El costo de esto queda justificado desde el punto de vista económico por el aumento de la densidad de potencia y la reducción en el inventa rio de cargas. Para poder suministrar una suficiente moderación alos neutrones, se debe conservar una relación de volumenes agua-ura nio ligeramente superior a 2:1.

d.- Reactores enfriados con gas: tienen la ventaja de requerir com bustible de bajo enriquecimiento y bajos costos, debido a su capacidad para emplear el uranio natural como combustible.

Estas ventajas se ven reducidas por los altos costos principales provocados por las grandes dimensiones del sistema, lo cual da -por resultado en forma general la mas baja densidad de potencia utilizada.

Los diseños mas avanzados, como los reactores (HmGR) de alta tem peratura enfriados con gas y sus variantes pueden utilizar uraniopoco enriquecido y son capaces de usar altas temperaturas y el material estructural requerido para estas temperaturas. Estos dise ños modernos, enfriados con gas, son bastante más compactos que los reactores de uranio natural, los cuales están empezando a desplazar. En los mas modernos diseños de reactores enfriados con gas, la vasi ja se construye de concreto pretensado y en su interior se encuen-tra el núcleo, los circuladores de gas y los generadores de vapor. La inclusión de todo el equipo y tubería dentro de la estructura de la vasija da una gran simplicidad al control de fugas de gas. e.- Reactores rápidos de cría: son operados a densidades de potencia muy altas (ya que su funcionamiento no muede moderarse) y se enfrían con metales líquidos. Su principal atractivo radica en su capacidad para " criar ", esto es, producen mavor cantidad de combustible que el que consumen. No tomando en cuenta el ahorro que -representan en el costo del combustible, se considera que esta ca-racterística es necesaria para conservar las fuentes mundiales de energía.

Existen dos definiciones antagónicas de los reactores de cría, que son muy comunes: 1) reactor nuclear que produce una mayor cantidad de material fisionable que el que consume, sin importar el tipo de combustible empleado; 2) reactor nuclear que produce material de la misma especie que el que consume, sin importar la ganancia o pérdidas netas. De estas dos definiciones, la primera tiene una mayor aceptación en E.U.A. La selección de un refrigerante para un reac tor de cría está restringida por el requerimiento de que éste no de be actuar como moderador. Este requerimiento descarta el uso de agua aunque la obtención de un reactor de cría enfriado con agua se en cuentra en investigación. La selección del refrigerante queda supeditada, entonces, al helio o a un metal líquido.

ń

CAPITULO 11

CICLO DEL COMBUSTIBLE NUCLEAR.

A.- Generalidades.

En la producción de energía utilizable a partir de combustibles nu cleares, la planta del reactor es sólo una parte de toda una opera ción compleja, en la que intervienen la producción del material combustible, la fabricación de los elementos combustibles, el repro cetado del combustible ya usado para recuperar los materiales fisio nables y fértiles, y la eliminación de los desechos radiactivos. El costo del combustible, incluyendo todas las cargas - fabricación. reprocesado, agotamiento, arrendamiento y transporte -, supone del 35 al 50 por ciento de la energía producida, de aquí se deduce que desde el punto de vista económico, la energía nuclear depende considerablemente de las operaciones a que se debe someter el combustible, la mayoría de las cuales se realizan fuera del reactor. Recibe el nombre de " ciclo del combustible nuclear " a la trayecto ria que sigue, en sus diversas etapas, el combustible de un reactor nuclear, el cual puede observarse esquemáticamente en la figura 2.1



Figura 2.1. - Ciclo del combustible nuclear.

La fuente original del uranio procede de los minerales uraníferos, los cuales una vez extraídos de sus yacimientos, son sometidos a una etapa previa de concentración, enviándose luego a una planta de materiales. Utilizando métodos de extracción y purificación ad<u>e</u> cuados, se obtiene e! uranio en forma de nitrato o hexafluoruro,-compuestos que se convierten en productos diversos para la fabric<u>a</u> ción de los distintos tipos de elementos combustibles. Como la mayo ría de los reactores de potencia utilizan combustibles con cierto grado de enriquecimiento en el isótopo fisionable uranio - 235, se desvía una parte del material de alimentación de uranio natural, en forma de hexafluoruro, hacia una planta de separación isotópica, como se explicará en detalle más adelante.

B.- Materiales Combustibles.(4) (6) (7) (8)

Entre los materiales utilizados para la construcción de los reacto res nucleares, el más importante es indiscutiblemente el que sirve de " combustible ". En la actualidad existen tres tipos de materiales fisionables que .5 pueden utilizarse como combustible nuclear en un reactor: 1) Uranio 235 (en U-238); 2) Uranio 233 (obtenido artificialmente irradiando Th-232); 3) Plutonio 239 (obtenido artificialmente irradiando U-238). Solamente el primero de los tres, U-235, existe en abundancia en la naturaleza; los otros dos se producen artificialmente en los -reactores nucleares. El U-235 sólo se encuentra en la naturaleza con U-238 - no fisionable - y la proporción es del orden de una -parte de U-235 por ciento cuarenta partes de U-238. Pese a esta -gran dilución de la materia fisionable en el U-238, pueden cons--truirse reactores nucleares con uranio natural conteniendo esta --pequeña proporción de material fisionable. Sin embargo, es impor-tante poder utilizar un combustible más concentrado o enriquecido. Hoy en día la mayoría de los reactores de combustible enriquecido funcionan con U-235. Sin embargo, dado que se dispone cada vez más de Pu-239 y U-233, estos combustibles se utilizan cada vez más.Los reactores más modernos utilizan simultáneamente varios de estos -combustibles enriquecidos.

El combustible nuclear puede ser sólido, líquido o gaseoso en el reactor, pero hasta ahora sólo se han utilizado combustibles en ---
forma sólida o líquida. Se sabe que la masa del combustible debe ser igual al menos a cierto valor llamado " crítico " para que pue da producirse la reacción en cadena y es importante dar a esta masa crítica una configuración geométrica determinada.

Generalmente, cuando se utiliza combustible sólido, se le disponede determinada forma en el reactor. Si los elementos combustiblestienen la forma de varillas de sección circular, tubos, esferas,-placas, pequeños cilíndros, etc, puede aplicárseles de tal modo --que estos elementos estén suficientemente juntos dejando entre síun espacio adecuado para las barras de control y el desplazamiento de un fluido que asegura su refrigeración. En los reactores de neu trones térmicos e intermedios debe poder disponerse además, entrelos elementos de combustible nuclear, una cantidad de moderador suficiente para que los neutrones disminuyan su velocidad para facilitar su captura por los núcleos fisionables.

En la figura 2.2 se puede observar un dispositivo sencillo para dig poner las barras de uranio en una red en el interior de un reactor; el combustible está constituído por varillas de uranio dispuestas horizontalmente y de forma que dejen un espacio anular para el deg plazamiento del refrigerante.



Figura 2.2.- Dispositivo para disponer las barras de uranio en una red en el interior de un reactor.

El moderador llena el espacio entre los elementos de combustible.

Los combustibles líquidos se encuentran generalmente en forma:

- De solución acuosa de una sal del material fisionable.
- De una sal fundida del material fisionable.
- De un metal o aleación fundida.

Según la concepción de los reactores nucleares, los combustibles -sólidos o líquidos pueden ofrecer ventajas y se ha emprendido en la actualidad la construcción de reactores que utilicen ambos timos de combustibles.

En suma, se ha determinado que un combustible nuclear debe satisfacer nueve características principales:

- 1.- Tener un precio módico.
- 2.- Resistir el gradiente de temperatura que se establece entre elcentro y la periferia refrigerada del elemento combustible.
- 3.- Resistir los ciclos térmicos provocados por la detención y la puesta en marcha del reactor.

4.- Resistir la acción de las radiaciones a que está sometido.

- 5.- No ser corroído por el refrigerante.
- 6.- Resistir cargas mecánicas.
- 7.- No contener impurezas que tengan fuerte absorción para los neutrones (particularmente en los reactores de neutrones térmicos).
- 8.- Ser conductor del calor que produce.
- 9.- Permitir la recuperación y separación de los productos de fisión por métodos relativamente sencillos.

Salvo quizás la primera condición, el precio módico, puede afirmarse que la casi totalidad de las demás condiciones han podido cumplirse gracias al considerable desarrollo de las investigaciones consagradas a los combustibles nucleares.

Para la fabricación de elementos combustibles, el uranio debe encon trarse en forma metálica, ya sea el metal puro o una aleación, o bién en forma de dióxido o carburo. El elemento combustible suele llevar una cubierta de acero inoxidable, aluminio, aleación de magnesio o aleación de zirconio que le protege del ataque del refrigerante, evi ta el escape de productos de fisión radiactivos y proporciona al elemento integridad geométrica. En la figura 2.3 se esquematiza un elemento combustible típico con su revestimiento inerte y protector. El elemento combustible es una varilla de uranio metálico de 1.22m de largo y 12.7 mm de diámetro; la cubierta está cons ------ tituída por una capa de aluminio de 3.2 mm de espesor.



Figura 2.3 .- Elemento combustible típico.

Recién descargado del reactor, el combustible usado es fuertemen-te radiactivo - " caliente " -, por lo que es preciso dejarlo "ënfriar" durante cierto tiempo antes de proceder a su reprocesado, es pecialmente si van a emplearse métodos de disolución. Durante el periodo de enfriamiento la actividad decae a un cierto nivel parael que resulta tolerable la descomposición radiolítica de los reac tivos del proceso.

Se utiliza entonces uno de los diversos métodos posibles de separa ción, con objeto de eliminar los productos de fisión y de recuperar el uranio; por una parte y el plutonio- 239 que se ha formado por captura neutrónica del uranio- 238 por otra. Si fuera necesario, el uranio y el plutonio- 239 pueden reciclarse a la etapa de fabricación de elementos combustibles, para ser empleados de nuevo en lacarga del reactor. El uranio que ha quedado empobrecido - o agotadoen uranio - 235, como consecuencia de la fisión, puede hacerse retornar a la etapa de separación isotópica, nuevamente en forma de hexafluoruro, para su enriquecimiento.

•

C.- <u>Producción de Combustibles Nucleares</u>. (4) (7) (3) Fuentes de Uranio.

El uranio dista mucho de ser un elemento escaso: se ha estimado que su concentración en la corteza terrestre es del orden de 4 ppm. En realidad, el uranio es más abundante que otros elementos que nos son familiares, tales como la plata, mercurio, bismuto y cadmio. -El peso total de uranio contenido en la corteza terrestre, hasta una profundidad de 20 km, es probablemente del orden de 10⁴⁴ tonel<u>a</u> das. Ahora bién, esta cifra puede dar origen a confusiones, puesto que la mayoría de los yacimientos son de calidad tan baja - 0.001 por ciento de uranio o menos - que el beneficio del metal resultaría antieconómico.

De las fuentes de uranio asequibles a los paises occidentales sola mente hay dos que contienen minerales de alta calidad: los yaci-mientos de la provincia de Katanga, en el Congo, y los de Canadá. El mineral contiene del l al 4 por ciento de uranio, principalmente en forma de pechblenda o de uraninita que son los dos minerales primarios. Ambos son óxidos de composición variable, que oscila en tre UO₂ y U₃ O₃, por cuya razón se representan mediante la fórmulageneral: xUO_2 . yUO_3 , en la que la relación y/x varía entre cero y dos.

Los minerales de uranio de calidad media se encuentran en muchas partes del mundo, entre otras, E.U.A., Canadá y Australia. Los --principales yacimientos de E.U.A. son los existentes en la altipla nicie de Colorado, una región que comprende partes de Arizona, Colorado, Nuevo México y Utah. Aunque presentan grandes variaciones, tanto en calidad como en composición, los minerales que se obtienen de esta zona suelen contener del O.l al O.5 por ciento de uranio. Son muchos los minerales uraníferos que se encuentran en la altipla nicie del colorado, pero la mayor parte de la producción procede de minerales secundarios, especialmente de las familias de la " carnotita " ($K_2O-2UO_2 \cdot V_2O_5 \cdot xH_2O^2$) y de la " autunita " ($CaO-2UO_3 \cdot P_2O_5^2$: xH_2O).

Las carnotitas de la región del Colorado contienen frecuentemente minerales de vanadio. Antiguamente, la extracción de estos minerales estaba orientada al béneficio del vanadio, quedando unos residuos, denominados a veces " concentrados domésticos ", que han sido aprovechados después como fuente de uranio. En la actualidad, se obtienen beneficios de los dos metales, uranio y vanadio. Con una demanda suficiente, el valor del vanadio puedecompensar en cierto grado el costo de recuperación del uranio. Algo parecido ocurre en los minerales uraníferos de cobre existentes en el distrito de White Canyon, cerca de Hite, Utah, de cuyo trata--miento se obtiene el beneficio tanto de uranio como de cobre. Las gangas en las que se encuentran minerales de uranio varían muy ampliamente; se incluyen entre ellas areniscas, calizas, arcillasy asfaltitas. La naturaleza de la ganga y el carácter y calidad del mineral de uranio determinan el tipo de tratamiento que debe aplicarse.

Al irse agotando las menas ricas de uranio, los minerales de baja calidad cobran una importancia creciente. Entre estos pueden cita<u>r</u> se como más notables los residuos de menas auríferas existentes en Africa del Sur, que contienen alrededor de 0.02 por ciento de uranio, y de las que se dispone en grandes cantidades con una compos<u>i</u> ción practicamente constante. Los costos de extracción minera ya se han asignado al oro, y además las piritas contenidas en los residuos pueden transformarse en ácido sulfúrico, para ser utilizado en el proceso del uranio.

La ganga consiste principalmente en cuarzo inerte. En la actualidad ya se ha iniciado la producción de uranio a partir de los residuos de menas auríferas, esperándose que esta fuente suministrará canti dades importantes de este metal.

Entre las fuentes principales de baja calidad, con un contenido de uranio no superior al 0.01 por ciento, se encuentran, en E.U.A. los extensos **cam**pos de fosfatos de Florida e Idaho, las pizarras bituminosas de Tennessee y los lignitos uraníferos de Wyoming y las D<u>a</u> kotas. En la fabricación de ácido fosfórico a partir de los fosfatos, se recupera una pequeña cantidad de uranio. En cuanto a la o<u>b</u> tención del metal contenido en los lignitos y esquistos, no parece ser económica actualmente, sin embargo, considerándose a largo pl<u>a</u> zo no pueden desdeñarse las enormes cantidades de uranio existen--tes en estas fuentes de baja calidad, por lo que se encuentran enestudio posibles métodos de recuperación del metal.

En el agua de mar existen cantidades muy grandes de uranio pero en pequeñas concentraciones, del orden de 1 o 2 partes en 10^9 . A estos niveles de concentración, la recuperación práctica de materiales -

queda fuera del alcance de todos los métodos de beneficio conoci-dos.

Los minerales de alta calidad con un contenido de 2 al 5 por ciento de uranio (en forma de $U_3 O_3$), reciben primeramente un trata -miento previo de concentración, hasta niveles del orden del 50 por ciento de $U_3 O_3$, utilizando los procedimientos metalúrgicos normales: quebrantado, tamizado, lavado, flotación y separación por gravedad. Esta etapa de concentración previa suele realizarse en las proximi dades de la zona minera, lo que hace posible el transporte económi co del mineral hasta las instalaciones centrales, donde será purifi cado y convertido en óxido, fluoruro o metal. Como ejemplo de un procedimiento de concentración se puede observar el diagrama de flujo del tratamiento de un mineral vanadífero para obtener $U_3 O_3 y$ $V_2 O_5$ en la figura 2.4.

Producción de uranio y sus compuestos.

El uranio que ha de utilizarse como combustible nuclear debe estar libre, muy especialmente, de elementos que posean sección eficaz de. captura neutrónica apreciable. Esto significa que los productos ob tenidos en las etapas de concentración de la mena deben sometersea una nueva purificación. Se utilizan dos procedimientos con este objeto en E.U.A.: uno de ellos de basa en la extracción con disolvente del nitrato de uranilo y el otro en la volatilización del -hexafluoruro de uranio.

En el proceso de extracción, el concentrado de uranio, finamente molido, se somete a digestión por ácido nítrico, de manera que eluranio queda en disolución acuosa en forma de nitrato de uranilo. La suspensión resultante, sin filtrar, se pasa por una columna de extracción, de arriba a abajo, a través de la cual circula en di-rección opuesta un disolvente orgánico, fosfato de tributilo, di-luido con un hidrocarburo inerte (keroseno). El nitrato de uran<u>i</u> lo es extraído por el medio orgánico, y la disolución se lava conagua o ácido nítrico diluido para eliminar pequeñas cantidades deimpurezas. Sigue luego una columna de separación, en la que se ut<u>i</u> liza agua para la reextracción del uranio, que queda así en disol<u>u</u> ción acuosa.



Figura 2.4. - Tratamiento de un mineral de uranio y de vanadio.

•

ي.

Esta disolución se evapora hasta que su composición corresponde aproximadamente a la del nitrato de uranilo hexahidratado, $UO_4 (NO_5)_2$. $6H_2 \cap$, conocido con el nombre abreviado de "UNH ". El proceso de purificación es similar al llamado método " purex " para la extrac ción de uranio de los combustibles irradiados, que se describirá más adelante.

En el procedimiento basado en la volatilidad del hexafluoruro de uranio, se comienza por la molienda y clasificación del concentrado de U_3 O₃ con el fín de obtener un material de alimentación conveniente para un tratamiento en lechos fluidizados.

El material clasificado pasa a un reactor de lecho fluidizado, don de se mantiene a temperaturas entre 540 y 650°C y es reducido porhidrógeno gaseoso, procedente de la disociación térmica del amonia co. El producto, constituído principalmente por " UO_2 " pasa suces<u>i</u> vamente por dos reactores de lecho fluidizado, donde se produce la reacción con fluoruro de hidrógeno anhidro, a temperaturas de ---480-540°C y 540-650°C, respectivamente. La reacción que tiene lu-gar es la siguiente:

UOs + 4HF --⊳2H_0 + UF4

produce tetrafluoruro de uranio (" sal verde ") un sólido no vol \underline{a} til que funde alrededor de 960°C.

La etapa siguiente consiste en hacer reaccionar el tetrafluorumo de uranio con flúor gaseoso, a temperaturas comprendidas entre 340 y -480°C para formar el hexafluoruro de uranio, es decir,

 $UF_4 + F_2 - UF_6$

Aunque el hexafluoruro de uranio es sólido a la temperatura ordina ria, sublima a temperaturas superiores a 56.4°C, a la presión at-mosférica, de manera que sale del reactor de fluorización en forma de vapor pasando luego a condensadores, donde se recoge el hexafluo ruro de uranio en forma sólida. En la etapa final, el hexafluoruro de uranio se somete a un proceso de purificación por destilación fraccionada, a la presión de 50 a 100 psig. El producto obtenido de esta manera puede utilizarse ya como material de alimentación,en la planta de difusión gaseosa, para la separación isotópica del uranio.

El hexafluoruro de uranio puede utilizarse también como punto de -

35

partida para la producción de dióxido de uranio.

La Mallinchrodt Chemical Works de San Luis (E.U.A.) ha desarro-llado el siguiente procedimiento, que puede observarse esquemática mente en la figura 2.5.



Figura 2.5.- Producción de UO₂ a partir de UF, utilizado para el emriquecimiento en U-235.

Se calientan en envoltura eléctrica los cilindros que contienen --UF₆. El gas que se desprende se difunde en un depósito que contiene agua donde el UF₆ se hidroliza rápidamente en HF y en UO₂F₃. Añadiendo amoniaco (en solución acuosa al 25-30%) se precipita -diuranato de amonio. Este precipitado se filtra, lava y seca y des pués se descompone mediante vapor de agua en U₂O₈. El U₃O₈se secay después se reduce en UO₂en atmósfera de hidrógeno y a temperatura elevada.

La densidad y dimensión de las partículas del UO₄ dependen del ----U₃O₃ y de la temperatura de reducción. En la figura 2.6 se observa que cuanto más elevada es la temperatura de reducción, mayor es la dimensión de los cristales de UO₄ obtenidos.



Figura 2.6.- Dimensiones de las partículas de UO₂ en función de la temperatura de reducción del U₂ O₃.

El polvo de UO₁ puede transformarse a continuación por diferentesmétodos. Pueden obtenerse: 1) piezas coladas o extruidas de densidad elevada en forma de ba-rras, tubos, etc. 2) polvo de UO₁ disperso en Al,Zr, acero inoxidable. 3) pequeños cilindros de UO₁ cubiertos de Al,Zr o acero inoxidable. 4) una solución del UO₂ en ácido H₄ P₅ O₇ concentrado, etc.

Para obtener uranio metálico, el tetrafluoruro de uranio, obtenido a partir de dióxido de uranio se calienta con calcio o magnesio de gran pureza, con magnesio, tiene lugar la siguiente reacción (exo térmica):

 $UF_{v} + 2Mg$ U + $2MgF_{2}$

En la que se utiliza un horno como el indicado en la figura 2.7.



Figura 2.7.- Horno de bombas calentado por gas.

El nivel superior de este horno se confunde por lo general con elnivel del suelo. Se calienta con gas y permite operar con dos bombas. La temperatura óptima del horno dependerá de muchos factores-(capacidad de las bombas), pero está comprendida generalmente en tre 500 y 700°C.

Para bombas de 35cm de diámetro aproximadamente y que trabajen a -565 C, se precisan alrededor de 3h 30 min para la reacción. Para bombas más pequeñas de 25cm de diámetro, se precisan 2h 30 min ypara las de 15cm de diámetro, 1h 30 min.

Después de la fusión, la reacción se produce rápidamente (1 min) y después se saca la bomba del horno. Después de la refrigeraciónse abre la cubierta de la bomba y se saca el lingote y las escorias (El fluoruro de magnesio forma una escoria sobre la superficie del uranio, de la cual puede separarse fácilmente). Una vez retiradoel metal sólido, se funde a 1300°C en crisol de grafito y en vacío para expulsar las impurezas volátiles, y se recoge en moldes. Loslingotes producidos de este modo quedan ya preparados para los diversos tipos de fabricación.

D.- <u>Separación de los isótopos del uranio</u>. (4) (6) (7) (8) (10)

La mayoría de los reactores de potencia utilizan uranio parcialmen te enriquecido, con un contenido de uranio-235 del 1 al 5 por cien to, necesitándose incluso grados de enriquecimiento superiores cuan do se trata de reactores especiales. Debido a que el uranio-235 es el único isótopo natural que es combustible nuclear se han realiza do considerables inversiones para separarlo.

Para que puedan separarse dos isótopos, debe ser posible provocar, por un procedimiento determinado, una diferencia de composición ---(concentración) de los productos que se desean separar. Un pro--cedimiento que permite separar una corriente de la mezcla de dos -isótopos en dos corrientes con concentración diferente de la ini--cial, tendrá cierta eficacia que se puede expresar de la siguiente forme:

Fracción del Fracción Isótopo A IsótopoB

Mezcla que se de	sea separar	N	1-N
Mezcla después d	e una fase de separación	n	1-n

La abundancia R de los isótopos A y B será:

$$R = \frac{N}{1-N}$$
 (2.1)

antes de la separación y :

$$r = \frac{n}{1-n} \tag{2.2}$$

después de la separación.

La eficacia de la separación puede caracterizarse por el factor de separación \prec , de tal modo que:

$$\propto = \frac{R}{r} = \frac{N(1-n)}{n(1-N)}$$
(2.3)

lo que da una medida de la facilidad de separación de los isótopos. En principio, la separación de los isótopos estables de un mismo elemento es una operación dificil dado que sus propiedades son muy parecidas. Pueden utilizarse los siete procedimientos siguientes:

- 1.- Electrólisis.
- 2.- Reacción de intercambio.
- 3.- Difusión gaseosa.
- 4.- Difusión térmica.
- 5.- Destilación.
- 6.- Centrifugación.

7.- Separación electromagnética.

Estos procedimientos pueden agruparse en tres clases:

- a) Procedimientos que recurren a campos magnéticos o eléctricos que actúan sobre los átomos ionizados de los isótopos que deben separarse (espectrómetro de masas, isotrón, calutrón, etc.) indicados en el procedimiento número siete.
- b) Procedimientos reversibles o parcialmente reversibles como la destilación fraccionada, procedimiento número cinco, las reaccio nes de intercambio procedimiento número dos, en las que se apro vecha la diferencia de concentración existente en el equilibrio entre dos fases.
- c) Procedimientos irreversibles como la difusión gaseosa, procedimiento número tres, la difusión térmica procedimiento número cua tro, donde la separación depende del comportamiento cinético de los isótopos individuales que se desea separar.

جن ا

La eficacia iel uso que se huce de la energía o, vís exactamente,el cociente entre la energía teóricamente necesaria - la consumida realmente para obtener una separación dada (llamado también rend<u>i</u> miento termodinámico de la separación ^a es siempre relativamente baja pero es más elevada en los procedimientos reversibles que enlos demás.

La elección del procedimiento o combinación de procedimientos de-pende:

- 1) De las propiedades de los isótopos que deberán separarse.
- 2) Del grado de separación deseado.

3) De la contidod de isótopos que se necesiten.

Para obtener isótopos puros en cantidades pequeñas (para análisis con trazadores) se utilizan preferentemente métodos electromagnéticos. Un ejemplo de estos métodos se utilizó desde 1941 en la Un<u>i</u> versidad de California para obtener uranio-235 utilizando el electroimán de un gran ciclotrón. Pese a su éxito, este procedimientose abandonó debido a:

- 1) Las cantidades muy importantes de energía que se consumían para una separación dada.
- 2) La pequeña producción de cada unidad de fabricación.
- 3) La cantidad relativamente reducida de átomos que se recogián en el colector con respecto al número de átomos ionizados.

No se utiliza ya el método electromagnético para la separación del uranio-235; solo sirve ahora para preparar cantidades muy pequeñas de diversos isótopos estables destinados con fines analíticos. Tampoco la destilación, las reacciones de intercambio v la electró lisis se han utilizado para la producción de uranio-235. Por el contrario, se ha ensayado la centrifugación a escala piloto para la separación de uranio-235 a partir de uranio-238. El fundamento de este método es el siguiente: si se centrifuga un gas o vapor que contiene especies moleculares de masas distintas,la fuerza gravitatoria producirá una separación parcial, moviéndose las moléculas más pesadas hacia la periferia y tendiendo las más ligeras a permanecer próximas al centro. Este procedimiento basado en la diferencia de masa 3 existente entre estos dos isótopos, per mite obtener un factor de separación que admite una comparación -muy favorable con los demás procedimientos. Trabajando con hexa--fluoruro de uranio gaseoso UF, en una centrifugadora, cuya velocidad

periférica es 300 m/s. $\propto = 1.058$.

Comparativamente la un valor elevado con respecto a otros procedi--mientos, como se observa en la tabla 2.1.

Tabla 2.1.- Factores de separación obtenidos con distintos procedimientos de separación.

**							
- 1.1	$r \alpha$.	na	л.	mn	٥n	IT O
-		-	L U	_			

Materia utilizada para la separación U-238/U-235

	para	/
Destilación	UR	1.000
Reacción de intercambio	UR	1.000
Difusión gaseosa	UF.	1.0043 (1.003)*
Difusión térmica	UFL	Huy bajo
Centrifugación	UF ₆	1,058
		* Valor obtenido

en la práctica

Esto debería indicar que la centrifugación es un método muy efectivo para la separación del uranio-235, sin embargo, pese a la puesta a nunto, a escala piloto, de varios tipos de centrifugadoras (de co rrientes paralelas, contracorriente v evaporación) los problemas -tecnológicos encontrados (rotores que debían girar a velocidades-muy elevadas, etc.), la escasa capacidad de producción y el consumo energético elevado (necesario para vencer los rozamientos) han hecho que se abandone el empleo a gran escala de este método. Lo mismo sucede con la difusión térmica que sin embargo se ensavó a escala industrial, pese al bajo valor de 🗸 y la poca capacidad de producción. La instalación fué concebida para realizar un enri-quecimiento previo que alimente una unidad de separación electro-magnética. Pero el consumo importante de vapor, el abandono de la unidad de separación electromagnética para la separación uranio----238/uranio-235 y el éxito (que rebasó las previsiones) de las ins talaciones de difusión gaseosa han obligado a abandonar este méto-do.

Difusión gaseosa.

El método de difusión gaseosa para la separación de isótopos se fun da en la distinta velocidad con la que se difunden, a través de una barrera porosa, gases o vapores de diferente peso molecular.

Las barreras que se utilizan en el proceso de separación de los is<u>ó</u> topos del uranio contienen cientos de millones de poros por pulgada cuadrada, siendo el diámetro medio de los poros del orden de 2 mi--llonésimas de pulgada.

La difusión de una molécula isotópica ligera, a través de una barre ra de este tipo, será más rápida que la de una molécula pesada, resultando de ello una separación parcial de ambos isótopos. El gas que atraviesa primero la barrera será algo más rico en el isótopo li gero mientras que el gas restante contendrá una mayor proporción del isótopo pesado.

Para la separación isotópica del uranio por difusión, el compuestogaseoso que se utiliza es el Hexafluoruro de uranio, UF.. Como ya se ha descrito, esta sustancia es sólida a la temperatura ordinaria, pero tiene una temperatura de sublimación relativemente baja, por lo que se vaporiza con facilidad.

En la figura 2.8 se observa la presión de vapor del hexafluoruro de uranio en función de la temperatura.



Figura 2.8.- Presión de vapor del hexafluoruro de uranio en función de la temperatura.

ń

42

.5

Desde el punto de vista de la difusión gaseosa, el empleo de hexafluoruro de uranio ofrece dos ventajas principales. La primera esla masa atómica, bastante baja del flúor (19.0), que impide quela masa molecular del gas -inevitablemente alta tratándose de un compuesto de uranio- sea excesivamente alta, ya que, cuanto menorses la mase molecular del gas, mavor es el rendimiento de separa--ción en las condiciones dadas. La segunda ventaja, es que el flúor sólo contiene una especie isotópica, de modo que los únicos isótopos a separar en el proceso de difusión son los del uranio. Las -principales desventajas del hexafluoruro de uranio son su acción fuertemente corrosiva sobre muchos metales, y su fácil interacción con la humedad para formar fluoruro de uranilo sólido (UO_F_). Este procedimiento de difusión gaseosa está basado en la ley de ---Graham, que estableció hace más de un siglo derivada de la teoríacinética de los gases y que prevé que la velocidad de difusión deun gas a través de una membrana porosa hacia un espacio mantenido en vacío es inversamente proporcional a la raíz cuadrada del pesomolecular del gas en cuestión.

De esta ley se deriva el factor de separación « para dos gases, el · cual está dado por la siguiente ecuación:

siendo M (pesado) y M (ligero) los pesos moleculares de las espe-cies isotópicas pesada y ligera, respectivamente. En el uranio natural, también existe uranio -234 aparte de uranio-238 y uranio-235, pero su influencia es despreciable debido a su muy baja proporción. Por consiguiente, como el gas difusor es hexa fluoruro de uranio:

por lo tanto, utilizando la ecuación (2.4), el factor de separación teórico es igual a:

$$\propto = \sqrt{\frac{352}{349}} = 1.0043$$

En la práctica se ha visto que no se alcanza el factor de separa--ción teórico, si no un valor inferior (\ll = 1.0030) como se observ en la tabla 2.1.

En la figura 2.9 se muestra cómo está montada una etapa de difusió gaseosa.

١



Figura 2.9.- Etapa de difusión gaseosa.

à.

Como el factor de separación tiene un valor tan próximo a la uni--dad, el grado de enriquecimiento que se alcanza en una sola etapade difusión es muy pequeño, por lo que el efecto puede multiplicar se haciendo uso de una cascada de etapas de difusión, como la quese observa en la figura 2.10.



Figura 2.10.- Etapas de una cascada de difusión.

La descripción del proceso es la siguiente: el gas que aún no se ha difundido y que procede de la etapa superior, se envía a través de un enfriador para que por medio de un refrigerante quitar el calor producido en el momento de la compresión y penetra en la etapa do<u>n</u> de se desplaza a través de una barrera (diafragma poroso). La presión en el compartimiento P_2 es menor que en el compartimien to P_i . Se ha demostrado que la eficacia de una etapa de difusión de este tibo es óptima si,se recicla el 50% del gas que ha atravesa do de este modo la barrera porosa.

El gas del compartimiento P, se inyecta y comprime en un compresor hacia la fase superior, el de P, se dilata a través de una válvula-de control hacia la fase inferior.

Las presiones P, y P, son inferiores a la presión atmosférica, esto se hace principalmente por tres razones:

- Alargar el recorrido libre medio de las moléculas y mejorar el factor de separación.
- 2) Impedir una solidificación eventual del UF₆.

3) Evitar fugas hacia el exterior del UF, .

ù

Tampoco pueden tolerarse entradas de aire en el sistema porque provocarían una reacción inmediata del UF, con la humedad del aire y la formación de óxidos sólidos que taponarían los poros; la formación de ácido fluorhídrico provocaría corrosiones, pérdidas de uranio, -dilución del UF, por el óxigeno, nitrógeno, etc.

Como el uranio natural contiene 0.714% de uranio-235 se puede calcular su abundancia antes de la separación (R), de acuerdo a la ecua ción (2.1):

 $R = \frac{N}{1-N} = \frac{0.00714}{1-0.00714} = 0.00719$

En la realidad, es preciso unir millares de etapas de difusión como las de la figura 2.10 para elevar la concentración del uranio-235 de 0.007 a 0.8 o 0.9. La figura 2.11 muestra la disposición completa de un sistema de este tipo. Se observa que la cantidad de productos que circulan se hace progresivamente menor a medida que se produceel enriquecimiento. Dado que el producto eliminado como desecho dela primera cascada contiene aún 99.7% de la cantidad inicial de ura nio-235, es indispensable añadir una sección de "stripping " o ago tamiento que permita recuperar una parte importante del uranio-235 que de otro modo se perdería.

.5



Figura 2.11.- Disposición completa de un sistema de difusión gaseosa.

Debido a la baja cantidad de materia purificada obtenida, es preciso realizar con eficacia el cálculo de bombas, compresores y cascadas de forma adecuada.

Si se llama F a la cantidad de producto que se alimenta al sistema, de acuerdo a un balance de materia en el sistema de la figura 2.11, se tiene:

$$\mathbf{F} = \mathbf{P} + \mathbf{W} \tag{2.5}$$

$$N_{\rm F}F = N_{\rm P}P + N_{\rm w}W \qquad (2.6)$$

У

donde N_F, N_Py N_Wrepresentan la concentración de uranio-235 en F, - P y W respectivamente.

÷¢

N₁ F corresponde a la cantidad de uranio-235 que alimenta el sistema, N_PP la cantidad de uranio-235 purificado obtenido y N_wW a la cantidad de uranio-235 en los desechos.

Tomíndose como ejemplo una fábrica hipotética que deba producir --1 mol de uranio-235 por día, con una concentración isotópica de --0.8. Esta fábrica se alimentaría con uranio natural y se desea que los desechos no contengan más de 0.006 de uranio-235 ; cuál es la cantidad de uranio necesaria para alimentar tal fábrica? Como la cantidad de uranio-235 purificada es NPP, y se requiere la producción de 1 mol se tiene:

$$P = 0.235/0.8 = 0.294 \text{ kg}$$

y al ser uranio natural la alimentación, $N_{F} = 0.00714$, por lo tanto utilizando las ecuaciones (2.5) y (2.6):

$$F = 0.294 + W$$
 0.00714 $F = 0.235 + 0.006 W$

Eliminando W de estas dos ecuaciones se tiene:

$$F = 204.6 \text{ kg}$$

Por lo que se precisa una cantidad relativamente muy importante de uranio. El producto purificado solo representa una pequeña fracción de la alimentación (0.14% en el ejemplo), pero el uranio-235 obtenido en forma purificada es una porción apreciable del uranio-235 presente en el producto de alimentación (se recupera en el ejemplo 16%).

El número de etapas de difusión que se necesitan para llegar a una abundancia R_P determinada a partir de una abundancia R_F dada. se puede calcular por la siguiente ecuación:

$$S \simeq \frac{1}{\alpha - 1} \ln \frac{R_P}{R_F}$$
 (2.7)

en la que S es el número de etapas y 🗙 el factor de separación. Es ta ecuación es válida cuando « se aproxima a la unidad.

-5

como la alimentación es uranio natural $R_F = 0.00719$, usando la ecuación (2.2) se tiene:

$$R_{P} = \frac{0.8}{1 - 0.8} = 4$$

y de acuerdo a la tabla 2.1, \propto = 1.003, por lo tanto, sustituyendo en la ecuación (2.7):

$$S = \frac{1}{1.003 - 1} \ln \frac{4}{0.00719} = 2107$$

También se puede calcular el número de etapas de difusión en la sec ción de agotamiento, en la que se llega a una abundancia R_w , a partir de la abundancia R_F dada:

$$S \simeq \frac{1}{\kappa - 1} \ln \frac{R_W}{R_F}$$
 (2.8)

Para el cjemplo anterior:

:3.0

$$R_w = \frac{0.006}{1-0.006} \simeq 0.006$$

y usando la ecuación (2.8):

$$S = \frac{1}{1.003 - 1} \ln \frac{0.006}{0.00719} = 60$$

por lo que se requieren 2107 etapas en la sección de enriquecimien to y 60 etapas en la sección de agotamiento.

Punde calcularse también la cantidad de materia que se desplaza através de las etapas a un nivel de concentración N determinado. La ecuación que permite este cálculo es la siguiente:

$$I_{N} = \left(\frac{2P}{\alpha - I}\right) \left(\frac{N\rho - N}{N(1 - N)}\right)$$
(2.9)

Utilizando esta ecuación en el ejemplo anterior, suponiendo que se ha alcanzado un nivel de concentración N = 0.05, se tiene:

ب

$$T_{(1)} = \left(\frac{2 \times 0.294}{1.003 - 1}\right) \left(\frac{0.8 - 0.05}{0.05(1 - 0.05)}\right) = 3095 \text{ kg/d}$$

También puede calcularse la cantidad de materia total que se despla za por medio de la siguiente ecuación:

$$L_{1,r_{1}} = \left[\frac{2}{\alpha - 1}\right] \left[S_{s} W(1 - 2N_{w}) + S_{e} (2N_{p} - 1)\right]$$
(2.10)

donde:

Para el ejemplo anterior se calcula la cantidad de materia total que se desplaza:

$$L_{TOT} = \begin{bmatrix} 2 \\ 1.003 - 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (60) & (204.306) & (1 - 2x0.006) & + & (2107) & (2x0.8 - 1) \end{bmatrix}$$
$$L_{TOT} = 8.92 \times 10^{6} \text{ kg/d} = 25.34 \times 10^{6} \text{ mol } UF_{4} \text{ /d}$$

Por lo que se observa que se necesita una enorme circulación de ma teria para 25.34 x 10^6 mol UF,/d, (o sea 293.3 mol/s) se precisará para esta circulación una gran cantidad de potencia, esta se puede calcular por la siguiente ecuación:

$$Pot = W_{com} L_{ToT} \qquad (2,11)$$

donde Ψ_{com} es el trabajo de compresión que se calcula por la si-guiente ecuación:

$$W_{com} = RT \ln \frac{P_F}{P_g}$$
 (2.12)

d onde:

Por lo que, haciendo la suposición en el ejemplo a terior de que el gas está a una temperatura de 100°C (372°E) y que la relación entre las presiones sea de 10, el trabajo de compresión será:

$$\mathcal{V}_{m} = (8.314 \frac{J}{m01^{2}K}) - (373^{\circ}K) \ln 10 = 7141 - s/mo1$$

v utilizando la ecuación (211), la potencia total será:

Pot = $(7141 \frac{7-g}{mol})$ (293.3 $\frac{mol}{g}$) = 2.09 x 1067

Las cifras obtenidas en el ejemplo anterior, muestran que se debe disponer de enormes cantidades de energía en este tipo de proceso de separación.

Además del problema de energía existen otros a los que se debe tener atención como los siguientes:

- 1.- Preparación de la barrera porosa: para que la difusión se lleve a cabo adecuadamente, es preciso que el diámetro de los poros que componen la barrera sea del orden de 1/10 del recorrido libre medio de los moléculas. Los poros no deben taponearse y es preciso que resistan diferencias de presión del orden de latm. Existe poca información sobre la naturaleza de los mate riales que forman estos poros. Sin embargo, puede citarse el e pleo reciente de películas a base de alcohol polivinílico cu ya permeabilidad nuede controlarse cuidadosamente. Estas películas, se almacenan bien durante un tiempo determinado en unaatmósfera de humedad variable, o durante un tiempo variable en una atmósfera de humedad fija. Estas películas absorben cada vez una cantidad dada de agua que se reemplaza a continuaciónpor alcohol etílico. De este modo se controla de cerca su poro ridad.
- 2.- El conjunto del equino debe estar riturosemente limpio (tapona dura de poros, fugas, etc.).
- 3.- El UFL es tóxico, y por otra parte, es preciso evitar toda acu mulación posible (solidificación, fugas de aire) de uranio-235 que pueda dar lugar a la formación de una masa crítica. Por -ejemplo, en algunas plantas además de millares de bombas se uti lizan gran cantidad de aparatos de control, entre ellos, gran -

número de espectrómetros de masas de análisis continuo para -comprobar, en cada instante y en cada etaba del proceso, la com posición de los productos tratados.

4.- Dado lo corrosivo del UF_s se utilizan los polifluoretilenos en gran cantidad para válvulas, bombas, tuberías, etc.

Como un ejemplo de estos equipos especiales utilizados en instalaciones que manegan combustibles nucleares se tienen los siguientes:

- 1.- Un espectrómetro de masas para el análisis continuo que sólo consume 40 mg de UF₆ por aparato y por día y permite controlar, con una precisión de 10%, hasta 0.1 mol por ciento de UF₆ y -l mol por ciento de HF (en presencia de O_{2} , N_{2} y O_{2}).
- 2.- Una cámara de ionización especial que permite el registro continuo de concentraciones tan bajas como 0.001 a'0.1% de UF, en N_r (el espectrómetro de masas indicado anteriormente se ha ut<u>i</u> lizado sobre todo para concentraciones de 0.1 a 100%).
- 3.- Un acoplamiento magnético que permite la transmisión de movi--miento de rotación con un par de 1.8 kgm (13 libras-pie) parauna rotación de 2.5°.
- 4.- Espectrómetros de masas simplificados para la detección de fugas de los sistemas de vacío que permiten detectar un trazador de fugas como el helio con una sensibilidad de l parte por ---150000 partes de aire.
- 5.- Un sistema que permite separar UF₆ del nitrógeno por sublimación a baja temperatura.
- 6.- Un método de absorción de UF₆ por lavado en aceite para separar gases inertes.
- 7.- Un sistema para la absorción continua del flúor en exceso queutiliza sosa caústica y una regeneración continua con cal para precipitar fluoruro de calcio.

Diseño de una etapa de difusión gaseosa. (11) (12)

En la parte anterior se describió el proceso de difusión gaseosa,los conceptos de factor de separación y abundancia antes y después de la separación, así también se realizó un ejemplo del cálculo de cantidades, concentraciones, número de etapas y potencia de un sis tema de difusión gaseosa.

En esta parte se describirán las ecuaciones necesarias para el diseño de una etapa de difusión gaseosa y también el diseño óptimo de la misma en función del costo del trabajo de separación.

La et pa de separación.

Una etapa de separación de isótopos simple, puede considerarse co-mo una caja negra que divide una corriente de alimentación en doscorrientes de productos, una enriquecida y la otra disminuída o ago tada con respecto al isótopo designado, como se observa en la figu ra 2.12.



Figura 2.12.- Etapa de separación isotópica.

La concentración en fracción mol del isótopo en la corriente enr<u>i</u> quecida se designa por "y" y en la corriente agotada por "x", los flujos molares en ambas corrientes se designan por L y L. El factor de separación " \propto " relacionado con "y" y con "x" se expresa de la siguiente forma:

$$\ll = \left(\frac{y}{1-y}\right) / \left(\frac{x}{1-x}\right)$$
 (2.13)

Rearreglando la ecuación se obtiene:

53

e,

$$y - x \ge (\alpha - 1) \times (1 - x) \equiv \psi x (1 - x)$$
 (2.14)

donde el término Ψ se conoce como factor de enriquecimiento.

Eficiencia de separación.

La eficiencia de separación de una membrana para una difusión gaseo sa se define como:

$$Z = eficiencia de separación = \frac{y-x_W}{y-x^*}$$
(2.15)

d ond e:

- $x_w =$ fracción mol del isótopo en la pared de la membrana en la zona de alta presión.
- x^* = fracción mol del isótopo en la pared de la membrana parael caso de flujo difusional puro a través de la membrana.

donde el término x^{*} se obtiene de la ecuación (2.13) con la ecuación (2.4), $\alpha = \sqrt{M(\text{pesado})/M(\text{ligero})}$,

$$\frac{y}{1-y} = \alpha \cdot \frac{x^*}{1-x^*}$$

La eficiencia de separación en función de las condiciones del proc<u>e</u> so se expresa mediante la siguiente ecuación:

$$Z = (1-r) f (P_{r}, P_{\beta}, T)$$
 (2.16)

donde:

 P_F = presión en el lado de alta presión, psias P_B = presión en el lado de baja presión, psias T = temperatura absoluta del gas,°R r = P_B/P_F

El término (1-r) describe la difusión en sentido inverso de la zona de baja a la de alta presión.

La función "f" vale casi la unidad a bajas presiones donde las coli siones intermoleculares son menores, cuando la presión aumenta las colisiones aumentan y la función "f" disminuye. Para procesos comunes la función "f" se puede determinar con presición teóricamente pero para la difusión gaseosa "f" se determina experimentalmente. Se ha desarrollado la siguiente ecuación empírica para determinar ~

.

÷¢

la función "f" y por lo tanto la eficiencia de separación de una - membrana:

$$Z = (1-r)\left(\exp\left[\frac{-R' \operatorname{Pr}(1-r)}{66.8 \operatorname{m}^{1/455}}\right]\right)$$
(2.17)

d onde:

R'= radio de los poros de la membrana, Å

T = temperatura absoluta, K

Eficiencia de mezclado.

Las capas próximas a la membrana disminuven la calidad de la separación, éstas pérdidas se engloban en el término de eficiencia demezclado.

En la figura 2.13 se observa un modelo le fluio en las proximidades de la membrana.



Figura 2.13.- Modelo de flujo para eficiencia de mezclado.

 $\begin{pmatrix} \text{Fluid de isitopos} \\ \text{condirección a} \\ \text{la pared de la} \\ \text{membrana} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \text{Difusión de} \\ \text{isótopos en} \\ \text{la pared} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \text{Flujd de isótopos} \\ \text{de la pared} \\ \text{de la membrana} \end{pmatrix}$ $v q x - k_{wlld} \begin{pmatrix} \frac{dx}{dz} \\ \frac{dz}{dz} \end{pmatrix} = v q y \qquad (2.18)$

donde:

v = velocidad del gas a trovés de la membrana, pie/s-(' = densidad del gas, lb/nie³
x = fracción mol del isótopo en el lado de alta presión.
y = fracción mol del isótopo en el lado de baja presión.
. = espesor de la capa próxima a la membrana, pies
km= coeficiente de transferencia de masa, pie/s
s = distancia de la interfase de la zona turbulenta y la capa próxima a la membrana a un punto en la capa próxi ma a la membrana, pies

De la integración de la ecuación (2.18) se obtiene:

$$E = \frac{y - x_{k}}{y - x_{w}} = \exp\left(-\frac{y}{k_{w}}\right)$$
(2.19)

d onde:

E = eficiencia de mezclado.

x_h= fracción mol del isótopo en la interfase de la zona tur bulenta y la capa próxima a la membrana.

Con la utilización del número de Reynolds se obtiene:

$$\frac{1}{k_{\rm b}} = \frac{2}{T} \left[\frac{\pi}{10} \right] \left[\frac{1}{V} \right]$$
(2.20)

dorde:

y = viscosidad del gas, lb/pie·s
f = factor de fricción de Fanning.
D = difusividad molecular, oies%s
V = velocidad del gas paralela a la pared, pie%s

Con la combinación de las ecuaciones (2.19) y (2.20) se obtiene:

$$E = \exp\left(-\frac{2}{f} \quad Sc \quad \frac{v}{V}\right)$$
 (2.21)

donde:

Sc = número de Schmidt. (4/Df).

Corte de la etapa.

E al corte de le etana de difusión graeosa se puede observar queue u un precio de fluco erusado, por lo que la relación entre el nunto de separación y le etapa global se obtiene por un balance di ferencial de materia similar a una destilación Ravleigh como se in dica en la figura 2.14.



Figura 2.14.- Corte de una etapa de difusión gaseosa.

Por lo tanto se obtiene:

$$F_{\mu\nu}x = ydF_{\mu\nu} + (F_{\mu\nu} - dF_{\mu\nu}) (x - dx)$$
 (2.22)

donde:

 F_M = fluro molar a lo largo de la membrana.

Te la ecuación (2.14) e involucrando las eficiencias de separación y de mezclado se tiene:

$$(\alpha - 1) \quad \text{EZ} = \frac{\gamma - x}{x(1 - x)} \tag{2.23}$$

Eliminando y entre las ecuaciones (2.22) y (2.23) y resolviendo la ecuación diferencial (2.22) se obtiene el factor de enriquecimiento de la etapa:

$$D = \frac{v_2 - x_4}{x_4 \sqrt{1 - x_4}} = (x - 1) \overline{\mathbb{R}2} - \frac{1}{\overline{\mathbb{R}}} - \ln \sqrt{1 - x_4}$$
(2.24)

donae:

- $y_e =$ fracción mol del isótopo en la corriente enriquecida a la salida.
- x_d = fracción mol del isótopo en la corriente agoinda a lasalida.
 - $\hat{\Xi}$ = relación entre el flujo que se difunde que cruza la mem brana y el flujo dentro de la etapa.

La capacidad de separación de la etapa SC es:

$$SC = \frac{1}{4} (\Psi)^{2} L$$
 (2.25)

donde:

L = flujo molar que se difunde a través de la membrana.

La capacidad de separación es una cantidad que es directamente pro porcional a la suma de los flujos manores en una capacita de etapas ideal y por lo tanto directamente proporcional al tamaño de la cas enda " a la potencia requerida para obtener la separación. Las uni dades de la capacidad de separación son las mismas de la de los flu jos de las corrientes. También, la capacidad de separación de una cascada de etapas es una medida del trabajo de separación necesario en el sistema de difusión gaseosa, usualmente expresado en kg de uranio por año (kg USW/yr) o en toneladas métricas de uranio por año (MTUSW/yr), estas unidades para trabajo de separación incluyen especificaciones para evitar confusiones con las unidades de las corrientes del proceso.

Pérdidas por mezclado en la cascada.

Hasta ahora, se ha discutido el diseño de la etapa sin considerarcomo la etapa puede encajar en una cascada de etapas, que es el si<u>s</u> tema que se requiere para el proceso de separación. El efecto real importante en una cascada, puede aparecer como una diferencia en la concentración isotópica entre el flujo proveniente encima de la etapa " el flujo de la corriente enriquecida de la e-tapa de abajo. Las pérdidas por mezclado pueden ocurrir cuando estas dos corrientes se combinan como alimentación a la etapa de diseño.

Estas pérdidas se pueden calcular de manera similar a la capacidad de separación mediante la siguiente ecuación:

$$CML = \oint (1 - \frac{1}{\sqrt{2}}) \frac{(y_- - x_+)^{-}}{x_F^{-} (1 - x_F)^{-}} L \qquad (2.26)$$

donde:

- y_ = fracción mol de la corriente enriquecida proveniente de la etapa de abajo.
- x₊ = fracción mol de la corriente agotada proveniente de laetapa de arriba.
- x_{r} = fracción mol de la alimentación en la etapa de diseño.

$$\phi = L/(2L-P)$$

P = cantidad de producto enriquecido purificado.

Para hacer los balances de materia requeridos para calcular las -fracciones mol de las corrientes de las etapas arriba y abajo de la etapa de diseño se debe conocer la cantidad de producto purificado del sistema (P) y la fracción mol de la corriente agotada de la eta pa de diseño.

Por lo que, incluvendo las pérdidas por mezclado la capacidad de s<u>e</u> paración corregida (SCS) queda expresada como:

$$SCS = SC - CML$$
(2.27)

Ecuaciones de flujo y potencia.

A continuación se describirán algunas ecuaciones empíricas para expresar los cálculos de flujos y notencias para los diferentes componentes de la etapa de difusión gaseosa:

Flujo a través de la membrana (L):

$$\mathbf{L} = \mathbf{p}\mathbf{A}^{n}(\mathbf{P}_{\mathbf{F}} - \mathbf{P}_{\mathbf{P}}) \tag{2.28}$$

Donde:

- b = lbmol/s
- A = árca de la superficie de la membrana, pies"
- p = porosidad de la membrana.

La potencia para el flujo a través de la membrana queda descrita por la ecuación (2.11).

Flujo a lo largo de la membrana (F'):

$$F' = \frac{2\pi C \angle P}{\frac{dt_1}{d} \left(1 - \partial + \frac{\partial^2}{3}\right) - \left(\theta - \frac{d^2}{2}\right)}$$
(2.29)

donde:

Potencia para el flujo a lo largo de la membrana (P_{MX}):

$$P_{MX} = \frac{32flF^{3}}{550A_{X}^{2}d} \left[1 - \frac{3}{2} + \Theta^{2} - \frac{\Theta^{3}}{4} \right]$$
(2.30)

d onde:

 $P_{tyy} = Hp$

·otercia del compresor (Pe):

.

$$P_{c_1} = P_{(r_1)} \left(1 - \gamma_{(r_2)} \right)$$
(2.31)

d ond e :

 $P_e = Hp$ $P_{i_n} = potencia de eje del compresor, Hp$ $\mathcal{N}_e = eficiência del compresor.$

Flujo a través de la tubería y válvulas (F;):

$$F_{i} = A_{i} \left[\frac{l_{i} \Delta P_{i} 2g}{C_{Li}} \right]$$

$$(2.32)$$

61

-2

donde:

 $F_{f} = lb_{m}/s$

- Ai = área de la sección transversal al flujo de la válvula o tubería, piest
- (i = densidad del fluído que circula nor le válvula o tube-ría, lb/pie³
- ΔP = caída de presión en la válvula o tubería, lb/pulg²abs
- Cui = coeficiente de pérdidas en la vélvula o tubería, es una función del número de Reynolds v la geometría del componente.

Potencia pars el fluio en la válvula s en la tubería (P():

$$P_{i} = \frac{F_{i} \Lambda P_{i}}{550 r_{i}}$$

donde:

 $P_i = Hn$

Flujo del gas de proceso e través del enfrindor (P.):

$$F_{W} = A_{W} \left[\frac{\sum_{\mu \Delta} p_{c} 2\mu}{C_{Lc}} \right]$$
(2.34)

d ond e:

 Fw = 1bw/s
 Aw - área de la sección transversal al fluio do gar de proceso en el enfriador, pies?
 fw - densided del gas de proceso, lb/pie³
 ΔPc - caída de prosión en el enfriador, lb/pulg²abs
 CLc = coeficiente de pérdidas en el enfriador, es una función del número de Reynoldo y la geometría del componente.

Potencia para el flujo del gos de proceso en el enfriador (Pw):

$$P_{w} = \frac{1}{550} \left[F_{cs} Cn_{c} \ln \frac{T_{H}}{T_{c}} - F_{w} Cp \ln \frac{T_{B}}{T_{s}} \right] T + P_{co} \qquad (2.35)$$

donde:

 $\begin{array}{l} P_{w} = Hp \\ F_{cs} = 1b_{m}/s \\ Cp_{e} = capacidad calorífica del refrigerante a presión constan \\ te, 1b_{f}pie/1b_{m}^{\circ}R \\ T_{H} = temperatura del refrigerante a la salida del enfriador, \\ {}^{\circ}R \end{array}$

- T. = temperaturo del refrigerante a la entrada del enfriador,
- in canacidad cilerífica a presión constante del gas de proneso, ib_pie/lb_R
- $m_{\mu_{c}}$ = temperatura del gas de proceso a la entrada del enfria-dor, "R
- $\mathbb{T}_{\mathcal{G}}$ = temperatura del gas de proceso a la salida del enfriador, $^\circ R$
- T = temperatura del difusor, "R
- P_{co} = potencia debida a la disminución de la presión en los dos fluidos que fluyen a través del enfriador, Hp

Flujo de refrigerante (Fcs):

$$F_{cs} = \Lambda_{cs} \left[\frac{\ell_{cs}/\Lambda_{cc}^{2} 2\pi}{C_{cs}} \right]$$
(2.36)

d onde:

F_{c5} = 1b_m/s
A_{c5} - área de la sección transversal al flujo de refrigerante, nics
...s = densidad del refrigerante, 1b/pic³
...P_{c5} = caída de presión en la tubería donde circula elrefrigerante, 1b/pulg³2bs

C_{Les}= coeficiente de pérdidas en la tubería donde circula el -refrigerante, es una función del número de Reynolds v lageometría del componente.

Potencia para el flujo del refrigerante (P_{cs}) :

ń

$$P_{cs} = P_{i_h} - \frac{1}{550} F_{cs} C p_c T \ln\left(\frac{T_H}{T_c}\right) + \frac{P_{cs}'}{10} (2.37)$$

d onde:

 $P_{cs} = Hp$ $P_{cs}' = potencia debida al bombeo del refrigerante para el sis$ tema de remosión de calor externo a la etapa, Hp Diagrama de flujo mara el diseño de una etapa.

El diagrama de flujo da los detalles de los pasos a seguir para rea lizar el diseño de la etapa de difusión gaseosa, en la figura 2.15 se muestra este diagrama:



Firura 2.15.- Diagrama de fluzo para diseñar una etapa de difusión gascosa.

La figura 2.15, es entonces un diagrama de flujo simplificado del diseño de una etaba. El primer paso consiste en los términos de va riables activas e inactivas. Las variables activas son: el tipo de etapa, la temperatura de la membrana, la presión, el flujo de la corriente de agotamiento, la geometría de la membrana y los tama--ños o dimensiones de los componentes.
Estas variables pueden cambiarse durante la optimización del proc<u>e</u> so para determinar sus valores óptimos.

Las variables inactivas en cambio, no se pueden cambiar durante el diseño de la etapa, ejemplos de estas variables son: la cantidad de producto de carga a la planta, producto de **ensayo**, concentración de la alimentación a la etapa, propiedades de la membrana y cantidades invariables.

Como segundo paso se deben medir o calcular las presiones, tempera turas y flujos en la etapa, posteriormente se debe evaluar la capa cidad de separación y la potencia requerida.

En el siguiente paso, de acuerdo a la información económica previa acerca de costos de potencia, costo del equipo, cantidad de cargaen la planta, etc se estimará el capital necesario para el requer<u>i</u> miento de la operación.

Si el costo es mínimo, se puede entonces especificar el difusor, compresor y tamaño de los componentes de la etapa de difusión. Siel costo no es mínimo se debe volver al paso inicial y reajustar las variables activas.

Este costo mínimo se puede expresar como la razón del costo míñimo anual del diseño de la etapa y la capacidad de separación anual de la etapa y se puede expresar en \$ por kg de uranio.

Optimización.

Como un ejemplo de la optimización en el diseño de una etapa de di fusión gaseosa se elaboraron dos gráficas en las que se muestran los costos del diseño de la etapa por kg de uranio como función del flujo a través de la etapa y de la razón de presiones a los ladosde la membrana, y como función del volumen de succión del compresor. Estas gráficas se obtuvieron con el uso de las ecuaciones (2.17),-(2.21) y las ecuaciones de flujo y potencia para los componentes de la etapa; la eficiencia del compresor (\mathcal{T}_e) se tomó como 0.75, los coeficientes de mérdidas en la tubería como 1.0 y el radio delos poros de la membrana como 100 Å. También fueron utilizadas las ecuaciones de costo para componentes de la etapa que se observan en la tabla 2.2. Tabla 2.2.- Ecuaciones de costo de componentes de la etapa.

Componente	Ecuación de costo
Membrana	\$ = 5 X A
Difusor	\$ = 2 X Dc X A
Compresores	$\$ = 2.5 (CFM)^{\circ.8}$
Motores	$S = 300 (kw)^{0.7}$
Enfriador	\$ = 2 X A
Válvulas y tuberías	$3 = 1000 (2D_1^{1,3} + D_{3,}^{1,4} + D_{3}^{1,5})$

Donde:

A = área de la superficie de la membrana, pies² Do= diámetro del difusor, pies CFM= volumen de succión del compresor, pies³ kw= potencia del motor, kw D₁, D₂, D₃ = diámetros de válvulas y tuberías, pies

En la figura 2.16 se representa el costo de diseño de la etapa por kg de uranio como una función del flujo a través de la etapa y dela razón de presiones a los lados de la membrana,

Se puede observar que el menor costo se da a un flujo de 300 lbmol/hr y una razón de presiones de 5.5, el cual representa el punto óptimo de costo mínimo, por lo que entre más cercano se encuentre el punto de operación más óptimo será el proceso.

El alargamiento de las curvas hacia la derecha se debe al alto cos to de remosión de calor del sistema, debido al aumento de la razónde presiones.

En el punto de razón óptima de presiones de 5.5, al disminuir el fl<u>u</u> jo el control de la presión de la etapa disminuye, lo que origina -mayores pérdidas por mezclado y esto aumenta los costos para todos= los sistemas, excepto el de remosión de calor. Contrariamente al aumentar el flujo aumenta la presión de la etapa pero el costo del sis tema de remosión de calor aumenta.



Figura 2.16 .- Costo de diseño de la etapa por kg de uranio como una función del flujo a través de la etapa y de larazón de presiones a los lados de la membrana.

En la figura 2.17 se representa el costo de diseño de la etapa por kg de uranio como una función de la presión de la etapa y el volumen de succión del compresor, aquí se puede observar que el puntoóptimo de costo mínimo se encuentra a una presión de 9 psias y unvolumen de succión de 9600 pies: si el volumen de succión aumenta, el costo de la membrana y compresores se eleva debido al aumento del tomaño físico del equipo, si se aumenta la presión el equipo decrece en tamaño, sin embargo a altas presiones la realización de la separación se deteriora requiriendo más etapas para un trabajo de separación adecuado. Moviendo el punto óptimo hacia el origen, la etapa empequeñece y la presión también bais pero el flugo resultante es aprovechado al límite, en la otra dirección (alegarse del origen) la presión aumen ta a se requieren mís etapas.

En resumer, la ortimización del diseño depende de las consideraciones particulares de cada sistema y de las características que se quiera o no minimizar en mayor o menor grado en el proceso.



Figura 2.17 -- Costo de diseño de la etapa por kg de uranio como una función de la presión de la etapa y del volumen de -succión del compresor.

CAPITULO 111

REPROCESADO DE COMBUSTIBLES. (4) (6) (7) (8)

A.- Generalidades.

En un reactor nuclear nunca se llega a una combustión completa del producto fisionable, bien debido a la aparición de productos que tienden a detener la fisión absorbiendo neutrones (venenos), o bien debido al agotamiento de las especies fisionables que pueden disminuir de tal modo la reactividad que dejen de satisfacer las condiciones de funcionamiento del reactor. Por otra parte, las variacio nes de forma y dimensiones, producidas como consecuencias de la -irradiación continuada y de la acumulación de productos de fisión, pueden llegar a limitor el tiempo de nermanencia de un elemento -combustible en el reactor.

Finalmente, diversas causas accidentales -rotura o debilitación de la cubierta por choque térmico, fallo de soldaduras, quemado des-tructivo, corrosión, aumento de fragilidad, etc.- pueden hacer necesaria la sustitución de elementos combustibles.

Cualquiera que sea la causa, el combustible irradiado de un elemen to que se descorga del reactor contiene todavía une cantidad consi derable de isótopos fisionables y, a menudo, de especies fértiles. El objetivo de la operación de reprocesado es por lo tanto recuperar estos valiosos materiales en la mavor contidad posible y de la manera más económica, en una forma que les haga aptos para su nueva utilización en el reactor u otras aplicaciones.

En un reactor que utilice como combustible uranio natural -o liger<u>a</u> mente enriquecido- de modo que hava siempre presentes cantidades apreciables de uranio-238, se producirá inevitablemente la formación del isótopo plutonio-239.

Si se deja a este último permanecer en el reactor, no solo contribuirá al proceso de fisión en cadena, sino que capturará también neutrones térmicos, para producir el isotopo no fisionable pluto-nio-240. Este, a su vez, dará lugar a la formación de plutonio ----241, v así sucesivamente. El tiempo de permanencia de los elementos combustibles en un reactor nuclear dependerá de que el reactor esté destinado a la producción de energía o a la producción de plutonio. En un reactor de potencia, es posible prolongar por más tiempo laoperación, puesto que las especies fisionables plutonio-239 y plutonio-241 contribuyen a la reactividad neutrónica global. En cam-bio, cuando el objetivo principal es la producción de plutonio-239, hay que tener en cuenta tanto las pérdidas como la presencia de otros isótopos de plutonio, es decir, las variaciones de pureza is<u>o</u> tópica, que pueden ocurrir con largos tiempos de exposición. El reprocesado de elementos combustibles irradiados implica genera<u>l</u> mente tres etapas distintas:

a) enfriamiento.

b) tratamiento previo.

c) separación o extracción.

El procedimiento concreto preferible para cada etapa, aunque no -siempre posible, depende de la naturaleza del elemento combustible y del tratamiento a que ha de someterse el material recuperado. Se deben de tomar en cuenta dos puntos generales de gran importancia, antes de considerar los aspectos del reprocesado de combustibles; en primer lugar, en todas las etapas del tratamiento de elementos combustibles; es necesario estar absolutamente seguros de que no se alcanza una masa crítica del material fisionable, sea en estado sólido o en disolución.

En segundo lugar, dada la intensa radiactividad del combustible irra diado, inclusive después de un periodo de enfriamiento, es preciso disponer de técnicas e instalaciones especisles para la realización de las operaciones y el mantenimiento del epuipo.

B.- Productos de fisión.

Un estudio detallado de la fisión del uranio-235 por neutrones len tos,ha puesto de manifiesto que el núcleo compuesto se escinde enmás de 40 formas diferentes, dando lugar a unos 80 productos de fi sión primarios (fragmentos de fisión). El intervalo de números másicos que corresponde a estos productos v. desde 72, probablemente un isótopo del zinc (número atómico 30), a 160, posiblemente un isótopo del terbio (número atómico 65).

En la figura 3.1 se representan gráficamente los números másicos de los productos de fisión térmica del uranio-235 y la fisión rápida del uranio-238, en función de los correspondientes rendimientos de

69

fisión: el rendimiento de fisión se define como la proporción (o <u>por</u> centaje) de fisiones nucleares que originan productos de un númeromásico determinado.



Figura 3.1.- Rendimiento de fisión en función del número másico.

Es de notar que, al producirse dos núcleos por cada acto de fisión, el rendimiento total para todos los números másicos es del 200 por ciento. La razón de que en la figura se consideren los números másicos y no los números atómicos es que la mayoría de los fragmentos de fisión son radiactivos, desintegrándose por emisión de una partícula beta negativa. En consecuencia, los números atómicos cambian con el tiempo, mientras que los números másicos no se ven afectados por la desintegración beta.

También se puede observor en la figura 3.1 que las masas de casi todos los productos de fisión se distribuyen en dos amplios grupos: un grupo " ligero " con números másicos comprendidos entre 80 y 110, y un grupo " pesado ", con números másicos comprendidos entre 125 y 155. Hay algunos productos intercalados entre estos intervalos y también fuera de ellos, pero en conjunto no representan más que un pequeño porcentaje del total de fisiones. El tipo de fisión más pro bable, que comprende muy cerca del 6.4 por ciento del total, produce fragmentos de números másicos 95 y 139. Resulta evidente que la fisión del uranio-235 por neutrones lentos es asimétrica, en la gran mayoría de los casos. Curvas similares a la de la figura 3.1 pero con los máximos y mínimos legeramente desplazados con respecto a -los del uranio-235, han sido obtenidas para la fisión por neutro--nes lentos del uranio-233 y del plutonio-239. Al aumentar la energía neutrónica, aumenta la probabilidad de que se produzca fisión simétrica, como vuede apreciarse en la curva superior de la figura. Paralelamente a la distribución de números mésicos entre los produc tos de fisión, se ha observado también una distribución de energía cinética. En consecuencia, se han detectado dos grupos distintos-de energías cinéticas, análogos a los dos grupos de números másicos; los valores de estas energías cinéticas son, aproximadamente, 67 Mev para el miembro más abundante del grupo pesado y 98 Mev para el correspondiente del grupo ligero. El cociente entre ambas cifras es--1.46. y este valor es muy próximo, debido a la conservación de la cantidad de movimiento. al cociente entre los números másicos de máximo rendimiento, es decir, (139/95)-1.46.

Durante el proceso de fisión, son expulsador muchos de los electr<u>o</u> nes orbitales del átomo que fisiona, resultando de ello que los fragmentos de fisión quedan fuertemente cargados.

Los fragmentos ligeros transportan, por término medio, unas 20 unida des de carga positiva, mientras que la carga positiva de los fragmentos pesados es del orden de 22.

Tales partículas, moviéndose con velocidades del orden de 10° cm/s, son capaces de producir considerable ionización a su paso a través de la materia. Como la masa y la carga de los fragmentos son crandes, la ionización específica es alta; su alcance es, por consi -guiente, relativamente corto. Se ha encontrado que los alcances en aire de los grupos ligero y pesado de los fragmentos de fisión son del orden de 2.5 cm y 1.9 cm. Estos alcances son similares a los que presentan las partículas alfa procedentes de fuentes radiactivas. El alcance de los fragmentos de fisión en diversos materiales es un dato de gran importancia para el proyecto de reactores, ya quees necesario evitar que dichos fragmentos escapen del elemento com bustible.

En la tabla 3.1 se muestran los alcances reales en ciertos mate--riales importantes, así como las densidades superficiales correspondientes.

Tabla 3.1.- Alcances aproximados de los fragmentos que se producen por fisión térmica del uranio-235.

Material	Alcance (10 ⁻²) (cm)	Densidad superficial (mg/cm ^{\$})				
Aluminio	1.4	3.7				
Cobre	0.59	5.2				
Plata	0.53	6.1				
Oro	0.59	11.1				
Uranio	0.66	12.6				
Oxido de uranio	1.4	10.0				

Como aproximación de trabajo, el alcance de los fragmentos de fi-sión, en cualquier medio, puede tomarse igual al de las partículas alfa de 4 Mev.

En principio, es posible expresar la velocidad de desintegración de la mezcla compleja de productos de fisión, en función de los rendimientos de fisión y de las constantes de decaimiento **ra**diactivo de los diversos productos. Pero esto corece totalmente de sentido prác tico dada la complejidad de la expresión resultante. Afortunadamente, el problema ha sido resuelto en forma mucho más simple, aunque aproximada. Los periodos de los productos de fisión radiactivos va rían muy considera blemente, desde fracciones pequeñísimas de se--gundo hasta millones de años. Sin embargo, se ha encontrado que es posible representar la velocidad de emisión de partículas beta y de fotones gamma mediante una expresión empírica sencilla, cuya exacti tud está limitada probablemente por un factor no superior a dos.Pe ra intervalos de tiempo comprendidos entre 10 segundos v varias se manas despues de producirse la fisión, estas velocidades de emisión de partículas (por fisión) se expresan aproximadamente del modo siguiente:

Velocidad de emisión de radiación beta $\simeq 3.8 \times 10^{-6} t^{-1} \text{ partículas}/(\text{s})(\text{fisión})$ (3.1)

Velocidad de emisión de radiación gamma

$$\simeq 1.9 \times 10^{-6} t^{-13}$$
fotones/(s)(fisión) (3.2)

siendo t el tiempo transcurrido, expresado en días. La energía media de las partículas beta de los productos de fisión es de unos -0.4 Mev, y las de los fotones gamma es del orden de 0.7, por cons<u>i</u> guiente,

Velocidad de emisión de energía beta y gamma

$$\simeq 2.8 \times 10^{-1.4} Mev/(s)(fisión)$$
 (3.3)

C.- Enfriamiento de los elementos combustibles irradiados.

La finalidad de la denominada etapa de enfriamiento es permitir la desintegración de los diversos núcleos radiactivos presentes en el combustible irradiado. Se incluyen, entre estos, productos de fi-sión e isótopos de elementos de número másico alto, es decir, 92 - (uranio) y siguientes.

Las consecuencias más importantes de la etapa de enfriamiento son las siguientes:

1) La actividad beta y gamma disminuye hasta un nivel para el que ya no es importante la descomposición radiolítica de los reactivos a utilizar en el tratamiento.

2) Los productos de fisión de periodo corto decaen casi totalmente, lo que simplifica la operación de reprocesado, puesto que se reduce el número de impurezas que hay que eliminar del combustible irradiado.

3) Ciertos isótopos pesados, que no pueden separarse químicamente de los productos finales, decaen hasta un nivel en el que la radia<u>c</u> tividad deja de constituir un problema.

Si en la fase de extracción - o de separación - del tratamiento de reprocesado se han de utilizar disoluciones, se requiere un tiempo de enfriamiento bastante largo, del orden de 100 días. En cambio,para ciertos procesos de separación, en los que no se utilizan disoluciones y es factible la manipulación a distancia, pueden bastar

73

tiempos de enfriamiento relativamente cortos. Desde el punto de vis ta económico, la reducción del periodo de enfriamiento es muy conve niente. Los costos de enfriamiento, en los que se incluyen las cargas de almacenamiento, de uso - o arrendamiento - del combustible y del capital invertido en el inventario de combustible, pueden con tribuir sensiblemente al costo global de la energía nuclear. Según las ecuaciones (3.1) v (3.2), les actividades beta v gamma de los productos de fisión son aproximadamente proporcionales a t-V-, siendo t el tiempo transcurrido desde la descarga del reactor. Porconsiguiente, la actividad al cebo de 100 días es del orden de 10^{-4} de la actividad al cabo de 1 hore. En la figura 3.2 se representan las principales contribuciones de los productos de fisión individua les a la actividad total, durante el intervalo de enfriamiento. Los resultados se basan en la hipótesis de que los elementos combusti-bles han permanecido en el reactor durante mucho tiempo, de manera que, en el momento de la descarga, se había alcanzado una condición aproximada de equilibrio.



.Figura 3.2.- Actividad de los productos de fisión durante el periodo de enfriamiento.

Como se observa en la figura 3.2, al cabo de 100 días de enfriamien to, sólo una docena de elementos son los responsables de casi todala radiactividad. Estos son los elementos de los que deben separarse el uranio y el plutonio, en el reprocesado de combustibles. Hay además unos cuentos elementos, tales como las tierras raras samario y hafnio, que deben separarse, no por su radiactividad, sino por su gran sección eficaz de captura para neutrones térmicos. En la figura 3.3 se puede apreciar una ilustración de cómo se van acumulando los isótopos pesados, en un combustible integrado por uranio-235 y uranio-238.



Figura 3.3 .- Acumulación de isótopos pesados en el uranio.

Las flechaghorizontales apuntando a la derecha representan reaccio nes (n, y), mientras las que apuntan a la izquierda representan reacciones (n, 2n) con neutrones rápidos. Las flechas verticalesindican desintegración beta. En la ilustración, se observa que seforma uranio-237 a partir del uranio-235 por la reacción (n, y),y a partir del uranio-238 por la reacción (n, 2n). Como los isóto pos de un elemento determinado se comportan de modo idéntico en las operaciones de reprocesado, queda claro que el isótopo uranio-237, fuertemente radiactivo, estará presente en la masa de uranio recupe rado. Cuando este último ha de utilizarse directamente en la fabricación de elementos combustibles para reciclar en un **re**actor, o bién ha de convertirse en hexafluoruro para enriquecerse de nuevo en una

75

planti de difusión gaseosa, se requiere generalmente que la activ<u>i</u> dad del uranio-237 sea la misma, más o menos, que la del uranio natural en equilibrio con sus productos de desintegración de pe-riodo corto. Las actividades beta y gamma correspondientes son:

Actividad beta = 0.67 microcurie por gramo Actividad gamma = 0.16 microcurie por gramo

El tiempo necesario para que la actividad del uranio-237 decaiga a estos niveles varía un poco con la naturaleza del combustible, el flujo del reactor y el tiempo de irradiación, pero suele ser, en general, de 100 a 120 días.

Durante este intervalo de tiempo, la mayor parte del uranio-237 se desintegra a neptunio-237, el cual, por tratarse de un elemento -distinto se separa durante el reprocesado. También cabe hacer no-tar que el neptunio-239 se desintegra casi completamente al cabo-de 100 días, para formar plutonio-239, haciendo posible la recuperación máxima de este último.

D.- Tratamientos previos.

El objeto del tratamiento previo es preparar los diferentes tipos de elementos combustibles para que puedan ser tratados todos ellos en la misma planta de extracción.

El procedimiento de recuperación más corriente toma como punto departida una disolución acuosa de nitratos, por lo que la explica-ción siguiente quedará restringida a los tratamientos previos adecuados a este método de recuperación. Suponiendo que se han retira do los recipientes, soportes y demás componentes metálicos extra--ños, los tratamientos previos se clasifican en cuatro categorías:

a) retirada de la cubierta - o desencamisado - por medios mecánicos.
b) desencamisado por métodos químicos o electroquímicos.

- c) disolución del combustible, pero no de la cubierta.
- d) disolución completa del elemento combustible.

El desencamisado mecánico se utiliza mucho en Inglaterra y Francia para retirer la cubierta - aluminio o magnox - de los combustibles de uranio metálico. Estes últimos se disuelven luego en árido nítrico, disolución queconstituve el material de alimentación del proceso de recuperación. En E.U.A., sin embargo, los métodos mecánicos se reservan para aque llos elementos combustibles que utilizan Na% como material de liga mento, va que el tratamiento de los metales alcalinos con disolu-ciones acuosas implica cierto riesgo. Aunque el desencamisado mecá nico tiene la gran ventaja de simplificar el problema de elimina-ción de residuos, no parece que sea un método práctico cuando se trata de elementos combustibles de dióxido de uranio, debido a ladilatación del combustible como consecuencia de la irradiación. En tales circunstancias, la separación completa del combustible y cubierta sería probablemente muy difícil.

Se han desarrollado varios métodos para realizar el desencamisado por vía química, cuya aplicación depende de la naturaleza de los m<u>a</u> teriales combustibles y de la cubierta; estos métodos aparecen res<u>u</u> midos en la tabla 3.2.

Cubierta	Combus tible	Reactivo					
Acero	U (metal)	Hason 6M					
Inoxidable	U-Mo (aleación)	(Proceso Sulfer)					
	0.05						
	UO2-ThO2						
Acero	Th-U (nlención)	HNO3 5M + HC1 2M					
Inoxidable	UO2 - Th O2	(Proceso Darex)					
Zirconio	1102	NHUF 6M + NHUNO3 1M					
o Zircaloy	U – Zr (alención)	(Proceso Zirflex)					
	U = Zr - Nb	NH F 5.4 M + HNO 0.33M					
3-		$+ H_{\lambda}O_{\lambda}$ 0.13M					
		(Proceso Zirflex modificado)					
Aluminio	U (metal)	NaOH 5M + NaNO3 2.5M					
	U-Mo (aleación)						

Tabla 3.2.- Métodos químicos de desencamisado.

El proceso Darex no puede utilizarse para eliminar la cubierta de acero inoxidable de un elemento combustible de dióxido de uranio,puesto que este último es soluble en la mezcla de ácidos nítrico v cloraídrico. Es insoluble, en cambio, el combustible dióxido de -torio-dióxido de uranio.

En el método de desencamisado electrolítico, que se encuentra en etapa experimental, el elemento combustible se conecta a un ánodode niobio de una celda electrolítica conteniendo ácido nítrico. Se hace pasar luero una corriente, de este modo se ha conseguido la disolución de varios tinos de acero inoxidable. Cuando la cubierte es de zirconio, una gran proporción de este elemento precipita en forma de óxido, que puede retener contidades apreciables de uranio. Pa ra que el método sea satisfactorio, es conveniente la disolución-completa del zirconio.

Una dificultad con la que se tropieza en el desarrollo de métodosquímicos para la disolución de cubiertas, inherente tombién a losprocedimientos electroquímicos, es la incertidumbre respecto a los contidades de uranio v plutonio, procedentes de la región del combustible, que de disuelven o quedan en suspensión en forma de ózidos.

ESTA TESIS NO SALE DE LA BIBLIOTECA

De tener que recuperar estas pérdidas, desaparecería la ventaja -del desencamisado independiente. Una posible solución a este pro-blema, actualmente en fase de investigación, consiste en cortar en trozos el elemento combustible, lixiviar su contenido interior y dejar libre la cubierta. En caso de que se disolviese una pequeñacantidad del material de cubierta, ello no afectaría al tratamiento subsiguiente.

Cuando la disolución de la cubierta resulta inconveniente, difícil o imposible, por ejemplo, cuando el elemento combustible contieneuna matriz, o una aleación de acero inoxidable o aluminio, se procede a disolver el elemento v la cubierta en una sola operación. El tratamiento que se sigue es similar, en ciertos aspectos, al de disolución del material combostible una vez eliminada la cubierta. En la tabla 3.3 se consignan algunos de los procedimientos desarro llados, aplicables a diversos tipos de combustibles, revestidos ono.

Tabla	3.3	. –	Disolución	de	elemen'os	combustibles	con	ο	sin	cubierta
-------	-----	-----	------------	----	-----------	--------------	-----	---	-----	----------

Material combustible				Reactivo
	Sin cubie	ert:	 1	
U, UO2, U-MO				Acido nitrico
U-Zr, U-Zr-Nb, UO2 -ThO2				Acidos nítrico - fluor.firico
	Cupierta	de	alumi	nio
U, U-A1, U-Mo			Acido	nitrico + nitroto mercúrico
	Cubierta	de	acero	inoxidable
U, U-Mo, UO2, UO2 en acer.	inóx.			Acidos nítrico y clorhidrico (solución Darex)
	Cubierta	de	Zirco	nio
11-Mo, UO, U-2r, U-2r-Nb				Acidos nítrico v fluorhidvico + Nitrato alumínico

Conviene hacer notar los siguientes puntos sobre la tabla 3.3: 1) Aunque los sistemas de uranio - Zirconio se disuelven en ácido nítrico, la reacción puede llegar a ser explosiva, a menos que hava -presente fluoruro. 2) Al disolver las aleaciones de uranio - molib-deno, parte del molibdeno puede precipitar en forma de trióxido ---(MoO3), arrastrando consigo cierta cantidad de uranio, por lo pue se

79

debe alacar el precipitado con hidróxido de sodio, que disuelve el MoO_3 y deja inalterado el uranio.

Los métodos de tratamiento de combustibles aís modernos, por ejemplo. Aranio disperso en óxido de berilio, carburo de uranio y carburo de uranio disperso en grafito se encuentran en fase de investigación. Los combustibles con base de grafito se pueden disgregar y lixiviar con ácido nítrico al 90%; otro procedimiento consiste en eliminar -el carbono por combustión y disolver el residuo (dióxido de uranio) en ácido nítrico con fluoruro como catalizador. Otra forma de ata-que, que puede aplicarse a diversos combustibles cerámicos, es un procedimiento de cortado en trozos o trituración, seguido de lixi-viación. El uranio del carburo de uranio puede extraerse con ácidonítrico.

5. Tratamientos de separación.

El objeto principal de la etapa de separación, en el reprocesado de combustibles irradiados, es extraer los elementos uranio y plutonio en formas apropiadas para su utilización posterior, ya sea como combustibles reciclados o como material de alimentación en una planta de enriquecimiento isotópico, o bien en aplicaciones militares. Además de esto, los residuos conteniendo productos de fisión pueden aprovecharse para recuperar determinados isótopos, de valor científico o comercial.

Los métodos de separación más prometedores se agrupan en tres cate gorias principales:

a) Procesos en disolución acuosa, en los que la separación principal se realiza mediante técnicas de extracción líquido-líquido o intercambio iónico.

b) Métodos de volatilización, que se basan en la destilación del hexafluoruro de uranio.

c) Procedimientos pirometalúrgicos, tales como la eliminación de impurezas en forma de óxidos.

Existen otros procedimientos - por ejemplo, extracción por metales líquidos o sales fundidas, destilación de metales, fusión por zonas y refinado electrolítico - que han sido objeto de investigación experimental, pero cuya potencialidad no ha sido establecida todavía.

Los tratamientos basados en la extracción del uranio y del plutonio, de sus disoluciones acuosas, mediante un disolvente orgánico son, con mucho, los de desarrollo más avanzado, puesto que vienen utilizándose en gran escala desde 1951. Los tratamientos previos descritos en la sección D son, en realidad los que se emplean para preparar la disolución de alimentación correspondiente a este método de extracción. Los factores de descontaminación (relación en tre las concentraciónes de productos de fisión, antes y después -del tratamiento) que se alcanzan corrientemente son del orden de- 10^{7} a 10^{6} . La actividad gamma debida a productos de fisión , en el uranio extraído, es inferior a la del uranio natural. Fuede por consiguiente, someterse a operaciones de fabricación por manejo directo, o bién convertirse en hexafluoruro para separación isotó pica, en el supuesto de que el uranio-237 se haya desintegrado lo suficiente.

El proceso de volatilización más interesante se basa en el hecho de que el hexafluoruro de uranio es volátil, mientras que la mayoría de los productos de fusión forman fluoruros que no se volatil<u>i</u> zan con facilidad. Llegan a obtenerse factores de descontaminación similares a los que se leanzan por extracción líquido-líquido. El método de volatilización aventaja al tratamiento en disolución -acuosa en su menor número de operaciones y en una reducción con siderable del volumen de residuos, altamente radiactivos. Existen, sin embargo, ciertas limitaciones, como se verá más adelante, querestringen el campo de ablicación de este método de separación por volatilidad.

En la mayoría de los procedimientos pirometalúrgicos, el combustible irradiado se trata tal como está, sin que intervenga ningún -proceso de disolución ni ninguna otra transformación química. Como 'os factores de descontaminación son solamente del orden de 100 el producto que se obtiene es fuertemente radiactivo y requiere -manipulación a distancia. En estas circunstancias no resulta necesario un periodo de enfriamiento prolongado. De esta manera, basta probablemente que el combustible irradiado se enfríe durante unos 10 días, en lugar de los 100 requeridos por otros métodos de re procesado. Las técnicas pirometa úraicas se prestan bién a los lla mados procedimientos de " ciclo cerrado ", en conexión estrecha -con el funcionamiento del reactor.

F.- Química de los elementos pesados.

Los tratamientos de separación, y particularmente el basado en la extracción líquido-líquido, dependen del comportamiento químico al go peculiar de los elementos pesados, es decir, de número másico alto. En el séptimo periodo de la tabla periódica, hay una serie de elementos que comienza en el actinio (número atómico 89), denominada serie de los actínidos, que recuerda a los elementos delas tierras raras (lantánidos) del sexto periodo. Los elementos lantánidos poseen todos propiedades químicas similares, basados en una valencia positiva 3, resultante de la existencia en cada átomo de tres electrones extornos débilmente ligados. También en la serie análoga de los actínidos nav semejanzas notables entre los diversos elementos, especialmente en lo que se refiere a la formación de un estado trivalente positivo (111). Ahora bién, como algunos de los elementos actinidos poseen elec trones más internos no muy fuertemente ligados, cabe la posibilidad de que adopten estados de valencia tetrapositivos (IV), pen tapositivos (V) y hexapositivos (VI). La existencia de estosestados superiores de oxidación es justamente, la que facilita la extracción y separación de los elementos pesados.

Los estados de valencia positivos correspondientes a los nueve -primeros miembros de la serie de los actínidos figurar en la tabla 3.4.

Tabla 3.4.- Estabilidad relativa de los estados de oxidación de los elementos actínidos.

Núm, Atómico	- 89	- 90	91	92	- 93	94	95	96	97
Elemento	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk
111	****	+	+?	** '	##	+++	****	***	****
1V		****	цэ.	***	****	****			**
V			+++	+	***	**	+		
٧٦				****	***	***	+		

En la tabla 3.4, se expresa la estabilidad relativa de los diferen tes estados de cada elemento. El estado más estable se representa por cuatro asteriscos, disminuyendo el número de éstos al ir decre ciendo la estabilidad.

Para los actínidos posteriores al berkelio (número atómico 97), solamente se conoce el estado (111).

Aunque en un determinado estado de valencia los diversos elementos actínidos poseen propiedades químicas similares, estas propiedades son con frecuencia muy distintas cuando se trata de estados de ox<u>i</u> dación diferentes.

Por ejemplo, los estados (111) y (1V) pueden precipitarse de su disolución acuosa en forma de fluoruros, pero no los estados -(V) y (V1). Por otra parte,los fluoruros de los estados (111) y (1V) no son volátiles, mientras que los fluoruros del estado -(V1), de los que es représentante el hexafluoruro de uranio, se volatilizan a temperaturas bastante bajas. Otra diferencia importante es la que se observa en el comportamiento de los nitratos. Los correspondientes a los estados (1V) y (V1) son apreciablemente solubles ën ciertos líquidos orgánicos, mientras que los nitratos del estado (111) son prácticamente insolubles en dichos líquidos. Hechos de esta clase son los que se han utilizado para establecer procedimientos de separación entre los elementos actínidos. La estabilidad relativa de los diversos estados de oxidación ha si do determinada cuantitativamente, a partir de medidas de los po tenciales correspondientes de oxidación-reducción. Entre las conclusiones deducidas, algunas son especialmente interesantes en relación con este tema.

Se ha encontrado que al aumentar el número atómico, el estado (1V) se hace cada vez menos estable con respecto al estado (111).Enel uranio, por ejemplo, es tan estable el estado (1V), que in-cluso el agua es capaz de producir la oxidación del estado (111) al estado (1V); recíprocamente, la reducción del uranio al esta do (111) es muv difícil, y cuando se forma en disolución acuosa, se reoxida inmediatamente. El neptunio (111) es algo más estable que el uranio (111), a pesar de lo cual se oxida fácilmente en disolución - por ejemplo, por aire - a neptunio (1V). Con el elemento siguiente, plutonio, se necesita un agente oxidante más enérgico - por ejemplo, un nitrato - para convertir el estado (111) en estado (1V). El estado (111) es bastante estable en disol<u>u</u> ción, incluso en presencia del aire y se obtiene por reducción del estado (1V) mediante una sal ferrosa.

Con respecto a los estados (1V) y (V1), aparece una disminución similar en la facilidad de oxidación al aumentar el número atómico. Así, el uranio (1V) se oxida muy fácilmente a uranio (V1), mien tras que este último es muy difícil de reducir.

En realidad, como se indica en la tabla 3.4, el estado (VI) es el más estable de todos los estados de oxidación del uranio. En -cambio, la oxidación de neptunio y plutonio al estado (VI) requiere un oxidante moderado, tal como el bromato en caliente o el ion cromato en medio ácido. Agentes reductores bastante suaves,co mo los iones nitrito y voduro, pueden reducir el neptunio del estado (VI) al estado (IV) y el plutonio (V) al estado (III). El uranio (VI), sin embargo, resultaría inafectado por estos reactivos.

La facilidad relativa de oxidación y reducción resulta afectada, en ciertos casos, por la acidez del medio y siempre, por la formación de iones complejos. Si un estado determinado se encuentra en forma de complejo, dicho estado adquiere una estabilidad adicional con respecto al estado sin complejar.

84

Al comparar los estados (111) y (1V) de los elementos actínidos, se ha comprobado que el segundo tienen mayor tendencia a formar an<u>io</u> nes complejos, lo que hace posible un método para estabilizar el -estado (1V) con respecto al estado (111). Así, por ejemplo, laadición de iones complejantes sulfato a una disolución de plutonio hace más difícil la reducción del estado (1V) al estado (111). De aquí que, al reducir una disolución de plutonio (V1) en pre sencia de sulfato, el proceso pueda detenerse en el estado (1V), mientras que en ausencia de sulfato la reducción continuaría hasta el estado (111).

CAPITULO 1V

DESCRIPCION DE LOS MEAMAMIENMOS DE SEPARACION.

A.- Separaciones nor volatilización. (4) (6)

La separación de elementos por volatilización, método que se basa en las diferencias de presión de vapor de los propios elementos o de compuestos apropiados, ha venido utilizándose durante muchos años, especialmente en el estudio de materiales radiactivos. En las primeras etapas del programa de energía atómica, se consideró seriamente la posibilidad de extraer el plutonio de los combustibles irradiados por volatilización, pero este método de separación no llegó a elaborarse con detalle, debido a que los procesos de precipitación, primero, y de extracción líquido - líquido, después parecían ofrecer mayores perspectivas de éxito inmediato. Aunque el empleo de la extracción líquido-líquido ha producido una economía de costos considerable, respecto al proceso original de precipitación, el tratamiento sigue siendo complicado. Por ello, se -muestra renovado interés por las separaciones no acuosas, basadas en la volatilidad del hexafluoruro de uranio.

Entre las ventajas inherentes a estos procesos, se cuentan las siguientes: 1) El uranio se recupera en una forma (hexafluoruro)-directamente utilizable como material de alimentación para una -planta de difusión gaseosa, encontrándose también más cerca del producto final para la fabricación de elementos combustibles (me tal o dióxido) que en el caso de separaciones por vía líquida. 2) Pueden utilizarse dos operaciones básicas de ingeniería química, destilación fraccionada v absorción, que han alcanzado un alto gra do de desarrollo tecnológico.

También, el proceso de volatilización es de especial interés para combustibles muy enriquecidos, que contienen cantidades considera bles de zirconio, o constituidos por mezclas de fluoruros. La gran mayoría de los productos de fisión forman fluoruros que sólo se volatilizan a temperaturas altas. Como se observa en losdatos de la tabla 4.1 entre los elementos que contribuyen apreciablemente a la actividad de un combustible irradiado, solamente los fluoruros de telurio, molibdeno y antimonio hierven o subliman a temperaturas moderadas o bajas.

.

Tabla 4.1.- Puntos de ebullición (o de sublimación) de fluoruros a la presión atmosférica.

Fluoruro	<u>Temperatura (°C</u>					
TeF	-38.3					
MoF	35					
IJŦ	54.6					
PuF	62.3					
SbF	150					
۳bFs	229					
PuFs	313					

De los fluoruros que se volatilizan con mayor facilidad que el hexafluoruro de uranio, el nexafluoruro de telurio es un compuesto gaseoso a la temperatura ordinaria, de modo que puede separarse fácilmente. Cualquier cantidad de hexafluoruro de molibdeno -que se volatilizase y condensase con el hexafluoruro de uranio no sería grave, puesto que el radioisótopo más importante, molibdeno -99, tiene un periodo de 67 horas y decae casi completamente en el intervalo de unas cuantas semanas.

Prescindiendo del hexafluoruro de plutonio, todos los fluoruros restantes son mucho menos volátiles que el hexafluoruro de ura nio, de manera que su separación por destilación fraccionada no constituye problema.

En los métodos para convertir combustibles irradiados en fluoruros, el plutonio se encuentra en forma de tetrafluoruro, no volátil. Por consiguiente, controlando cuidadosamente la volatilización v la condensación subsiguiente, puede obtenerse el uranio - en forma d<u>e</u> hexafluoruro - libre de plutonio y, prácticamente, de todos los productos de fisión. El producto condensado puede purificarse por destilación fraccionada o por absorción sobre fluoruro sódico gra nular. A temperaturas por debajo de 250°C (480°F), este último for ma un complejo con el hexafluoruro de uranio que es retenido, mien tras que las impurezas quedan en libertad. Elevando luego la tem-peratura a 400°C (750°F) en presencia de una corriente de flúor gaseoso, se desprende el hexafluoruro de uranío que puede condensarse en estado puro.

En principio, el plutonio puede recuperarse de los residuos de -fluoruro transformándolo, por reacción con flúor, en hexafluoruro y volatilizándolo luego.

Ahora bien, la reactividad química del hexafluoruro de plutonio es tan grande, que resulta un material de muy difícil manejo, nor cuya razón no han sido resueltos todavía los problemas que se plantean en la etapa de separación del plutonio. Esta es la causa de que el proceso de volatilización del fluoruro interese especial -mente para combustibles muy enriquecidos, en los cuales es despreciable la formación del plutonio. Si existieran en los residuos -cantidades suficientes de plutonio para que interesara su extracción habría que acudir a un método de tratamiento por vía líquida. El procedimiento para convertir en fluoruros los elementos contenidos en un combustible irradiado depende de la naturaleza de éste. Si se trate de combustible de uranio metálico, con poca cantidado ninguna- de agentes aleantes, lo que se hace es quiter la cubier ta al elemento y tratar el material combustible con un compuesto interhalógeno lípuido, tal como el trifluoruro de bromo (BrE). Este reactivo transforma directamente el uranio en hexafluoruro. Las aleaciones combustibles de uranio-zirconio son solubles en una mezcla fundida de fluoruro sódico v tetrafluoruro de zirconio, a temperaturas del orden de 600°C (1100°F), prestándose, nor tanto, al proceso de volatilización. Se calienta el combustible con la mezcla de fluoruros fundidos, en presencia de fluoruro de hidróge no, reaccionando el uranio para formar tetrafluoruro. Este último se convierte luego en hexafluoruro, a la temperatura existente. -por medio de flúor gaseoso. Es de suponer que los combustibles -irradiados, en forma de mezclas de fluoruros fundidos, nodrían reprocesarse por tratamiento directo con flúor, para producir hexa --fluoruro de uranio. Sin embargo, aunque se ha desarrollado un gran trabajo en escala de planta piloto, no se ha aplicado en gran esca la este procedimiento.

B.- Procesos pirometalúrgicos.(4) (6)

En los procesos a temperatura elevada -o pirometalúrgicos-, el com bustible permanece constantemente en estado metálico. Los factores de descontaminación que se alcanzan son relativamente pequeños del orden de 100, de manera que las operaciones de fabricación a que se debe de someter el material recurerado deben realizarse a distancia. Por otra parte, al queder eliminados los tratamientos químicos con disoluciones diluidas, los volúmenes de residuos son mucho menores que en el reprocesado por vía líquida. Otra ventaja es que el combustible irradiado puede someterse al tratamiento tras un intervalo de enfriamiento breve, con la reduc ción consiguiente en el inventario de material fisionable. Además, la pirometalurgia evita el paso por un compuesto intermedio que sería preciso transformar de nuevo en el metal inicial y da un -uranio purificado que puede utilizarse directamente. No obstante, tras varios ciclos pirometalurgía-fisión, deben eliminarse algu-nos elementos, que tienden a acumularse en el combustible, por un procedimiento distinto de la pirometalurgía.

Se encuentran en fase de desarrollo varios procesos pirometalúr<u>gi</u> cos diferentes entre los que se encuentran la destilación de met<u>a</u> les, la extracción por metal o sal fundidos, la fusión por zonasy el refinado electrolítico. Pero el método más desarrollado es el que se basa en el refinado por fusión.

En el método de destilación de metales, el plutonio puede concentrarse por destilación del uranio fundido de 1500 °C a 1800 °C envacío; se han examinado las condiciones termodinámicas que resultarían de este tipo de separación y se ha observado que si el ura nio se mantiene fundido a una temperatura suficientemente elevada pueden separarse los productos de fisión volátiles: Xe,Kr,Rh,Cs,-Sr,Ba,I.Sn,Cd y Sb.

En la extracción por sales fundides o metales fundidos la separación de la mezcla uranio-plutonio puede efectuarse utilizando como disolventes halogenuros fundidos como el tetrafluorurode uranic o el cloruro de magnesio; en este caso un 90% del plutonio pasa a la fase salina que inicialmente es igual en peso a la fase metal. Este procedimiento se emplea para la purificación de los metaleslíquidos de los reactores homogeneos y permite eliminar la mayo-ría de las impurezas de sección de captura elevada. La separación puede realizarse también utilizando como disolvente metales fundi dos como la plata o el magnesio, no miscibles con el uranio v con cierto poder de extracción frente al plutonio. Como la presión de vapor del magnesio a la temperatura de fusión del uranio es muy elevada, es preferible utilizar la plata de la que se separan los metales disueltos por destilación.

En el refinado electrolítico se produce una separación electrolítica en un baño fundido dehalogenuros alcalinos o alcalinotérreos, los metales nobles se reúnen en forma de lodos en el ánodo. mientras que los metales reactivos se acumulan en el baño. Algunas veces se utiliza un ánodo hecho con un metal que da conel uranio una aleación de bajo punto de fusión que se retira lí-quida del baño en forma continua.

No obstante, el método pirometalúrgico más desarrollado es el de refinado por fusión, que se basa en la introducción de óxigeno en el baño fundido, lo que origina la formación preferente de los --óxidos más estables. El combustible se funde en un crisol refractario de óxido de zirconio, manteniendo la temperatura a 1400° C durante varias horas. Los gases nobles (kripton y xenon) y losmetales alcalinos (principalemente cesio) se volatilizan mien--tras que el itrio y los metales alcalinotérreos, más oxidables --que el uranio y el plutonio, se convierten en óxidos; éstos son retirados mecánicomente de las paredes del crisol. En la figuro -4.1 se represente un diagrama de bloques del proceso.



Figura 4.1.- Diagrama de flujo del proceso pirometalúrgico.

Entre los productos de fisión que no se eliminan, sino que se les permite reciclar, figuran el zirconio, el niobio y el molibdeno; estos elementos se añaden a veces deliberadamente a los combustibles de uranio, con el fin de mejorar sus propiedades metalúrgicas y de incrementar su resistencia al deterioro nor irradiación. Una desventaja que plantea el proceso de refinado por fusión es la pérdida apreciable de material físil, transportado punto con las impurezas al casco del crisol.

Como consecuencia del corto intervalo de enfriamiento y del valor. relativamente pequeño, del factor de descontaminación, el combus-tible recuperado poses todavía una radiactividad considerable. Con viene, por consiguiente, reducir el transporte a un mínimo. Esta es la razón de que la planta de refinado se encuentre integrada --con el propio reactor, en un ciclo del combustible cerrado. Una – característica interesante - y necesaria - del proceso es la etapa de refabricación de elementos combustibles realizada mediante una colada por invección, controlando la operación a distancia. El procedimiento consiste en hacer entrar el metal líquido en un haz de tubos sumergidos en la masa fundida; el metal solidifica en los -moldes, y, una vez rotos los tubos, quedan los elementos combustibles tipo aguja con las dimensiones desendas. Las siguientes oneraciones de colocación de la cubierta y aprupación de elementos combustibles se realizan también mediante técnicas a distancia.

C.- Separaciones por intercambio iónico. (4) (6) (13)

· • · •

El proceso de intercambio iónico ha sido utilizado tanto para purificar como para concentrar principalmente disoluciones que contienen plutonio, aunque también se utilizan en otras partes del ciclo del combustible nuclear. A continuación se describirán brevemente sus principios generales.

Ciertos sólidos, denominados cambiadores de iones, a pesar de ser insolubles en agua, son capaces de intercambiar iones positivos o negativos con iones de la misma carga existentes en una disolución acuosa. Se conocen en la actualidad materiales de cambio iónico de muy diversos tipos, pero los que se utilizan con mayor frecuencia son los basados en resinas sintéticas, constituidas por polímeros orgánicos insolubles de alta masa molecular. Son estas las denominadas resinas de cambio iónico.

91

Una resina de cambio iónico consiste, en general, en una estructu ra orgánica polimerizada, entrecruzada flojamente, a la que están ligados cierto número de grupos activos o funcionales. Las resinas de poliestireno se preparan por copolimerización de estireno y di vinilbenceno, el contenido de divinilbenceno varía de l a 16% para incrementar la cantidad de enlaces cruzados del polímero hidro carbonado insoluble. En las resinas catiónicas, el grupo funcional ligado a la resina tiene carácter ácido y es capaz de separar un ión hidrógeno; las resinas de ácido débil contienen generalmente grupos carboxílicos (-COOH) o fenólicos (-OH), mientras que las de ácido fuerte suelen contener el grupo sulfónico (-SO_H). En las resinas aniónicas, en cambio, el grupo funcional ligado a la resina tiene carácter básico. En las resinas de base débil estos grupos son los radicales amino ($-NX_{\lambda}$) o imino (= NX) -Xpuede ser hidrógeno o un radical orgánico-, mientras que en las resinas de base fuerte el grupo suele ser amonio cuaternario ----(-NX⁺), siendo X un radical orgánico. En la figura 4.2 se pueden observar diferentes estructuras de resinas de intercambio iónico. Cuando una disolución se pone en contacto con una resina cambiado ra, se produce generalmente un intercambio entre los iones en disolución y los iones móviles del mismo signo de la resina. Así, por ejemplo, una resina catiónica - representada por G.R. -siendo R la resina insoluble y G el hidrógeno ionizable que forma parte del grupo funcional (ácido) - intercambiará iones positivos A⁺, estableciéndose el equilibrio:

G•R + A⁺ A•R + G⁺

El resultado es que parte de la resina se convierte en $A \cdot R$, mientras que en la disolución quedan en libertad iones G^+ . La cantidad de iones G^+ puestos en libertad es equivalente a la -cantidad de iones A^+ retenidos por la resina, con lo que se satis face la ley de electroneutralidad. Se puede establecer una analo-gía similar para una resina aniónica.

El número de iones retenidos por una cantidad determinada de resina cambiadora es proporcional a la concentración de iones en disolución. Hay un límite, sin embargo, al que se denomina "capacidad" de la resina; suele variar con la naturaleza del material, pero, en general, es del orden de 2 a 5 equivalentes por K5 de resina.



Copolímero de estireno-divinilbenceno con enlaces cruzados



Resina de intercambio catiónico del tipo ácido fuerte



Resina de intercambio aniônico del tipo base fuerte

Figura 4.2.- Estructuras de resinas de intercambio iónico a base de estireno-divinilbenceno con enlaces cruzados.

La aptitud de una resina para retener iones diferentes - o su afi nidad por ellos -, en condiciones determinadas, depende de dos -factores: l) la carga del ion y 2) el tamaño del ion hidratado,-tal como existe en disolución. Cuanto mayor es la carga del ion-- positiva o negativa, según las circunstancias - y **cua**nto menor es su radio en forma hidratada, más fuertemente es retenida por una resina determinada. Así por ejemplo, para los iones Th^{+4} , La^{+3} , Ba^{+2} , y Na⁺, en disol<u>v</u> ciones equivalentes, el orden de retención por una resina determinada, es decir, el orden de afinidad, suele ser el siguiente:

El orden de retención para la serie de los iones alcalinos monova= lentes es

$$Cs^+ > Rb^+ > K^+ > Na^+ > Li^+$$

y para los iones - divalentes - alcalinottérreos es

 $\operatorname{Ra}^{+2} > \operatorname{Sr}^{+2} > \operatorname{Ca}^{+2} > \operatorname{Mg}^{+2}$

al menos en resinas del tipo ácido fuerte.

La técnica de separación por cambio iónico es aplicable, muy particularmente, a disoluciones diluidas. Entre sus posibles aplicaciones, merecen destacarse: 1) eliminación de sustancias útiles o indeseadas existentes en la disolución, 2) concentración - reducción de volumen - de disoluciones, 3) sustitución de un ion por otro y 4) separación de iónes entre sí.

Se han utilizado resinas cambiadoras, tanto aniónicas como catiónicas, para purificar las disoluciones de plutonio, especialmente para separar las impurezas de zirconio y rutenio y sus descendientes respectivos, niobio y rhodio, muy difíciles de eliminar por extracción líquido-líquido. En el proceso de intercambio catiónico.el plutonio, mantenido en el estado (111) mediante hidroxilamina. entra en la etapa de sorción por la resina disuelto en ácido nítri co diluido. La elución - que es la etapa en que se hace pasar una disolución para desprender los iones retenidos en la resina despla zándose siempre delante los iones menos fuertemente ligados - se lleva a cabo con ácido nítrico más concentrado, conteniendo ácido sulfámico para impedir la oxidación del plutonio al estado (1V). Cuando la purificación ha de realizarse mediante resinas aniónicas. el plutonio debe encontrarse en forma de anión complejo del estado (1V) con iones nitrito, que se obtiene mediante una disolución concentrada de ácido nítrico conteniendo nitrato sódico.

Para la elución, se emplea ácido nítrico diluido, de manera que el anión complejo se convierte en la forma catiónica simple, que puede encontrarse indistintamente en los estados (111) o (1V), ya que ninguno de ellos es retenido por la resina aniónica. Las impurezas - zirconio, rutenio y sus descendientes, - quedan retenidas en la resina durante el proceso de elución, sin que prácticamente aparezcan en el eluido.

Se han ideado también métodos de cambio iónico para la separación de plutonio y uranio, pero la limitada estabilidad de irradiación de las resinas hace su empleo prohibitivo en el primer ciclo delproceso de separación. Por consiguiente, los cambiadores iónicos se utilizan solamente en las últimas etapas de purificación o deconcentración de disoluciones de plutonio, cuando la radiactividad ha quedado considerablemente reducida por la separación masiva de los productos de fisión.

Desde el punto de vista de la ingeniería, el cambio iónico es una operación de difusión con trasferencia de iones de una fase a otra en un sistema heterogéneo líquido-sólido.

Normalmente las separaciones de intercambio iónico se realizan por lotes, conllevando las desventajas de producir concentraciones variables de efluente, complejidad de manejo, tiempo, etc. Por lo que el método continuo es más adecuado a nivel industrial. En el método continuo se ponen en contacto la resina y la solución con el o los componentes de interés a separar en una columna; el tratamiento matématico para el diseño de estas columnas es similar al que se utiliza para el cálculo de etapas, concentraciones etc. en la destilación fraccionada o absorción. En la referencia (13) se ofrece en detalle un método para intercambio iónico en columnas a cotracorriente.

D.- Separaciones por extracción.(4) (6) (14) (15)

El método de extracción líquido-líquido.para separar los consti-tuyentes de una disolución acuosa, puede aplicarse cuando uno o-más de estos constituyentes son apreciablemente solubles en un lí quido orgánico, prácticamente inmiscible con el agua, mientras que los restantes son mucho menos solubles. Al poner el líquido orgánicoen contacto intimo con la disolución acuosa, las sustancias presentes se distribuyen entre las dos fases, acuosa y orgánica.

El constituyente - o constituyentes - de mayor solubilidad en el el medio orgánico tenderá a pasar a dicha fase, mientras que los demás tenderán a vermanecer en la disolución acuosa. Se logra así una separación parcial de los constituyentes de la disolución. Como problema de ingeniería, se debe considerar la extracción por disolvente como una operación de difusión, en la que se produce transferencia desoluto desde una fase líquida a otra, prácticamen te inmiscible con la primera. La extracción líquido-líquido es quizá una de las operaciones básicas más simples, que se presta al control a distancia. Este aspecto tiene muchísima importancia, en relación con el tratamiento de líquidos altamente radiactivos, procedentes de la disolución de elementos combustibles irradiados. Para la elección del líquido orgánico para un proceso de extracción determinado, se deben tener en cuenta varios factores; estos suelen representar proviedades independientes del disolvente. demanera que la sustancia elegida puede suponer una solución que 🚽 retina la mejor combinación de características deseables, La propiedad más importante es la selectividad, o capacidad dellíquido orgánico para extraer un componente — o más de uno **— de la** disolución con preferencia a todos los demás. La selectividad se expresa mediante el factor de separación, que se define como la relación entre los coeficientes de reparto de las sustancias a -separar, entre las dos fases, una vez alcanzado el equilibrio. El coeficiente de distribución o de reparto, D, se define por:

 $D = \frac{Conc. del componente en fase orgánica}{Conc. del componente en fase acuosa}$ (4.1)

en el equilibrio, de manera que el factor de separación,🗙, vendrá dado por:

$$\boldsymbol{\boldsymbol{\propto}} = \frac{D \ (\text{producto})}{D \ (\text{impureza})} \tag{4.2}$$

Un buen disolvente orgánico para extracción es aquel en el que un componente determinado tiene un coeficiente de distribución grande y un factor de separación, muy grande o muy pequeño. Además de satisfacer esta condición, un buen disolvente orgánicodebe ser casi inmiscible con la disolución a extraer. Debe poseer suficiente estabilidad química para soportar la acción de concentraciones altas de agentes oxidantes y reductores. También debe de tener una adecuada resistencia a las radiaciones beta y gamma intensas, ya que ello permitiría acortar el tiempo de enfriamiento del combustible irradiado.

La extracción de un compuesto inorgánico en disolución acuosa, por ejemplo un nitrato, mediante un disolvente orgánico, viene influida por cierto número de circunstancias. En particular, tienen gran importancia la presencia de: a) agentes salinos, b) agentes oxida<u>n</u> tes y reductores, y c) aniones complejantes.

La presencia de agentes salinos que poseen el mismo anión que el compuesto inorgánico a extraer, incrementan el coeficiente de distribución, antes definido. En la extracción del nitrato de uranilo, por ejemplo, pueden utilizarse como agentes salinos el ácido nítri co o una de sus sales: nitrato sódico, potásico, cálcíco, alumínico, etc. Todos estos compuestos son solubles en la fase acuosa, pe ro no en el disolvente orgánico.

El coeficiente de distribución del nitrato de un elemento determix nado depende, muy considerablemente, del estado de oxidación en que se encuentra dicho elemento. En general, los nitratos de los elementos actínidos en estados (V1) y (1V) pueden extraerse fácilmente por ciertos líquidos orgánicos, mientras que la extracción resulta mucho más difícil, es decir, los coeficientes de reparto son menores, cuando se encuentran en los estados de oxidación más bajos. Una de las consecuencias de este hecho es que, una vez extraído el elemento por el disolvente orgánico, puede provocarse gu reextracción a fase acuosa por adición de un agente reductor. Cuando se han extraído juntos dos elementos actínidos en estados (1V) o (V), por ejemplo, uranio y plutonio, puede aprovecharse esta propiedad para separar ambos elementos entre sí. La separación puede realizarse reextrayendo la fase orgánica con una disolución acuosa, la cual reducirá a uno de los actínidos, pero no al otro. Como se indicó en la sección F del capítulo 111, el pluto nio se reduce mucho más fácilmente que el uranio al estado (111) que es prácticamente insoluble - inextraíble - en el líquido orgánico. Por tanto, el plutonio podría reextraerse con un agente --reductor adecuado en fase acuosa, quedando el uranio (V1) en -la fase orgánica.

La extracción de un elemento determinado, en disolución acuosa, mediante un medio orgánico, depende de la forma particular y con creta en que el elemento se encuentra en la disolución. Por ejemplo, el nitrato de uranilo hexahidratado puede extraersecon éter etílico, mientras que el sulfato correspondiente no se extrae por dicho disolvente. De esta manera, la adición de un sul fato - u otra sal de anión complejante - a la disolución acuosa de nitrato de uranilo, hará disminuir la extracción del uranio, puesque parte del elemento se encontrará en una u otra forma disto tinta del nitrato. Los aniones complejantes rebajan el coeficiente de distribución entre las fases orgánica y acuosa, resultando un efecto opuesto al de los agentes salinos de ion común. En resumen, la posibilidad de modificar cualquiera de los tres factores - agentes salinos, agentes oxidantes y reductores, y aniones complejantespresta gran flexibilidad al método de extracción líquido-líquido, aplicable a la separación de diversos elementos.

Los equipos en que se realiza el proceso de extracción pueden ser columnas verticales equipadas con boquillas, platos perforados, empaques, o bién con ejes centrales en rotación, o con agitadores; también se utilizan para el proceso dispositivos mezcladores-sedimentadores. Pueden existir muchas variantes en los diseños de los equipos, así como en el sistema de agitamiento o propulsión, para proveer una gran área interfacial para la trasferencia de masa entre las dos fases líquidas.

A continuación, para ejemplificar a los equipos de extracción, se describirá la configuración y accesorios de algunos de ellos:

Columna Mckittrick.

El equipo mostrado en la figura 4.3 es un mezclador-sedimentador vertical con un eje común para todas las aspas de mezclado (7). En cada etapa los líquidos fluyen paralelamente a la cámara de asentamiento. Las aspas de mezclado se montan en un eje vertical (8) que sobrepasa la altura de la columna por la divisiónhorizon tal (2), estas divisiones evitan el flujo de fluido entre las etapas de mezclado. Cada par adyacente de cámaras se encuentra -conectada por una pequeña válvula (11), que se usa como desenogo de aire o para drenar líquido de la cámara de abajo.

98



Figura 4.3.- Mezclador-sedimentador Mckittrick.

Los tubos horizontales (18, 19, 20, 21) están conectados a la mi tad de cada cámara, son cilíndricos y son completamente externosa la estructura de la columna que contiene a las cámaras de mezcla do; están conectados en arreglo T (22, 23, 24, 25) al interior de los conductos verticales que conectan con las partes más altas y más bajas de las cámaras.

La fase líquida pesada descargada de la parte de abajo se controla con la válvula (34) que actua por un controlador de nivel ---(36), que opera permitiendo solamente el paso de fase líquida -pesada.

La fase líquida ligera se descarga en lo alto de la columna controlada por una válvula actuando a presión (37) arreglada para mantener una presión predeterminada del sistema. La alimentación de fase líquida pesada entra a la columna por la línea (16) en la parte superior de la columna; mientras que la fase líquida ligera entra en la parte inferior por (17).
En la figura 4.4 se muestra un esquema del mismo equipo para poder visualizar el flujo por toda la columna. El flujo total es a con-tracorriente, el flujo de asentamiento es en la misma dirección -y la relación de la cantidad de las fases en la cámara de mezclado es esencialmente independiente de la cantid-d de flujo. Los volumenes de las cámaras de mezclado y asentamiento pueden ser variados dependiendo de los objetivos del proceso.



Figura 4.4.- Flujo en la columna Mckittrick.

Columna McConnell.

En la figura 4.5 se observa otro tipo de mezclador-sedimentador con un eje común para todos los mezcladores. La fase líquida pesada se bombea de etapa a etapa y la fase líquida ligera fluye por gravedad. Los líquidos mientras se asientan fluyen en la misma dirección. La relación de la cantidad de fases en la cámara de mezclado es rela--tivamente independiente de la cantidad de flujo debido a que el -bombeo entre las etapas pueda aumentarse o disminuirse para permitir que una de las fases se acumule. La fase líquida ligera se a--limenta por una boquilla en la parte de abajo de la columna (6) y la fase líquida pesada en la parte alta (8): al ingresar en -la columna, los líquidos circulan a contracorriente por la torre, la fase líquida ligera es descargada en la salida (7) y la pesada en la salida (9).

En su circulación por el aparato los líquidos se mezclan en las cámaras donde están las aspas de los agitadores (l0), pasan a las

cámaras de asentamiento donde se separan y se mantiene una interfase en la parte alta del compartimiento. La fase líquida pesadase bombea entonces por la salida (14), pasando a la siguiente sección de mezclado de abajo, donde entra y se pone en contacto con la fase líquida ligera que se está movienio macia arrita proveniente de la sección de abajo. El control de temperatura indivi dual de las etapas se realiza por el tubo (20).





Columna Scheibel.

La columna de extracción mostrada en la figura 4.6, es un mezcladorsedimentador con eje común para sus agitadores (3) con paletas -para la agitación (2). La diferencia con las dos anteriores radica en que las secciones de mezclado se alternan con secciones de -asentamiento empacadas. Los líquidos fluyen a contracorriente de manera continua. En este tipo de columnas se han observado grandes eficiencias, "debido a la transferencia de materia en el empaque en suma a las cámaras de mezclado.



Figura 4.6.- Columna de extracción Scheibel.

Extractor Holley.

El mezclador-sedimentador de la figura 4.7 es un extractor multietapas de tipo horizontal con un eje de agitación para cada etapa de mezclado y con recirculación de la etapa de asentamiento a la etapa de mezclado. La cantidad de líquido recirculado se controla por una válvula en la linea de recirculación, permitiendo variar la relación de las fases en la cámara de mezclado.

El flujo ocurre por gravedad; la fase líquida ligera entra en (y) y sale en (y') después de pasar por las etapas de mezclado, mientras que la fase líquida pesada entra por (z) y sale por (z'). La emulsión de la cámara de mezclado fluye por (d) a la cámara de asentamiento, donde la fase líquida pesada se divide y parte es recirculada a la cámara de mezclado por (e), y parte se envía a la siguiente sección de mezclado por la conexión (g). La faselíquida ligera pasa de cada sección de asentamiento a la siguiente sección de mezclado por (f).

El dispositivo de "recirculado está diseñado para mantener un control de la relación de las cantidades de las dos fases en la cámara de mezclado, independientemente de la cantidad de alimenta ción de las fases.

Figura 4.7.- Mezclador-sedimentador Holley.

Extractor Van Dijck.

El equipo mezclador-sedimentador mostrado en la figura 4.8 es un extractor de tipo inclinado en que los líquidos fluyen a contracorriente por gravedad (10a,10b,10a,10b,11a,11a').

El extractor estágonformado por una coraza cilíndrica con soportes (2 y 3) subdividida en partes (4a,4b,4c,4d,4a,4b,4c,4d,etc) formadas por platos o tamizadores para proveer arternativamente zonas de mezclado y asentamiento. Un eje común (12) lleva agitadores (13a,13b,13a,13b) tales como propulsores o paletas, que giran gracias a la polea (14) para ofrecer la agitación en laszonas de mezclado.

El flujo por el equipo depende del grado de inclinación del mismo y de la diferencia de densidades de las fases. Las válvulas (15) y (16) controlan la alimentación y la salida de los líquidos en la última zona de asentamiento (7); las válvulas (17 y 18) de igual manera controlan los líquidos en la zona de asentamiento -(8).

La fase líquida ligera (A) entra por (15) y la fase líquida - pesada (B) por (18).

El uso de un equipo de extracción en particular, se determina dependiendo de las condiciones, objetivos o tipo de sustancias quese involucran en el proceso; por ejemplo las propiedades de las fases líquidas, la cantidad de soluto transferido de la interfase, la facilidad de aislmiento o separación de las fases después de haber estado en contacto, el costo en construcción y mantenimiento, el espacio disponible para los equipos, la continuidad del proceso, el control del parámetro: y muestras más cercanos en el equipo.etc.

4d ,4d ,4a th 9 I Tilla Ila', 9' 4c ΉЬ 5Ь 'iOb' ¹5'Ь IOh

Figura 4.8 .- Mezclador-sedimentador Van Dijck.

A continuación se describirá el proceso más utilizado para la separación de uranio y plutonio del combustible irradiado por el --método de extracción:

Proceso Purex.

El proceso Purex, que utiliza fosfato de tributilo (TBP) como disolvente orgánico, es un ejemplo típico de los procedimientos de extracción líquido-líquido utilizados en el tratamiento de com bustibles irradiados. En forma de nitratos, el uranio (VI) y el plutonio (1V) son extraídos fácilmente de la disolución acuosapor el TBP, mientras que los productos de fisión pasan a la faseorgánica en mucho menor grado. Como el TBP es relativamente estable en presencia de concentraciones bastante altas de ácido nítri co, se utiliza este reactivo como agente salino. En el proceso -Redox más antiguo, pero algo semejante, el disolvente orgánico --- metil-isobutil-cetona (Hexona) - resulta atacado por el ácido nítrico, utilizándose entonces como agente salino nitrato de aluminio. El ácido nítrico es muy preferible, sin embargo, porque re duce la masa de sólidos de desecho y porque el reactivo se recupe ra fácilmente por destilación. Por otra parte, el TBP es un disol vente más seguro, debido a su pequeña volatilidad y alto punto de inflamación.

En el primer ciclo del proceso Purex, cuyo diagrama de flujo está representado esquemáticamente en la figura 4.9, la alimentación consiste en una disolución acuosa conteniendo nitratos de uranio-(Vl), plutonio (lV), productos de fisión (PP) y ácido ní-trico en exceso. Suele añadirse nitrato sódico, para estar segu-ros de que todo el plutonio se encuentra en estado (lV), ya que es en esta forma como mejor se extrae el plutonio por el TBP.

Ϋ́1



Figura 4.9.- Diagrama de flujo del proceso Purex.

La disolución de alimentación entra por el centro de la primera columna (extracción), mientras que el disolvente orgánico (TBP diluido en keroseno), menos denso, entra por el fondo de la colum na y circula hacia arriba. Se realiza la extracción de los nitratos de uranio (Vl) y de plutonio (1V), que pasan de la fase acuosa a la fase orgánica. En la parte superior de la columna entra ácido nítrico que actúa como agente salino lavando la solución. Con esta operación, la mayor parte de los productos de fisión que hayan podido pasar al disolvente orgánico son reextraídos a la fase acuosa, mientras que el agente salino impide la reextracción del uranio y del plutonio. El efluente de la columna de extracción (refinado) contiene prácticamente todos los productos de fisión, sin apenas uranio y plutonio.

La fase orgánica conteniendo el uranio y el plutonio pasa luego a la segunda columna (distribución), donde circula en dirección ascendente, para encontrarse con la disolución separadora descendente, que es una disolución acuosa conteniendo un reductor apropiado - sulfamato ferroso, por ejemplo - y algo de agente salino. (EL 10n ferroso es el agente reductor y el sulfamato elimina el nitrito que, de otro modo, impediría que tuviese lugar la reduc-ción).

El plutonio es reducido al estado (111), que permite la reex -tracción a la fase acuosa. En su descenso por la columna, va sien do lavada por la corriente ascendente de TBP fresco que entra por el fondo. De este modo, cualquier cantidad de uranio (V1) que haya pasado a la disolución acuosa es obligada a retornar a la f<u>a</u> se orgánica.

El medio acueso, conteniendo nitrato de plutonio (111), sale por el fondo de la columna de distribución. La solución orgánica de nitrato de uranio (V1),del que se han separado casi completamen te el plutonio y los productos de fisión, se transfiere ahora al fondo de la tercera columna (separación), donde se encuentra con una corriente descendente de ácido nítrico diluido,que actúa como separadora. En ausencia de un agente salino, se produce la reextracción del uranio a lafase acuesa, que sale de la columna por su parte inferior. El disolvente orgánico residual sale por la-parte superior, para ser enviado a una planta de recuperación,don de se purifica y se pone en condiciones de uso como agente de extracción.

Ambas disoluciones acuosas, la de nitrato de uranio (V1) y la de nitrato de plutonio (111), se someten a un segundo ciclo de purificación más avanzado. El ciclo de purificación del uranio es prácticamente idéntico a las dos últimas etapas del primer ciclo. representado en la figura 4.9. La disolución acuosa de uranio se extrae primeramente a fase TBP, lavando a la vez con una disolución reductora; la fase orgánica se trata luego, en una segunda columna. con une disolución separadora de ácido nítrico diluido. En cuanto a la disolución acuosa de plutonio (111), se comienza por conver tir el plutonio al estado (1V) mediante nitrato sódico y ácido nítrico, se extrae con TBP y se lava con ácido nítrico, todo ello en la misma columna. La disolución orgánica pasa luego a la colum na separadora, donde se produce la reextracción del plutonio a fa se acuosa por ácido nítrico diluido. En caso de que se desee obtener el plutonio en estado (111), se utiliza una disolución acuosa de sulfato de hidroxilamina como agente reductor y de separación.

En lugar del segundo ciclo de extracción con TBP para la purifica ción del uranio, también se utilizan otros dos procedimientos: uno de ellos es el de cambio iónico, y el otro utiliza como disol vente una amina terciaria de cadena larga, concretamente, trilaurilamina.

En este último método, todavía no desarrollado por completo, el plutonio procedente del primer ciclo de extracción con TBP se convierte al estado (IV) por tratamiento con nitrato sódico, ex trayéndose luego con la amina terciaria diluida en dietilbenceno. La fase orgánica se lava con ácido nítrico diluido, y se separa con ácido acético que contiene una ligera concentración de ácidonítrico.

CAPITULO V

TRANSPORTE Y ELIMINACION DE LOS DESECHOS NUCLEARES.

A.- Almacenamiento y transporte del combustible gastado.

El almacenaje y traslado del combustible irradiado desempeña unafunción importante en el ciclo del combustible nuclear.

Como se ha visto en el capítulo 111, el combustible retirado de un reactor nuclear continúa emitiendo calor aun después de que -cesa la reacción de fisión, debido al estado calorígeno de los -productos de fisión en decaimiento radiactivo.

En la figura 5.1 se muestra la intensidad de liberación térmica como función del tiempo, para combustible gastado de diversos tipos de reactores. Cuanto mayor es la capacidad de un reactor -----(por ejemplo, un reactor rápido), tanto mayor será el calor liberado y mayor el tiempo que se requiere para que la decaída o de clinación llegue a un valor bajo.



Figura 5.1.- Intensidad de liberación térmica del combustible gas tado como función del tiempo.

La figura 5.1 indica que la liberación de calor de los productosde fisión es más intensa inmediatamente después de la descarga.

å

Lo anterior se debe a que es práctica común almacenar el combust<u>i</u> ble en un estanque de enfriamiento por un periodo que permita que la radiactividad y radiación de calor declinen antes de retirar el combustible del entorno inmediato del reactor.

Los estanques de agua son muy apropiados para el combustible que proviene de reactores descalorizados con agua, pero presentan una dificultad para el almacenamiento de combustible cuyo revestimien to ha sido calculado para funcionamiento satisfactorio en un en torno de gas. Por ejemplo, la inmersión del combustible Magnox du rante periodos largos en estanque, permite que ocurra una reacción química lenta entre la cubierta de aleación en magnesio y agua, lo cual conduce a la generación de hidrógeno y la formación de un sedimento potencialmente nocivo de hidróxido de magnesio radiactivo.. Si la cubierta está severamente corroída los productos de fisiónpueden escapar del combustible al estanque, ocasionando dificul tades de control en el medio ambiente. Sin embargo, con un buen manejo de los estanques (incluyendo el encapsulado especial del combustible que se sabe será dañado), estos efectos pueden minimizarse.

Como con todos los otros aspectos de la energía nuclear, debe darse consideración a la seguridad de la operación de estanques de al macenamiento de combustible gastado. Esto puede ilustrarse considerando ensambles de combustible para reactores de agua presurizada (PWR), que son descargados del reactor y pueden almacenarse en estanques de agua por muchos años. Los niveles del calor de declinación de los ensambles de combustible de un PWR, son tales que si el agua quedara completamente eliminada del estanque, se fundiría el combustible que ha estado fuera del reactor por menos de -150 días.

La pérdida de agua en un estanque podría ocurrir si tal depósito tuviera una fuga o si el sistema de enfriamiento del estanque quedara inactivo, lo cual conduciría a la evaporación del agua. Ambos sucesos son extremadamente improbables, sin embargo la estrategia de defensa en profundidad continúa en la etapa de almacenamiento colocando el depósito dentro del alojamiento o contenedor del reac tor (como se hizo en los diseños alemanes de PWR) o proporcionán dole su propio alojamiento, incluyendo sistemas de ventilación y filtración (el método usual en E.U.A.).

El agua del estanque es descalorizada haciéndola pasar por cambiadores de calor, y la avería de este sistema enfriador es quizá el mecanismo de falla más probable para los estanques. Sin embargo, es poco probable que los operadores no observen un descenso gradual en el nivel del agua de los estanques en un lapso de aproximadamen te dos semanas, que se requeriría para dejar al descubierto el com bustible por evaporación debida a la entrada de calor desde el pro pio combustible. Por consiguiente, los accidentes por pérdida de-enfriante en los estanques de combustible se consideran causantes menores de los riesgos totales del uso de la energía nuclear. Otro aspecto que se debe tomar en consideración en el diseño de estanques de almacenamiento es la criticidad, que es la posibili-dad de que (en condición crítica) el propio estangue actúe comoun reactor nuclear. En el caso del combustible de uranio natural no existe problema de punto crítico en el almacenado de combustible bajo agua, puesto que el sistema de agua ligera y uranio natu ral no podrá llegar al estado crítico. En el caso de combustible -gastado de reactores PWR, BWR y enfriados por gas, es hipotéticamente posible que ocurra una reacción nuclear con el combustible colocado en un estanque de agua. Por tanto, los estanques deben diseñar se con suficiente distancia entre los elementos combustibles para--garantizar que no ocurra ninguna reacción.

La distancia entre los elementos de combustible en el depósito, pue de reducirse si el material absorbente de neutrones se intercala -entre los conductos de subensambles, lo cual permite una mucho másalta densidad de empaquetado en un estanque.

Una vez que el combustible ha cumplido el tiempo de enfriamiento--que se le ha asignado se transporta a la planta de reprocesamientoo a un sitio de almacenaje alternativo a largo plazo.

El combustible se traslada colocando uno o más ensambles en un rec<u>i</u> piente de transporte, en el cual un gran número de ensambles se ---transportan en un vasija llena de agua. Un recipiente de transporte típico (o barrica) para combustible de reactor de agua se ilustra en la figura 5.2.

> . 11



Figura 5.2.- Recipiente de almacenamiento de combustible gastadopara reactores de agua.

El combustible está contenido en un tonel o caja llena de agua, circundada por la envoltura del recipiente; el combustible se coloca en una canastilla de acero dentro del recipiente, que luegoqueda sellado con una cubierta o tapa. La pared del recipiente --tiene una serie de capas, como se observa en la figura, y con una envolvente de acero exterior de 30 a 36 cm de espesor y capas interiores de uranio agotado y/o plomo para absorber la radiación gamma, y de agua que actuará como un escudo contra los neutrones. Un recipiente para el transporte por carretera puede pesar aproxi madamente 20 toneladas, en tanto que un recipiente para transporte ferroviario podría ser mucho más grande, y pesar hasta 100 toneladas.

Durante el transporte debe disiparse el calor emitido por la super ficie exterior de la caja o barrica. La intensidad usual de disipa ción de calor es de unos 10 kW en el caso de una barrica para ---transporte por carretera, y de 50 a 100 kW para una caja grande de transporte por ferrocarril. Hay dos etapas principales en este --proceso de transferencia de calor; primero, el calor se transfiere del combustible a un líquido dentro de la caja (generalmente agua) que circula por convección natural alrededor del combustible. El --calor pasa luego a la pared de la caja y de ahí a la atmósfera.Las cajas o recipientes por lo común tienen aletas de acero en su exterior para ayudar a la disipación de calor hacia el aire.

Entre los accidentes que se pueden presentar durante el trasladode las cajas, se encuentra por ejemplo la caída de estas en el --traslado del estanque al vehículo o de este a su lugar de origen. Para soportar un impacto de este tipo, es necesario que el recipiente esté diseñado para sobrevivir a una caída desde una altura de 9 m hasta una superficie inflexible (por ejemplo, una de concreto), sin ningún deterioro a su integridad, y también resistir una caída desde 2.60 m sobre un clavo o punta de 15 cm. Otro delos accidentes que se pueden presentar, es que la caja pueda quedar envuelta en un incendio, para resistir esto los prototipos de un diseño dado de recipiente se someten a pruebas en las cuales se colocan dentro de un fuego a 1000°C durante un tiempo de 30 min. La supervivencia a estas rigurosas pruebas, es una condición necesaria para la autorización del uso de los recipientes de trans-porte del combustible nuclear.

B.- Clasificación de los productos de desecho.

Esencialmente, los productos de desecho de una planta nuclear pue den clasificarse de la manera siguiente:

1.- Materiales contenidos en elementos de combustible: estos elementos consisten en el reactivo gastado contenido en una estructura metálica que comprende las cubiertas del combustible y las rejillas de soporte. El propio reactivo nuclear que contiene productos de fisión altamente radiactivos, la parte restante del material fisionable y fértil original y el material producido en la reacción.

2.- Desechos de reactores nucleares: además del combustible gas-tado o desactivado, otros productos reactivos provienen de los -propios reactores y comprenden los desechos gaseosos (como xenón y criptón) que pueden escapar de combustible defectuoso dentrodel reactor, los deschos' líquidos como óxido de tritio (la espe cie del agua producida a partir del isótopo tritio del hidrógeno) ylos desechos sólidos como las resinas provenientes de las plan-tas de tratamiento de agua, que sirven para depurar cantidades pe queñas de productos de fisión y corrosión que entran al sistema primario y a los filtros del sistema depurador del reactor. Finalmente, cuando el reactor llega al término de su vida útil se debe inhabilitar o poner fuera de servicio; los materiales estructurales habrán quedado ligeramente radiactivos y es necesario un programa de trabajo cuidadoso para manejar estos materiales. 3.- Desechos de la planta de reprocesamiento: como se ha visto an teriormente, una planta reprocesadora produce flujos o corrientes compuestas por productos reciclados (uranio y plutonio) además de los flujos de productos de fisión. Sin embargo, existe un cier to número de otros desechos que se originan en una planta de re-procesamiento, como los de sustancias orgánicas y acuosas que con tengan niveles medios de actividad.

Otros productos a eliminar son los residuos <u>o</u>restos de revesti---miento y el material de soporte de los elementos de combustible -y los desechos con bajos niveles de contaminación activa, inclu--yendo guantes de goma, tejidos y envases de plástico. 4.- Desechos de la planta de producción de combustible nuclear: la producción de combustible nuclear hecho de uranio natural y enriquecido no presenta problemas particulares de radiación nociva. Sin embargo, la producción de plutonio origina desechos de bajonivel de la misma naturaleza (guantes, tejidos, etc)que la que se, nera en la planta de reprocesamiento, junto con residuos o restos portadores de plutonio que aparecen en los procesos de producción del reactivo nuclear.

C.- Opciones para la eliminación de desechos nucleares.

La fuente más importante de productos de desecho es el propio com bustible. En la figura 5.3 se muestra el diagrama del ciclo del combustible nuclear para un reactor termal típico con la inclusión de dos vias alternas para tratarlo.

En la vía A el combustible pasa por la planta de reprocesamiento, la cual permite reciclar el plutonio y el uranio, y produce un -flujo de desechos líquidos altamente activos. Tal corriente se <u>pa</u> sa a una etapa provisional de almacenamiento líquido, seguida por la solidificación en una forma u otra, antes de conducirla a un al macén de superficie tecnificado, donde se mantiene aproximadamente 50 años. Almacenamiento en formaciones geológicas.

El almacenamiento de esta índole implica la colocación de los cilin dros que contienen elementos de combustible gastado en un estrato--estable, por lo común a un Km bajo la superficie. Puede suponerse-que tales capas rocosas contienen agua, puesto que su profundidad-es bastante mayor a la de un manto acuífero. Sin embargo, no es de esperar que el agua desempeñe un papel importante en la trasferencia de calor desde los bloques, y el almacenamiento estaría diseñado para mantener la temperatura superficial de los cilindros a no más de 100 °C. No obstante, la presencia del agua freática significa que el material que se evada de los bloques de almacenamiento puede ser transportado por el agua a través del estrato, y ésta es unaconsideración importante en el diseño de tales sistemas. La circulación de agua a través de la roca como resultado de diferencias -de densidad inducida por gradientes de temperatura sobre largos periodos (efecto de flotación térmica o circulación térmica) es importante al determinar la migración de los productos de fisión. Este es un proceso muy lento y no se espera que represente un peligro grave, pero debe ser tenido en cuenta cuidadosamente en el caso delos sistemas de eliminación a largo plazo. Tales sistemas se descri ben en la siguiente sección; al considerar la eliminación de pro ductos de fisión desde plantas de reprocesamiento.

E.- <u>Almacenaje y eliminación de productos de fisión provenientes de</u> plantas de reprocesamiento.

El principal problema de la eliminación de residuos nucleares lo --constituyen los residuos líquidos. Desde el punto de vista del procedimiento de eliminación, los residuos líquidos pueden clasifi--carse en dos categorias: a) residuos de alto nivel con actividades del orden de curies por litro - o por galón - y b) residuos de bajo nivel cuyas actividades quedan en el rango de microcuries por --litro.

Como se indicó en la sección C, en la planta de reprocesamiento seproducen desechos líquidos de alto nivel que se considera preferi--ble convertirlos en forma sólida.

Los trabajos sobre la solidificación de los desechos nucleares se iniciaron en los años 50, y a mediados de los años 60 la incor-poración de desechos de vidrio (vitrificación) se estableció a escala de laboratorio. El método se ha utilizado a escala indus-trial en Francia con el nombre de proceso AVM (ilustrado en la figura 5.8) siendo adoptado en otros países.



Figura 5.8.- Proceso francés AVM para vitrificación de desechos nucleares.

Entre los procesos optativos que se investigan está el de vitrifi cación por microondas, que se ilustra en la figura 5.9.



Figura 5.9.- Proceso experimental de vitrificación por microondas.

Se ha desarrollado una variedad de composiciones de vidrio que ha ce posible incorporar los componentes de los desechos, demostrándose que los vidrios sobreviven a los efectos del calor y de la radiación producidos por los desechos, sin deterioro notable. Sedisuelven muy lentamente en el transcurso de muchos miles de años en agua de flujo libre. La disolución en la clase de repositorios o depósitos que se usan, donde el acceso del agua está restringido, sería mucho más lenta. Otras técnicas de solidificación incluyen la incorporación de diversas clases de materiales cerámicos y especies de rocas sintét<u>i</u> cas cristalinas.

Los desechos vitrificados se encierran por lo regular en cilíndros de acero inoxidable, los cuales son enfriados; se protege además a los operadores contra la radiación de alto nivel. Posteriormente. los cilindros se almacenan en depósitos enfriados por convección natural, durante unos 50 años. Un bloque de vidrio típico tiene --30 cm de diámetro y 1 m de largo, con un peso aproximado de 200 kg. Casi 20% de tal bloque corresponde a productos de fisión procedentes de plantas reprocesadoras, y el resto a materiales agregados como ayuda para formar el vidrio. Como en el caso del combustible gastado, la liberación de calor es dominada por el decaimiento de cesio y estroncio, con una vida media de 30 años, se considera generalmente que las temperaturas superficiales para el bloque, no deben ser mayores que aproximadamente 100°C, y con esta temperatura en la superficie es factible lograr una intensidad de libera --ción de calor de casí un kw, por conducción hacia las rocas cir-cundantes. A fin de evitar interacciones entre bloques, se requie re de un espaciamiento de 10 m en todas las direcciones. Esto pue de lograrse horadando verticalmente en el terreno hasta l km ---y construyendo luego una galería horizontal en la cual se forma rían pozos (por ejemplo, 200 m de profundidad). Los bloques seintroducirían en tales pozos y el espaciamiento requerio de 10 m se obtendría por rellenado antes de hacer descender el siguiente bloque. Los pozos estarían espaciados también en una disposición de forma cuadrada con 10 m de lado.

Finalmente, este material se envía a su lugar de estancia finalcomo se describiógen la sección anterior.

F.- Eliminación de otros materiales.

Como se describió en la sección B, una gran variedad de desechoscon bajo nivel de radiactividad también surgenen un programa de uso de la energía nuclear. Los desechos consisten en desperdicios diversos (como guantes de goma, telas o tejidos, filtros, mate-riales de absorción, resinas de cambio iónico contaminadas con res tos de material radiactivo) que se entierran por lo común en una zanja poco profunda cubierta con por lo menos 1 m de tierra. Las mediciones en tales áreas han indicado que es despreciable la actividad radiactiva en esta disposición. En ocagiones, se someten estos residuos a una etapa previa de incineración, en cuyo caso hay que filtrar cuidadosamente los gases desprendidos.

Los desechos con un nivel de radiactividad un poco más alto, confrecuencia se entierran en un lecho marino profundo. En el progra ma británico, los desechos se depositan a una distancia de 800 km de la costa de Gran Bretaña, en una zona marcada por un acuerdo internacional. La mayor parte de estos desechos consisten en desper dicios provenientes de hospitales, laboratorios de investigación e industrias. Los desechos se alojan en concreto encerrado en tambores de acero. El objeto de este empaquetado es proteger a los -trabajadores que manejan dichos cilindros y asegurar que los desechos lleguen intactos al fondo del mar. Aunque es probable que tales alojamientos conserven por muchos años su integridad en el fon do del mar, la seguridad de tales métodos de eliminación depende de la vasta dilución de la radiactividad a medida que se digrersa en el fondo oceánico.

Ciertamente, los grados de radiactividad son muy pequeños en comparación con la radiactividad natural existente en los mares. Serían necesarios muy grandes incrementos en las cantidades de material eliminado en esta forma, para que ocurrieran consecuencias radioló-gicas significativas.

Los desechos gaseosos radiactivos más importantes son: el yodo, y-los gases nobles xenon y kripton. Los tres quedan en libertad al -disolverse el elemento combustible. Si el combustible se encuentra en forma metálica, habrá presentes también óxidos de nitrógeno, como consecuencia del ataque con ácido nítrico. En el proceso más común, los gases procedentes del recipiente en disolución se hacen -pasar por una torre de condensación, donde los óxidos nitrogenados se combinan con agua para formar ácido nítrico. Los gases residua-les, una vez calientes, entran en un reactor de plata, consistente en un lecho con relleno recubierto de nitrato de plata, donde sefija el yodo en forma de yoduro de plata. Finalmente, los gases, cong tituidos casi exclusivamente por kripton y xenon se filtran por ---Fiberglas u otro material, descargándose a la atmósfera a través -de chimeneas altas.

En algunas plantas de reprocesado, la cantidad de yodo que quedaen el combustible irradiado, después del periodo de enfriamiento, es tan pequeña, que puede prescindirse de la operación en el reac tor de plata.

Cuando la descarga a la atmósfera de kripton v xenon radiactivos resulta inconveniente, por razones meteorológicas, u otras, estos gases pueden ser obsorbidos sobre carbono o gel de sílice a temperatura baja. Al sólido radiactivo resultante puede buscársele luego un emplazamiento adecuado.

También se debe incluír entre los gases residuales peligrosos, al aire procedente de las plantas de tratamiento, que transporta pequeñas partícu'as radiactivas, líquidas y sólidas. como estas pueden constituir un peligro grave, hay que descargar el aire a través de filtros de arena o Fiberglas. Estos filtros tienen una vida limi tada y deben reemplazarse periódicamente, representando un problema de eliminación de residuos sólidos, al que ya se hizo referencia-anteriormente.

Un punto final acerca de los métodos de eliminación concierne a la inhabilitación de una planta nuclear desactivada, la cual se efectúa en etapas. En la primera (que algunas veces se llama " de abandono ") se dejan vacías las instalaciones, virtualmente intactas, y no conduce a la producción de cantidades significativas de desechos. Sin embargo, son necesarios mantenimiento y vigilancia continuos. Durante tal etapa todos los materiales físiles se retiran de la planta. En la segunda etapa se elimina todo lo que ha quedado inactivo y se demuelen las partes de la planta exterioresal circuito primario. Las partes que se dejan son las relacionadas con el circuito y los blindajes protectores, y se abandonarán porlargos periodos para permitir que decaigan las trazas que quedende material radiactivo (comminmente, por 50 o 100 años). Después de este lapso, se prevé que puedan efectuarse el desmantelamiento final de la estructura restante y la eliminación de los desechos o residuos por el uso de los métodos ya descritos.

֓

G.- Ejemplos.

En esta sección se presentarán algunos casos prácticos de problemas o situaciones que pueden ocurrir en la realidad en las etapas de eliminación de los desechos nucleares. En estos casos, se apl<u>i</u> can los principios y conceptos básicos de la transferencia de calor.

Pérdida del agua en el estanque de enfriamiento.

Los elementos de combustible que provienen del reabastecimiento de un reactor de agua ligera (LWR) se empaquetan en un estanque de enfriamiento después de ser retirados del reactor. Se colocanen el estanque 25 toneladas de combustible, el estanque tiene 10 m de ancho, 20 m de largo y una profundidad de agua de 10 m. Después de un mes de almacenamiento ocurre una falla en el suministro de agua normal del estanque. ¿ En cuánto tiempo ocurriría un descenso de 0.5 m en el nivel del agua debido a la evaporación ? Supóngase que la temperatura del agua en el momento de falla del suministro es de 25°C, que el volumen del elemento de combustible es despreciable en comparación con el volumen de agua del estanque. Supóngase también que el agua tiene un calor específico de 4.18 kJ/kg°K, mana densidad de 1000 kg/m³ y una entalpía de evaporación de 2.25 MJ/kg. Supóngase que no existan pérdidas de calor desde el estanque.

Solución: El tiempo total requerido para que el nivel del agua descienda 0.5 m debido a la evaporación ocasionada por el calor cedido por el combustible, es la suma del tiempo necesario para que el agua alcance su punto de ebullición a partir de su temperatura ini cial (25° C) (t_{b}), y el tiempo necesario para que la profundidad del agua se reduzca 0.5 m debido a la evaporación (t_{e}).

cantidad de calor requerida para llevar el agua a su punto de $t_b = \frac{ebullición (Q_b)}{liberación de calor del combustible por unidad de tiempo (Q_c)}$ $Q_b = (vol.del recipiente) (densidad) (calor específico) (dif.temp)$ $Q_b = (10x20x10) (1000) (4.18) (373-298) = 6.27x10^g kJ$ La liberación de calor por tonelada de combustible por unidad detiempo después de un mes, se obtiene de la figura 5.1 y es iguala 75 kW y para 25 toneladas es:

$$\Omega_{c} = (25)(75) = 1875 \text{ kW}$$

y por consiguiente:

 $t_{b} = \frac{Q_{b}}{Q_{c}} = \frac{6.27 \times 10^{8}}{1375} = 334400 \text{ s} = 93 \text{ h}$

 $t_e = \frac{(\text{Volumen de agua evaporada}) (\text{densidad}) (\text{entalpía de evapor})}{\text{liberación de calor del combustible nor unidad de tiempo (9c)}}$ $t_e = \frac{(10x20x0.5) (1000) (2250)}{1875} = 120000 \text{ s} = 33 \text{ h}}$ Por lo tanto el tiempo total requerido será: 93+33 = 126 h = 5.25 d.

Pérdidas de calor desde un recipiente de combustible.

Se ha de diseñar un recipiente cilíndrico de combustible para trans portar ensambles de combustible completos, desde un reactor termal hasta una planta de reprocesamiento después de su retiro del estanque enfriador. Cada ensamble contiene 300 kg de combustible gastado, el cual en el momento de su remoción desde el estanque libera-3 W/kg de calor. El recipiente de combustible tiene 0.6 m de diámetro exterior y 3 m de largo. ¿ Si se ha de mantener la temperatura exterior del recipiente a menos de 10°C por encima de la ambiental, la transferencia de calor a la atmósfera será suficiente sin aletado exterior en el recipiente ? Si el enfriamiento es insuficiente calcule el número de aletas verticales de 3 m de longitud y 10 cm deancho que tendrían que fijarse a la superficie para mantener el enfriamiento deseado. Supóngase un coeficiente de transferencia de calor de 10 W/m^aK entre la superficie del recipiente (y la superficie de la aleta) y la atmósfera.

Solución: La diferencia de temperatura entre la superficie del recipiente y la atmósfera (T_c-T_a) está dada por:

$$\dot{q} = \frac{\text{generación total de calor del recipiente (γ_{c})}{\text{area del recipiente}}$$

$$\dot{q} = \frac{(300)(3)}{(\pi \times 0.6 \times 3) + (\pi \times 0.3 \times 3)} = 152 \ \text{W/m}^{-1}$$

por lo que:

$$(T_c - T_u) = \frac{152}{10} = 15.2^{\circ}C > 10^{\circ}C$$

Por lo tanto la diferencia de temperatura es mayor que la aceptada. Para el caso de una diferencia de temperatura de 10°C, la superfi-cie del recipiente puede perder:

$$Q_c = hA (T_c - T_a)$$

 $Q_c = (10) (\pi x \ 0.6x3) (\pi x \ 0.3^{2}) (10) = 593 W$

El área de superficie adicional requerida (A'), es por tanto:

$$A' = \frac{(900-593)}{(10)(10)} = 3.07 \text{ m}^3$$

Como el área para la transferencia de calor de las aletas verticales es:

A aleta =
$$3x0.1x2 = 0.6 \text{ m}^{3}$$

Por lo que se necesitarán 3.07/0.6 = 5 aletas verticales colocadas alrededor de la circunferencia del recipiente para mantener la temperatura de la superficie exterior a menos de 10° C por encima delambiente.

Disipación del calor proveniente de bloques de desechos enterrados.

Los desechos activos de una planta de reprocesamiento están vitri-ficados en ciliñdros con diámetro " D " de 0.3 m, los cuales se entierran en un pozo (colocados extremo con extremo) a una profund<u>i</u> dad " x " de 7 m. Los cilindros emiten l kW/m de calor de decaimiento de los productos de fisión. Calcular la temperatura superficial " T_1 " de los cilindros, suponiendo que la temperatura de la superficie del suelo " T_2 " es de 20°C, y el terreno tiene una conductividad térmica de l W/m°K.

Solución: La intensidad de transmisión de calor desde un cilindro enterrado es de considerable interés con respecto a tubos colocados bajo el terreno y está dada por una ecuación desarrollada en 1977 por Cooper y Rose:

$$Q = \frac{2\pi k (T_1 - T_2)}{\ln\{2x/D + C(2x/D)^2 - 1]^2}$$

donde Q es la transmisión de calor por unidad de ongitud (l kW/m en este ejemplo). Sustituyendo k = l W/m°C, x = 7 m, D = 0.3 m y T_a = 20°C. Se tiene que:

$$Q = 1000 = \frac{2\pi(1)}{\ln[(2x7)/0.3 + [(2x7/0.3)^2 - 1])^2}$$

y por consiguiente:

•1

$$T_1 = 742^{\circ}C$$

CONCLUSIONES

Se presentaron de manera descriptiva los pasos de la trayectoria del material combustible nuclear, encontrándose que en el ciclodel combustible nuclear tienen aplicación algunas de las opera-ciones básicas de la Ingeniería Química.

Después de obtener los minerales que contienen el material combustible nuclear de la naturaleza, éstos reciben primeramente un tratamiento de concentración utilizando procedimientos metalúr<u>gi</u> cos; posteriormente, en la preparación del material combustiblepara su ingreso al reactor, se emplean como métodos de purificación la extracción por disolventes, la volatilización y los méto dos de separación isotópica. A la salida del reactor, el combustible nuclear se somete a procedimientos de separación de los d<u>e</u> más productos de fisión, como los de disolución acuosa, volatil<u>i</u> zación y pirometalúrgicos para su posterior reutilización.

En la etapa de preparación del combustible nuclear para su ingre so al reactor, el procedimiento de purificación a que se debe so meter el material combustible proveniente de la etapa de concen tración del mineral, está determinado por el tipo de forma quími ca que se requiere para que se encuentre el material combustible. Esto proporcionará el compuesto químico adecuado, ya sea para in gresar al reactor directamente, o para exponerse a la etapa previa de enriquecimiento.

Si el uranio del combustible se requiere que se encuentre en laforma de nitrato de uranilo, se utiliza la extracción por disolventes; si se quiere que se encuentre como hexafluoruro de uranio (producto que sirve de alimentación a la etapa de enriquecimie<u>n</u> to o como base para formar dióxido de uranio), se utiliza la volatilización.

Cuando se requiere un combustible enriquecido, la alimentación-del reactor con uranio en forma de hexafluoruro, se somete previamente a la etapa de separación isotópica. El procedimiento -más utilizado a nivel industrial es el de la difusión gaseosa,--

debido a su alto valor de factor de separación con respecto a --los otros procedimientos, a excepción del procedimiento de cen--trifugación, que posee un valor de factor de separación mayor; sin embargo, este procedimiento puesto a gran escala conlleva --desventajas en cuanto a problemas tecnológicos, escasa capacidad de producción y un consumo energético elevado, con respecto a la difusión gaseosa.

Si el objetivo de la separación isotópica es el de obtener isóto pos puros en cantidades pequeñas para fines analíticos o análisis con trazadores, se puede utilizar entonces el proceso de centrifugación o métodos electromagnéticos.

En la parte en la que se ofrece el diseño de una etapa de difu--sión gaseosa, se establecieron las ecuaciones que permiten calcu lar la capacidad de separación de la etapa, que es un parámetroproporcional al tamaño de la cascada de etapas y a la potencia requerida para obtener la separación. Gracias a la evaluación de la eficacia de la etapa de separación, se puede realizar un análisis económico del capital y requerimientos de la operación; ex poniéndose un ejemplo para optimizar el diseño de la etapa, en--contrándose que la optimización del diseño depende de las consideraciones particulares de cada sistema y de las características que se quiera o no minimizar en mayor o menor grado en el proceso. Cuando el combustible nuclear es retirado del reactor, los principales métodos de separación de los productos del reactor parasu utilización posterior se agrupan en tres categorías principa les: procesos en disolución acuosa, volatilización y pirometalúr gicos. Los procesos en disolución acuosa se dividen en procesospor extracción líquido-líquido y procesos por intercambio iónico. El intercambio iónico solo es aplicable, muy particularmente. a disoluciones muy diluidas debido a la inestabilidad de la resi na intercambiadora de iones ante la presencia de radiación alta; por lo que este método se utiliza en las últimas etapas de purificación o de concentración de disoluciones principalmente de -plutonio. El método de extracción líquido-líquido es el más desa rrollado y utilizado a gran escala, empleándose para separar el

uranio y el plutonio con altos factores de descontaminación por lo que el producto puede someterse a operaciones por manejo di--recto.

El método de volatilización logra conseguir factores de desconta minación similares a los obtenidos en la extracción líquido-lí-quido y aventaja a la extracción en su menor número de operaciones y en una reducción considerable del volumen de residuos alta mente radiactivos; sin embargo, este método tiene la desventajacon respecto a la extracción líquido-líquido, de que solo se uti liza para separar el uranio de los otros productos de fisión encombustibles muy enriquecidos, en los cuales es despreciable laformación de plutonio. Esto se debe a que el hexafluoruro de -plutonio es un material muy reactivo, resultando un material demuy difícil manejo cuyos problemas no se han resuelto todavía. En los métodos pirometalúrgicos los factores de descontaminación conseguidos son muy inferiores a los de los métodos anteriores.de manera que las operaciones a las que se debe de someter el ma terial recuperado deben realizarse a distancia. Este método puede separar tanto el uranio como el plutonio de los demás productos de fisión. Las ventajas que se obtienen en este procedimiento son las siguientes: el combustible al retirarse del reactor se so mete directamente al procedimiento, quedando eliminados los tratamientos químicos y el intervalo de enfriamiento previo, estoconlleva una reducción en los volumenes de residuos. Otra ventaja es que la pirometalurgia evita el paso por un compuesto inter medio que sería preciso transformar de nuevo en el metal inicial y da un uranio purificado que puede utilizarse directamente, noobstante, tras varios ciclos, deben eliminarse algunos elementos que tienden a acumularse en el combustible, por un procedimiento distinto a la pirometalurgia. La pirometalurgia se presta también al procedimiento en ciclo cerrado en conexión estrecha con el fun cionamiento del reactor, esto es consecuencia del corto intervalo de enfriamiento y del valor relativamente pequeño del factor dedescontaminación que otorgan al combustible una radiactividad --

Finalmente, se concluve con la eliminación de los desechos del-combustible nuclear, siendo eliminados estos en formaciones geológicas, lechos marinos o macimientos de sal. Esta eliminaciónpuede ocurrir en dos travectorias desplés de la retirada del com bustible del reactor: en la primera, el combustible después de pasar por la planta de reprocesamiento, produce un flujo de des<u>e</u> chos líquidos altamente activos, que pasan a una etapa de almac<u>e</u> namiento líquido seguida por otra de solidificación antes de con ducirlos a un almacen de superficie tecnificado, donde se manti<u>e</u> nen aproximadamente 50 años antes de su eliminación final. En la segunda, el combustible se almacena a su salida del reactor en un almacen especial tecnificado antes de su eliminación final.

BIBLICGRAFIA

- (1) .- Frank J. Blatt, Fundamentos de Física, Ed. FHH, 3a. Ed., 1991.
- (2).- Marcelo Alonso y Edward J. Finn, Física para Ciencias e Ingeniería Vol. 111, Ed. Fondo Educativo Interamericano, 1976.
- (3).- T. Baumeister, Manual del Ingeniero Mecánico Tags. 9-127 a --9-138, Ed. UcGraw Hill, 2a. Ed.
- (4).- S. Glasstone, Ingeniería de Reactores Mucleares, Ed. Reverté-1982
- (5).- Kirk R. E. y Othmer, Enciclopedia de Tecnología Química Tomo-X1 Pags. 422-452, Ed. Hispanoamericana.
- (6).- Th. Reis, Tecnología de los Reactores Nucleares, Tomo 1, Ed.-Urmo. 1971.
- (7).- T. J. Connolly, Fundamentos de Ingeniería Nuclear, Ed. Limusa 1983.
- (8).- Richard Stephenson, Introduction to Nuclear Engineering, Ed.-McGraw Hill.
- (9).- John G. Collier, Introducción a la Ingeniería Nuclear, Ed. --Harla.
- (10).- G. F. Quinn, Symposium on Isotopic Separation of Uranium bygaseous Diffusion and Role of Gaseous Diffusion in the expan ding Nuclear Power Industry, AlChE Symposium Series, Nuclear Engineering part. XXIII, vol. 68 No. 123, Pags. 81-91 (1972).
- (11).- E. Von Halle, Isotope Separation Processes for Uranium, ----AlChE Symposium Series Engineering part. XXIII, vol. 68 No.--123, Pags. 92-99 (1972).
- (12).- E. A. Ebel y L. P. Pasquier, The Design of a Gaseous Diffu-sion stage, AlChE Symposium Series, Nuclear Engineering t. XXIII, vol. 68 No. 123, Pags. 107-117 (1972).
- (13).- S. Melis,G. Cao y M. Morbidelli, A New Model Forthe Simulation of Ion Exchange Equilibrium, Ind. Eng. Chem, Res., Vol-34 No. 11, Pags. 3916-3924 (1995).
- (14).- A. Baker y S. Salem, Extraction in a Single-Stage Mixer ---Settler, Ind. Eng. Chem. Res., Vol. 30 No. 7, Pags. 1582-1588 (1991).
- (15).- A. Kumar y S. Hartland, A Unified Correlation For the Prediction of Dispersed-Phase Hold-Up in Liquid-Liquid Extraction-Colums, Ind. Eng. Chem. Res., Vol 34 No. 11, Pags. 3925-3940 (1995).
- (16) .- C. Judson King, Procesos de Separación, Ed. McGraw Hill, 1988.
- (17).- F. P. McCandless, Comparison of Countercurrent Recycle Casca des with Continuous Membrane Columns For Gas Separations, --Ind. Eng. Chem. Res., Vol 29 No. 10, Pags. 2167-2170 (1990).

- (18).- A.H.P. SKelland y L. T. Moeti, Mechanish of Continuous-Fhase Mass Transfer in Agitated Liquid-Liquid Systems, Ind. Eng. -Chem. Res., Vol. 29 No. 11, Pags. 2558-2567 (1992).
- (19).- E. J. Zecchini y G. L. Foutch, Mixed-Bed Ion-Exchange Mode-ling with Amine Form Cation Resins, Ind. Eng. Chem. Res., --Vol. 30 No. 3, Page. 1886-1892 (1991).
- (20).- R. W. Cusack, Solve Wastewater Problems with 'iouid-Liquid -Extraction, Them. Eng. Prog., April Tags. 56-63 (1996).
- (21).- S. K. Ihm, J. H. Ahn y Y. D. Jo, Interaction of Reaction --and Mass Transfer in Ion-Exchange Resin, Ind. Eng. Chem.Res.. Vol. 35, Pags. 2946-2954 (1996).
- (22).- A. S. Kovali, S. Vemury y W. Admassu, Modeling of Multicomponent Counter Current Gas Permeators, Ind. Eng. Chem. Res., -Vol. 33 No. 4, Pags. 896-903 (1994).
- (23).- I. Pinnau y W. J. Horos, Relationship between Substructure -Resistance and Has Separation Properties of Membranes, Ind.-Eng. Chem Res., Vol. 30 No 8, Pags. 1837-1840 (1991).
- (24).- S. B. Ashutosh y P. Brattacharyå, Estimation and Influence of Long Range Solute. Membrane interactions in Ultrafiltration, Ind. Eng. Chem. Res., Vol. 35, Pags. 3108-3121 (1996).
- (25).- S. J. Hwang y W. J. Lu, Ion Exchange in a Semifluidized Bed, Ind. Eng. Chem. Res., Vol. 34 No. 4, Pags. 1434-1439 (1995).
- (26).- H. Egawa y T. Nonaka, Recovery of Uranium from Sea Water. --Concentration and Separation of Uranium in Acidic Eluate, --Ind. Eng. Chem. Res., Vol. 29 No. 11, Fags. 2273-2277 (1990).
- (27).- Y. Kobuke, T. Aoki, H.Tanaka y I. Tabushi, Recovery of Uranium by Composite Fiber Adsorbent, Ind. Eng. Chem. Res., Vol. 29 No. 8, Pags. 1662-1668 (1990).
- (28).- ". Takeda, K. Saito, K. Vezu y S. Furusaki, Adsorption and--Elution in Hollw-Fiber-Packed Bed for Recover y of Uranium,-Ind. Eng. Chem. Res., Vol. 30 No. 1, Pags. 185-190 (1991).
- (30).- S. Horn Chen, K. J. Chao y T. Y. Lee, Lanthanum-NaY Zeolite Ion-Exchange Thermodynamics, Thermochemistry and Kinetics, -Ind. Eng. Chem. Res., Vol. 29 No. 10 Pags. 2020-2027 (1990).

••