

ABSORCION DE RADIOIODO EN TAMIZ MOLECULAR/ AgNO_3

Cristina A. Delfino y Marcelo A. Molinari

División Fisicoquímica, Departamento Química, Gerencia Procesos Químicos, Dirección de Investigación y Desarrollo, C.N.E.A.

1. INTRODUCCION

En trabajos anteriores se desarrolló un método de obtención y técnicas de control de materiales para retención de radioiodo en efluentes gaseosos de instalaciones nucleares. Dichos materiales consisten en una base sílica, impregnada con AgNO_3 .

Aún cuando se alcanzaron buenos resultados con los mismos, se decidió preparar absorbentes usando tamiz molecular como base. Si bien este material es importado y de costo mayor que la sílica-gel nacional, su suministro es normal en plaza y sus propiedades de superficie y la forma esférica y uniforme de sus granos le otorgan ventajas para formar un lecho eficiente y reproducible. Esas mismas características posee, por otra parte, un material importado, (HFM), destinado a ese uso específico, que también se estudió con fines comparativos.

2. PARTE EXPERIMENTAL

Materiales: - Tamiz molecular 10X20 (esferas, 1-2 mm) y 13X (cilindros 5 x 1 mm), Zeolita/Ag Hertfurth: HFM (esferas 1-2 mm).

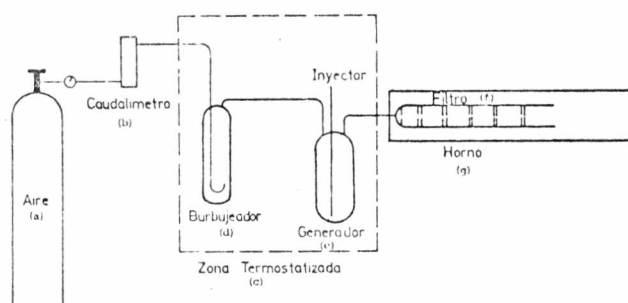
Impregnación: Después de diversos ensayos se adoptó el procedimiento más simple que consiste en:

1) Poner en contacto durante 2 horas el sólido base con solución de AgNO_3 (100 g de sólido + 120 mL de solución conteniendo 18,9 g de AgNO_3) con agitación periódica.

2) Secado en estufa (11 horas a 100°C), con agitación ocasional.

Determinación de eficiencia: Se usó el aparato que se ve en la figura, consistente en un cilindro de aire comprimido (a), un caudalímetro (b), un sistema de termostatación (c) y saturación de humedad

(d), un generador de iodo (e) y un conjunto de lechos filtrantes (f), con un horno eléctrico a $50-150^\circ\text{C}$ (h), donde se colocan los materiales en estudio.



EQUIPO PARA DETERMINACION DE EFICIENCIAS

La generación de iodo se hizo agregando lentamente solución de H_2SO_4 4% a una solución de IK y IO_3K (10,8 g y 2,81 g respectivamente para 100 mL), que contenía 0,5-1 μCi de ^{131}I .

Se usaron varios lechos de 25 mm de largo y 12 mm de diámetro, de manera que en el último lecho no se detectó iodo.

El valor de la eficiencia η se obtuvo midiendo la actividad de ^{131}I en cada uno de los lechos de estudio, según la siguiente fórmula:

$$\eta = \frac{\text{Actividad en el lecho de estudio}}{\text{Actividad total en todos los lechos}}$$

Para obtener la carga específica ($C = \text{mg I}_2 / \text{g de absorbente}$), se determinó la actividad de una alícuota de la solución del generador, de concentración de iodo conocida. Con ese dato y la actividad en los lechos, se calculó la masa de iodo absorbida.

Análisis de contenido de Ag: Se disgregó parcialmente el material con solución de HNO_3 y FH, se llevó a seco y se extrajo con agua. Se tituló el extracto con solución de SCNK 0,1 N. Se obtuvieron valores entre 10 y 8,7 % de Ag.

3. ESTUDIO DE LA EFICIENCIA EN FUNCION DE LA CARGA ESPECIFICA Y LONGITUD DEL LECHO

Un resumen de los valores obtenidos se encuentran en la Tabla siguiente donde se observa que se alcanzan eficiencias mejores que 99,9%, correspondientes a un factor de decontaminación de 10^3 , para lechos de 15-20 cm de largo, con cargas de 20-30 mg I_2/g material.

LECHO cm	TM 13X		TM 10X20		HFM	
	η	C	η	C	η	C
5	46,77	115,9	69,56	81,5	72,56	140,7
10	78,30	57,9	99,19	40,7	98,52	70,4
15	96,71	38,6	99,99	27,2	99,99	46,9
20	99,99	28,9	99,999	20,4	99,999	35,2

Para cargas menores de 3 mg, que todavía son altas en relación a los efluentes previstos en las instalaciones a que están destinados estos filtros, se alcanzan esas eficiencias con lechos de ~ 10 cm de largo, como se ve en ejemplo de la Tabla para TM 10X20.

Lecho cm	η %	carga C
5	99,74	7,6
7,5	99,86	5,0
10	99,93	3,8
12,5	99,98	3,0

Las eficiencias se encuentran en el orden

TM 13X < TM 10X20 < HFM

Esto puede deberse al mayor contenido de Ag, que sigue igual secuencia, pero también es resultado de un mejor empaquetamiento del lecho, por la forma y tamaño del grano.

4. APROVECHAMIENTO DE Ag

La proporción de Ag que se utiliza, es menor cuando se alcanzan altas eficiencias y se usan por lo tanto largos de lechos mayores, como se ejemplifica en la siguiente Tabla, para TM 10X20.

Lecho cm	% Ag reacc.	η
5	56-48	64,9-69,6
10	41-31	96,3-99,2
12,5	34-28	99,6-99,98
15	29-23	99,99
20	21-17	99,99

5. RESISTENCIA AL FLUJO DE GAS

Los resultados expresados en mm de Hg, en función del caudal y del largo del lecho, para un diámetro 12 mm, son los siguientes:

Caudal L/min	Largo cm	TM 13X	TM 10X20	HFM
1	25	1,0	2,7	4,3
2	25	5,0	10,3	12,9
3	25	10,8	19,3	21,3
4	25	17,8	29,5	33,7
5	25	24,3	41,7	51,5
2	20	3,3	7,5	9,7
2	15	2,7	5,3	6,7
2	10	1,5	3,0	4,2

El material importado presenta la mayor resistencia. El TM 13X forma un lecho más irregular y podría dar lugar a canalizaciones parciales.

6. TEMPERATURA DE LOS LECHOS

Se obtuvieron eficiencias mayores a 50 y 100°C que a 150°C, en iguales condiciones de humedad del aire de entrada. La operación a 50°C resulta inconveniente por excesiva humidificación del material.

7. SUPERFICIE ESPECIFICA (*)

MATERIAL		SUPERFICIE: m ² /g	
13X	s/impr.	298 +	30
10X20	s/impr.	322 +	32
10X20	impr.	197 +	20
HFM		60 +	3

Como se ve en la Tabla, se produce una disminución de superficie después de impregnar, lo cual, junto con la comparación con otros materiales, indica que la mayor eficiencia no se debe a una mayor superficie específica

(*) Determinada por el Departamento Combustibles Nucleares, Controles Fisicoquímicos Ceramográficos.

8. EFFECTOS DE OXIDOS DE N

Se intercaló una entrada antes del lecho por donde se introdujeron NO₂ o NO, generados a partir de pirólisis de Pb(NO₃)₂ o reacción de Cu + HNO₃ respectivamente.

En el caso del NO₂ (~ 2,5% v/v en el aire portador) se comprobó una disminución de eficiencia, tanto para el material original como agotado al 50% de Ag. Se obtiene el mismo resultado para NO.

Para mezclas de NO y NO₂ la eficiencia aumenta respecto de las experiencias con cada gas por separado y el efecto es poco notorio respecto de la eficiencia con solo aire como gas portador.

TM 10X20

LECHO cm	AIRE		+ NO ₂		+ NO		NO/NO ₂	
	η	C	η	C	η	C	η	C
5	58,03	98,5	34,82	129,7	44,39	107,5	45,08	131,8
10	91,72	49,3	62,22	64,8	78,53	53,8	77,45	65,9
15	99,95	32,8	83,35	43,2	95,81	35,8	95,62	43,9
20	99,99	24,6	95,95	32,4	99,74	26,9	99,85	32,9

TM 10X20/50%

LECHO cm	AIRE		+ NO ₂		+ NO / NO ₂	
	η	C	η	C	η	C
5	51,71	136,1	43,77	131,5	49,50	134,5
10	86,04	68,1	69,67	65,8	88,50	67,3
15	99,09	45,4	88,22	43,8	97,86	44,8
20	99,85	34,0	97,76	32,9	99,99	33,6

9. CONCLUSIONES

- Con el método de impregnación descrito se pueden obtener materiales cuyas propiedades lo hacen utilizable en filtros para retención de radioiodo, siendo comparables al material comercial importado.

- Se puede reducir la temperatura de los lechos por debajo de 150°C, pero sin llegar a 50°C.

- Debe evitarse la presencia de NO o bien de NO₂, aunque la mezcla de ambos no parece afectar mayormente la eficiencia.