

03.74.20

C. N. E. A. - Biblioteca	
ARCHIVO DOCUMENTACION	
Nº 1	1974

CNEA/EN - 40/128

REPUBLICA ARGENTINA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION
GERENCIA DE ENERGIA

PRODUCCION Y RECUPERACION DE NEPTUNIO
EN LA REPUBLICA ARGENTINA

por

A.J.G. Maroto, F. Kaufmann y J.G. Flegenhimer

BUENOS AIRES

MARZO 1974

CNEA/EN - 40/128

REPUBLICA ARGENTINA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION
GERENCIA DE ENERGIA

PRODUCCION Y RECUPERACION DE NEPTUNIO
EN LA REPUBLICA ARGENTINA

por

A.J.G. Maroto, F. Kaufmann y J.G. Flegenheimer

BUENOS AIRES

MARZO 1974

RESUMEN

Se describe la producción de neptunio-237 en reactores argentinos como función de la instalación de reactores . Se discute la posible influencia de su recuperación, en la economía de la producción de plutonio fisionable.

ABSTRACT

The production of neptunium-237 in Argentine reactors is described as a function of the installation of reactors in the country.

The possible influence of its separation on the economy of plutonium production is discussed.

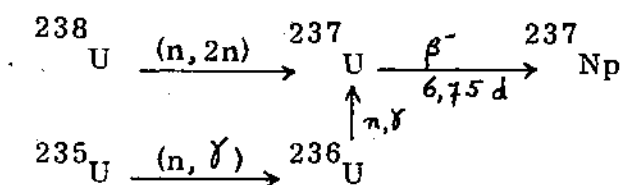
INTRODUCCION

A pesar que estudios canadienses ⁽¹⁾ sostienen que para sus condiciones, desde el punto de vista económico, los reactores con combustible de uranio natural no necesitan del reprocesamiento debido a que el uranio agotado no sirve para el reciclado, estos combustibles contienen otros isótopos que podrían hacer que su recuperación resultara interesante. Entre ellos se encuentra, en orden de importancia: el plutonio, el neptunio, el americio y el curio.

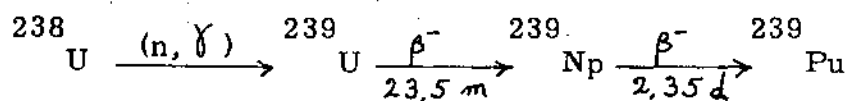
Al diseñar una planta de reprocesamiento las inversiones y gastos que demanda la recuperación del neptunio son despreciables comparadas con los de la totalidad de la planta. Es por este motivo que en este trabajo sólo se dedicará al cálculo de los costos de recuperación del neptunio-237 y del plutonio fisionable en plantas industriales nacionales.

El americio-241 puro puede obtenerse de stock de plutonio envejecido, el aumento del valor del plutonio debido al crédito del americio producido fue discutido en la referencia (2).

La producción del neptunio-237 y de plutonio-238 en reactores ha sido estudiada y discutida por varios investigadores ⁽³⁾⁽⁴⁾⁽⁵⁾⁽⁶⁾ como así también el efecto del reciclaje de uranio en reactores de potencia para optimizar la producción de plutonio-238 ⁽⁷⁾. Las ecuaciones siguientes ilustran la formación del neptunio-237



En los elementos combustibles nucleares el isótopo del plutonio que predomina es el 239, que se produce a través de la siguiente cadena:



y en muy pequeña proporción plutonio-238 por reacción (n, γ) sobre el neptunio-237. Es por ello que la producción de plutonio-238 involucra la siguiente secuencia: recuperación y purificación del neptunio-237 de los elementos combustibles, preparación del óxido, irradiación y posterior recuperación y purificación del plutonio del neptunio.

Los procesos para la recuperación y purificación del neptunio-237 han sido desarrollados y aplicados en escala de kilogramos. En la actualidad existen numerosas referencias bibliográficas donde se recopilaron los distintos métodos de recuperación. Entre ellas debe mencionarse los trabajos de Parker ⁽⁸⁾, Lewis ⁽⁹⁾, Nairn ⁽¹⁰⁾, Groh ⁽¹¹⁾, Ultrup ⁽¹²⁾, Baybarz ⁽¹³⁾, Coleman ⁽¹⁴⁾, Jenkins ⁽¹⁵⁾, Katz ⁽¹⁶⁾ y mas recientemente el trabajo de Schulz ⁽¹⁷⁾.

La necesidad de la recuperación en gran escala de neptunio depende de la demanda de plutonio-238. Las características de este último isótopo como así también sus posibles aplicaciones pueden encontrarse en las referencias (18), (19), (20) y (21).

La irradiación de neptunio-237 puro en reactores de potencia produce plutonio-238 y en pequeña proporción plutonio-239 y 236. Este último nucleído, con un período de 2,85 años, desintegra a uranio-232 y sus hijas, algunas de las cuales poseen radiación gamma dura. Es por este motivo que las especificaciones para la concentración de plutonio-236 en plutonio-238 son estrictas y varían de acuerdo al uso que se da al producto. Para uso en baterías espaciales se ha fijado un límite de 2 ppm ⁽²²⁾ y para uso médico (marcapasos) el límite es menor que 0,3 ppm. ⁽²³⁾. Para cumplir con las especificaciones es ventajoso irradiar neptunio en reactores moderados con agua pesada, que producen el mínimo de plutonio-236 ⁽²⁴⁾.

De acuerdo con Wood ⁽²³⁾ el plutonio-238 que contiene 236 puede utilizarse primeramente como fuente de calor por espacio de 10 años (cuatro vidas medias) y posteriormente ser reprocesado para eliminar al uranio-232 y sus hijas para ser utilizado con fines médicos.

Debe señalarse que el neptunio-237 que se recupera en las plantas de reprocesamiento debe convertirse en óxido (NpO_2) para poder irradiarlo en un reactor. Los posibles métodos para su obtención han sido estudiados por Porter ⁽²⁵⁾. La metodología de la irradiación, como así también la recuperación de plutonio-238 del neptunio-237 fueron exhaustivamente estudiados por Jenkins ⁽²⁶⁾, Folger ⁽²⁷⁾ y Burney ⁽²⁸⁾ entre otros.

PRODUCCION DE NEPTUNIO- 237 EN LA REPUBLICA ARGENTINA

Para estimar la producción de neptunio-237 se supondrá :

1. - Que las centrales nucleares a instalarse serán del tipo CANDU, con combustibles a base de óxido de uranio natural moderadas con agua pesada y módulos de 600 MW_e.
2. - Para el cálculo de la cantidad de elementos combustibles irradiados por estas centrales se utilizaron los siguientes datos : quemado 8.000 MWd/T, factor de utilización 80% y una eficiencia térmica del 29%.
3. - Diversos ritmos de crecimientos en la producción de elementos combustibles irradiados desde 80 T/a² á 30 T/a², debido a posibles variaciones del Plan Nuclear Argentino.
4. - Que cada política nuclear elegida se mantiene constante hasta el año 2.000. Es decir, dado un valor de la pendiente de crecimiento, este se mantendrá constante y cualquier cambio del mismo sólo podrá deberse al reciclaje del plutonio en los reactores.
5. - La producción anual de neptunio -237 se calculó en base de un contenido de $2 \cdot 10^{-2}$ g/kg de uranio irradiado (29).

En la Fig. 1 se representó esquemáticamente el modelo empleado para el cálculo de la producción de los elementos combustibles irradiados. En ella se pueden observar tres secciones bien definidas:

- a. - La región I entre 0 y 6 (que corresponde al período 1974-1980).
Aquí la función es una constante igual a A que corresponde a una producción estacionaria del reactor de Atucha estimada en 45 T/a de uranio.
- b. - La región II entre 6 y ∞ (que corresponde al período comprendido entre 1980 y tres años después que la planta de reprocesamiento comienza a operar).
Es una función lineal de pendiente m.
- c. - La región III entre ∞ y T (donde T es la fecha correspondiente al último año de la vida útil de la planta de reprocesamiento y que entró en operación en X, $T-X = 15$ años).

Aquí se supone nuevamente una función lineal pero cuya pendiente es $m/2$. La modificación de esta pendiente es debida a la incorporación de plutonio a los elementos combustibles de los reactores. Adoptando este valor se supone que el nivel de quemado alcanzará el doble del que se logra en los reactores de la primera generación. En consecuencia, a pesar de que el ritmo de crecimiento de la potencia instalada se mantenga invariable, la pendiente de la producción de los elementos combustibles nucleares irradiados disminuirá a la mitad.

En otras palabras, la producción de neptunio-237 (V_r) hasta el año final de la vida útil de la planta de reprocesamiento (T) será una función de dos variables del tipo:

$$V_r = V_r(m, X) \quad (1)$$

Nótese que la ecuación (1) es una función de dos variables debido a que fueron impuestas las siguientes condiciones:

- a. - $T - X = 15$ años (vida útil de la planta de reprocesamiento)
- b. - $T - \mathcal{C} = 12$ años (se asume que es necesario tres años como mínimo desde la puesta en marcha de la planta de reprocesamiento y la operación de reactores con uranio enriquecido con plutonio)
- c. - En la región I se asume una producción estacionaria de 45 T/a

En la Fig. II se muestra la cantidad total de neptunio-237 y plutonio-239 acumulada hasta la fecha T (fin de la vida útil de la planta) en función de la pendiente de la curva de crecimiento m . Obsérvese que la planta comienza a operar 15 años antes de la fecha T .

COSTO DE RECUPERACION DEL NEPTUNIO - 237

Este cálculo se hará sobre plantas nacionales de reprocesamiento optimizadas.

Las plantas fueron optimizadas utilizando las conclusiones de estudios franceses ^{(30) (31)}. Estos investigadores emplearon el método de programación dinámica secuencial para el tratamiento matemático del problema aplicado al reprocesamiento de elementos combustibles de uranio natural. De esta forma construyeron un modelo que permite determinar no sólo la política y subpolíticas optimizadas dentro de un contexto técnico y económico dado sino también la sensibilidad del óptimo a las hipótesis adoptadas.

Resumidamente las conclusiones pueden enunciarse en la siguiente forma:

1. - para costos de transporte bajos (menor o igual a 2 U\$S/kg) conviene instalar una sola central de reprocesamiento.
2. - la capacidad óptima de la planta será aquella que cubra la demanda total de reprocesamiento en el último año de su vida útil.

En base a las premisas anteriores y a un dado plan de instalaciones de centrales nucleares, es posible calcular la capacidad óptima de la planta de reprocesamiento en función del año de su puesta en servicio, como así también sus factores de utilización promedio y consecuentemente sus costos de producción.

Las conclusiones de los trabajos franceses son aplicables a la situación nacional debido a que las condiciones imperantes en la República Argentina están dentro de sus límites de validez.

En la República Argentina el costo de transporte de los elementos combustibles irradiados fue estimado en 0,41 U\$S/kg para centrales instaladas en Atucha, 1,42 U\$S/kg en Río Tercero, 1,45 U\$S/kg en Bahía Blanca y en 1,96 U\$S/kg en Mendoza ⁽³²⁾ considerando que la planta de reprocesamiento se instalara en Buenos Aires.

El cálculo del costo de recuperación del neptunio y del plutonio en plantas de reprocesamiento industriales nacionales optimizadas ⁽³²⁾ se realizó prorrateando el costo del tratamiento global del combustible entre el neptunio y el plutonio. En otras palabras se le asignó un valor nulo al uranio agotado como así también al resto de los nucleídos.

Para el prorrateo se tomó como criterio los precios internacionales; se utilizó el valor de 75 U\$S/g ⁽³³⁾ para el neptunio y de 12 U\$S/g ⁽³²⁾ para el plutonio fisionable.

En las Tablas I y II se tabularon los costos de recuperación del plutonio y del neptunio expresados en dólares por gramo (valor actualizado a mayo 1973) en función de la pendiente de la curva de crecimiento. En estas cifras se incluye el costo de reprocesamiento, almacenamiento y transporte. Debe señalarse que estos costos se han calculado para plantas nacionales optimizadas.

DISCUSION

En la Tabla III se ilustra la proyección de la disponibilidad de neptunio-237 en EEUU⁽³⁴⁾. Debe remarcarse, que a pesar de que estas cantidades son técnicamente recuperables ello no implica que lo sea económicamente.

Aún sin tener en cuenta la producción mundial de neptunio se puede apreciar de la Tabla III y la Fig. 2 que la eventual producción de neptunio en la Argentina no incide de ninguna manera al mercado internacional y además existe la posibilidad de que el precio del neptunio tienda a decaer.

Si a pesar de ello suponemos que la relación de precios del neptunio y plutonio fisionable se mantendrá constante, la recuperación del neptunio provoca que el costo de recuperación del plutonio fisionable se reduzca en aproximadamente el 8%.

De los resultados que se obtienen de este trabajo y de otro de uno de los autores⁽³²⁾ no se puede inferir que el reprocesamiento de elementos combustibles irradiados en la Argentina sea conveniente desde el punto de vista económico. Para llegar a esta conclusión deberá estudiarse el ciclo combustible en su conjunto.

TABLA I: Costo total de recuperación del Plutonio fisionable en U\$S/g.

año m	año puesta en marcha							
	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988
30	12,4	11,8	11,0	10,3	9,7	9,2	8,6	8,2
40	11,6	10,6	10,0	9,2	8,4	8,0	7,7	7,3
50	10,6	10,0	9,0	8,2	7,7	7,1	7,0	6,5
60	10,0	9,0	8,2	7,7	7,1	6,5	6,4	6,2
70	9,4	8,4	7,7	7,1	6,7	6,2	5,8	5,6
80	8,7	8,0	7,5	6,9	6,4	6,0	5,4	5,2

TABLA II: Costo total de recuperación del Neptunio en U\$S/g.

		año puesta en marcha						
año m	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988
30	77,0	73,6	68,9	64,2	60,7	57,2	53,7	51,4
40	72,4	66,6	61,9	57,2	52,6	50,2	47,9	45,6
50	66,6	61,9	56,0	51,4	47,9	44,4	43,2	40,9
60	61,9	56,0	51,4	47,9	44,4	40,9	39,7	38,5
70	58,4	52,6	47,9	44,4	42,0	38,5	36,2	35,0
80	54,9	50,2	46,7	43,2	39,7	37,4	33,9	32,7

REFERENCIAS

1. - Watson D. Outlook for Heavy Water Reactors AECL- 4368 Jan. 1973
2. - Kaufmann F. Estimación de la incidencia económica de algunas alternativas de producción y almacenamiento de plutonio. CNEA/EN 26/94 (1972)
3. - Vondy D.R., Lane J.A. and Gresky A.T. Ind. Eng. Chem. Process Design. Develop. 3 (1964) 293
4. - Lewis W.D. DMO-90 (1967)
5. - Meichle R.H. and Owsley G.F. Paper Amer. Nucl. Soc. National Topical Meeting, Augusta Georgia, March 20-23 (1966)
6. - Binford F.T. and Showalter C.W. ORNL- 4023 (1967)
7. - Nilson R. and Showalter C.W. Paper Amer. Nucl. Soc. National Topical Meeting, Augusta Georgia, March 20-23 (1966)
8. - Flanary J.R. and Parker G.W. The development of Recovery Processes for neptunium-237 in Progress in Nuclear Energy Serie III. F.R. Bruce J.M. Fletcher and H.H. Hyman (Eds) Vol 2 pag. 501. Pergamon Press Inc. New York 1958
9. - Lewis W.H. Americium and Neptunium Recovery Process in Proc. of the Second United Nations Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy Geneva, 1958, Vol 17 pag. 236 .
10. - Nairn J.S. and Collins D.A. The recovery of neptunium-237 idem ref.(9) pag. 518
11. - Groh H.H, and Schlea C.S. The recovery of neptunium-237 and plutonium-238 in Progress in Nuclear Energy Serie III, Vol 4 pag. 507 'Pergamon Press (N.Y.) (1970)
12. - Ulstrup J. Methods of separating the Actinide Elements. At. Energy Rev. 4(4):3 (1966)
13. - Baybarz R.D. Recovery and applications of transuranium elements. At. Energ. Rev. 8 (1970) 327

14. - Coleman C.F. Amine Extraction in Reprocessing At. Energy Rev 2(1964)
15. - Jenkins I.L. Factors Governing the Choice of a $^{237}\text{Np}/^{238}\text{Pu}$ separation Process. Actinides Rev. 1 (1969) 187
16. - Katz J.J. and Seaborg G.T. The Chemistry of the Actinide Elements pag. 204-238 .John Willey and Sons Inc. N.Y. 1957
17. - Schulz W.W. and Benedict G.E. Neptunium-237 Production and Recovery TID- 25955 (1972)
18. - Stoddard D.H. and Albenesius A. Radiation properties of ^{238}Pu Produced for Isotopic Power Generators. USAEC Report DP-984 Savannah River Lab. (1965)
19. - Lang W. , Deonigi D'E' and Rohmann C.A. Power Cost Reduction from Isotope Revenues, Nucl. Appl. 3 (1967) 665
20. - Spinrad B.I. Long Range Speculation on Isotopic Power in Large Production and Applications of Radioisotopes. Proceed of the American Nucl. Soc. National Topical Meeting March 21-23 (1966). USAEC Report DP- 1066 Vol 1 pag. 19. Savannah River Lab. May (1966)
21. - Alais M, Berger R, Boucher R, Hixon J.D. , Laurens P. and Piwnica A. The French Nuclear Powered Pacemaker Program. Nucl. News 13;12 (1970) 42
22. - Braun H. , Moy T. Bestimmung von Uran-232 und Plutonium-236 in bestrahlten Korbrennstoffen KFK 1128 (1970)
23. - Wood D.E. Isotope production in Commercial Power Reactors. Isotop. Radia. Techn. 9:2(1971) 129
24. - Idem ref. (22) pag. 7
25. - Porter J.-A. Ind. Eng. Chem. Process Design Develop. 3 (1964) 289
26. - Jenkins I.L., Shorthill G.G. , Streeton R.J.W. and Wain A.G. AERE-R-5074 (1966)
27. - Myrick R.E. and Folger R.L. Ind. Eng. Chem. Process Design. Develop. 3 (1964) 309

28. - Burney G.A. Ind. Eng. Chem. Process Design. Develop. 3(1964)328
29. - Ing. Solanilla CNEA (Departamento de Reactores) Comunicación Personal (1974)
30. - Thiriet L. , Oger C. and de Vaumas P. Perspectives a long terme des couts de traitement de l'uranium naturel irradié, tailles et localisation optimales des usines CEA-R- 2642 Aug. 1964
31. - Thiriet L et al Couts d'investissement et d'exploitation des usines de retraitment de l'uranium naturel irradié. CEA-R- 2937 Jan. 1967
32. - Kaufmann F. Costos de Reprocesamiento, Almacenamiento y Transporte para combustibles irradiados de uranio natural en la Argentina CNEA/EN 37/110 Sep. 1973
33. - Anderson Isotopic Production Advantages of Plutonium enriched Advanced Light Water Reactor. Trans. Nuclear Am. Soc.14;1(1971) 89
34. - Mc Kee R.W. and Heeb C.E. Isotope Production Evaluations in Pacific Northwest Laboratory, Division of Isotopes Development Programs, Quartely Report , August-October 1971 USAEC Report BNWL- 1308-8 pp 7-21 Pacific Northwest Lab. Nov. 1971

AGRADECIMIENTOS

Los autores desean expresar su agradecimiento por la colaboración prestada en este trabajo por los Ings. H.E. Sarraillet, J.A. Buscaglia y por el Sr. K. Toth

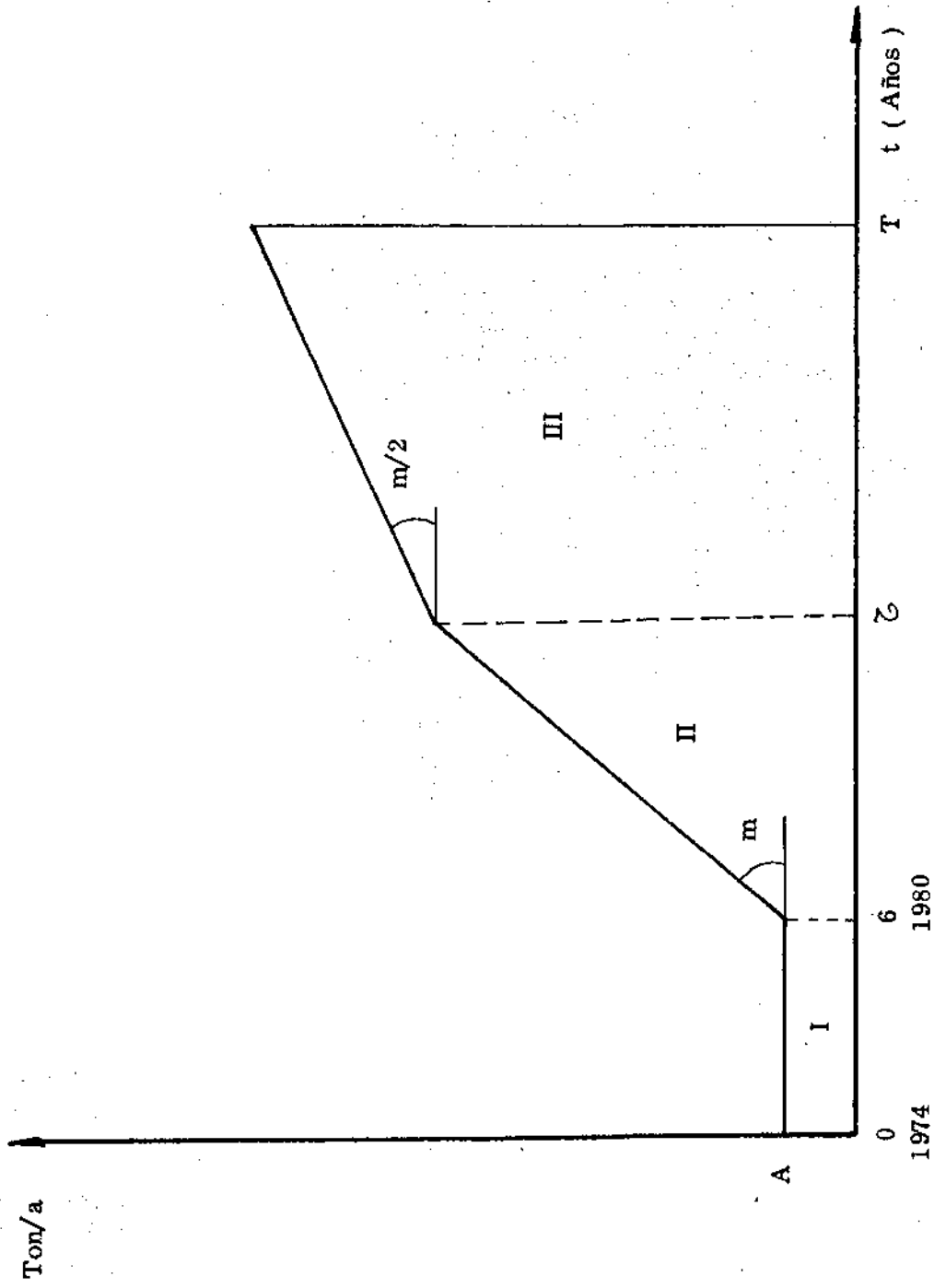


Fig.1 - Curva de crecimiento de la producción de elementos combustibles irradiados.

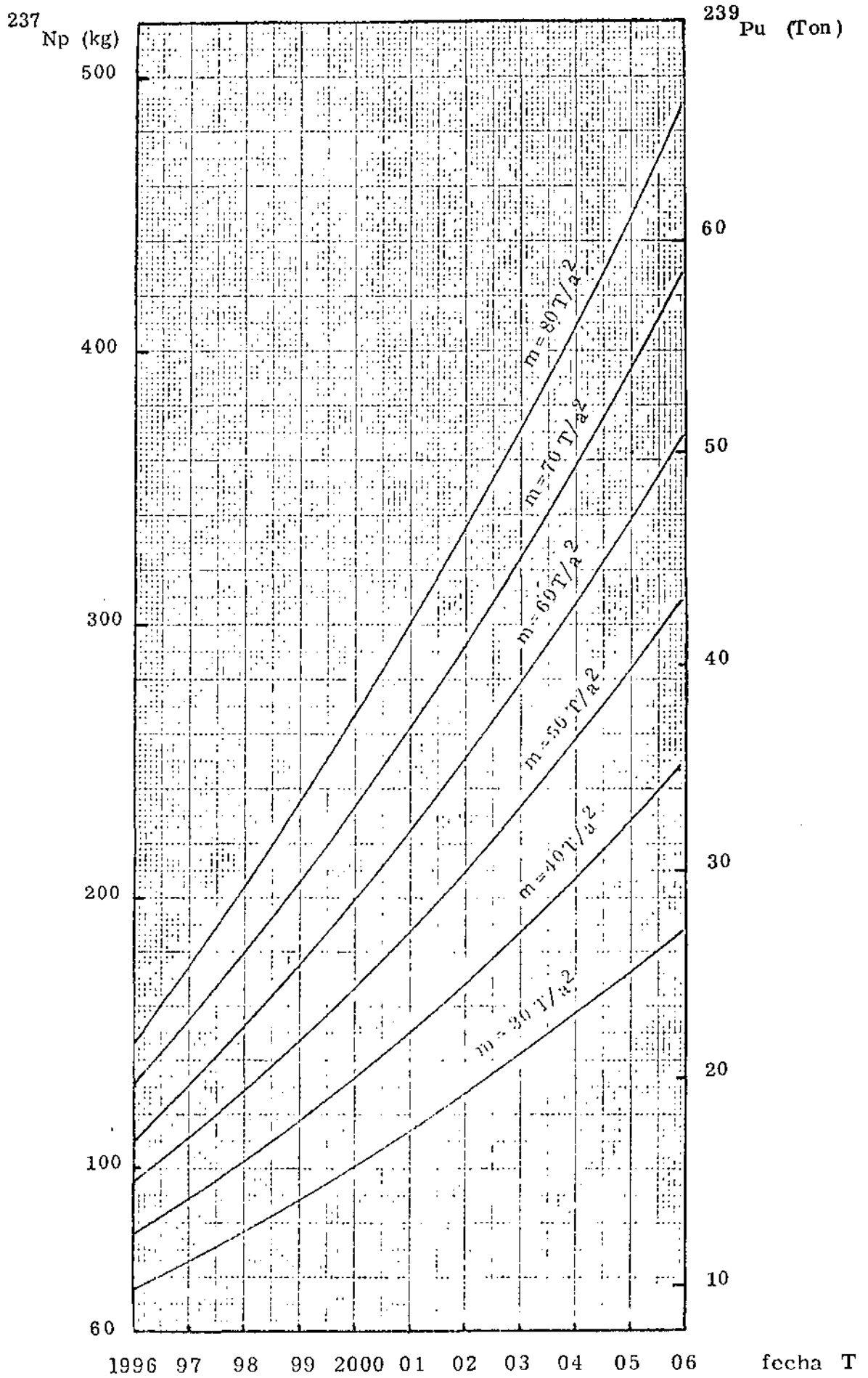


Fig.2 - Cantidad total de neptunio - 237 y plutonio - 239 acumulada hasta la fecha T , en función de la pendiente de la curva de crecimiento (m).