

Промышленные процессы остекловывания растворов высокоактивных жидких отходов

Технический обзор процессов, активно применяемых для обработки и отверждения жидких отходов в стекле

В. Баэр

Осуществляемые в странах, ориентирующихся на переработку топлива, программы по обращению с высокоактивными отходами (ВАО) основываются на иммобилизации растворов ВАО в монолитных формах. Исследования и разработки по отверждению концентрированных растворов продуктов деления начались в некоторых странах более 30 лет тому назад. Первоначально они были направлены главным образом на определение соответствующего матричного материала и лишь позднее – на разработку методов отверждения в промышленных масштабах.

Материалы-кандидаты для капсулирования продуктов деления составляют значительный перечень от простой денитрифицированной извести до стекол, кристаллической керамики и более сложных форм (окатыши, покрытые долговечными материалами; стекло или керамические слои, включаемые в инертные матрицы). За последние годы возросло согласие относительно того, что стекло представляет собой компромисс по своим свойствам, удобству изготовления и имеющемуся опыту работы с ним. Изучались несколько видов стекла, но были отобраны лишь составы силикатного и боросиликатного стекла.

Во всем мире разработано и продемонстрировано много процессов отверждения, по разным причинам не применяющихся в настоящее время. Однако опыт работы на соответствующих установках позволил получить много данных, необходимых для конструирования современных установок. Действующие в настоящее время в мире промышленные установки по отверждению используют только процесс остекловывания.

Основными стадиями процесса остекловывания являются концентрирование раствора высокоактивных жидких отходов (ВАЖО) путем выпаривания воды и азотной кислоты; сушка и кальцинация, приводящая к разложению нитратов на окислы; реак-



На установке в Маркуле, Франция, контейнеры с остеклованными высокоактивными отходами транспортируются в охлаждаемые воздухом колодцы для временного хранения. (Предоставлено: ANDRA)

Г-н Баэр – старший сотрудник Отдела ядерного топливного цикла и обращения с отходами МАГАТЭ.

ция окислов со стеклообразующими добавками и плавление для образования остеклованных ВАО.

В зависимости от процессов эти стадии могут осуществляться отдельно или вместе (одностадийные или многостадийные процессы). Операции по сушке и кальцинации совмещаются в одной установке (кальцинация во вращающейся обжиговой печи) и составляют хорошо отработанный процесс.

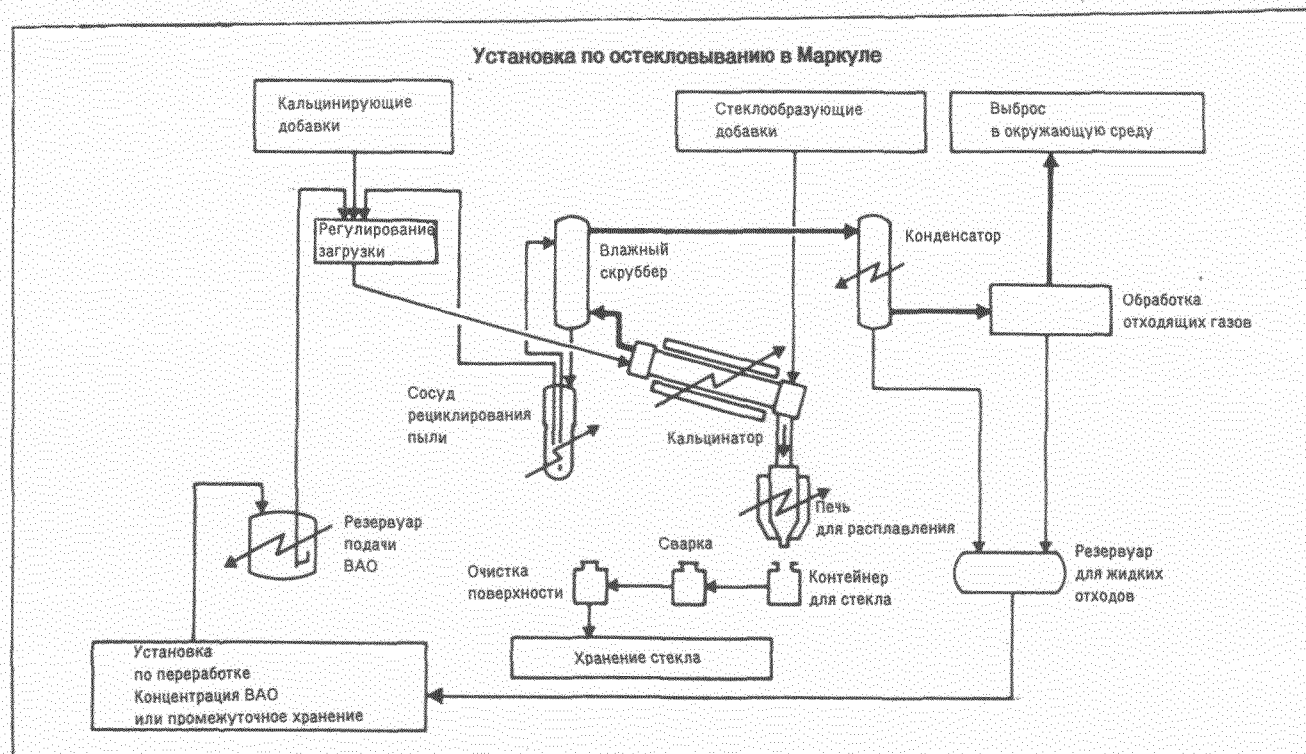
Процесс расплавления стекла может осуществляться в металлическом или керамическом расплавителе. Металлический расплавитель представляет собой печь с индукционным нагревом металлического корпуса и передачей тепла стеклянному продукту. Основные преимущества металлических расплавителей заключаются в низкой стоимости и удобстве управления. Недостатком является ограниченная пропускная способность (30–40 литров в час). Керамические расплавители нагреваются обычно непосредственно погружаемыми в них силовыми электродами и обладают пропускной способностью свыше 100 литров ВАЖО в час. Однако процесс с керамическими расплавителями отличается до сих пор высокой стоимостью и сравнительно сложным управлением.

Для превращения раствора ВАЖО в боросиликатное стекло разработаны два основных процесса остекловывания. Один – хорошо известный французский процесс АVM (Atelier de Vitrifaction Marcoule – Цех остекловывания в Маркуле). Это постоянный метод двухстадийного остекловывания, промышленное использование которого в отношении высокоактивных отходов началось в 1978 г. Другим процессом является постоянный одностадийный метод с керамическим расплавителем. Он демонстрируется с 1985 г. в условиях радиоактивности на принадлежащем Федеративной Республике Германии заводе „Памела“, расположенном в Моле, Бельгия.

Процесс АVM

Процесс АVM сочетает вращающуюся обжиговую печь и металлический тигель с индукционным нагревом, позволяющим расплавлять стекло (см. рисунок). В раствор высокоактивных продуктов деления вносятся кальцинирующие добавки через верхний край кальцинатора – слегка наклоненной трубчатой печи, вращающейся со скоростью 30 оборотов в минуту. С каждого конца печь поддерживается катковыми опорами. На концах находятся газонепроницаемые уплотнения, допускающие продольное расширение и сохраняющие плотность затыжки. Имеющийся внутри печи гребок рассчитан на предотвращение возможного спекания. Труба нагревается снаружи электропечью, разделенной на четыре зоны. Первые две зоны, предназначенные для выпаривания, имеют тепловую мощность по 20 киловатт каждая, а другие – по 10 киловатт. Температура колеблется от 225 °С в питающей точке до максимальной 600 °С. Скорость потока раствора с отходами – обычно около 40 литров в час. Выпускное отверстие вращающегося кальцинатора связано с расплавителем. Кальцинированные продукты попадают самотеком в расплавитель, в котором происходит индукционный нагрев примерно до 1150 °С. Одновременно расплавитель заправляется стекловым шлаком (через 8-часовые интервалы). В нижней части расплавителя имеется выпускное отверстие, позволяющее вылиться его содержимому после расплавления обычной твердой стеклянной пробки. Пропускная способность расплавителя – примерно 15 килограммов в час.

Образующиеся в расплавителе и кальцинаторе отходящие газы выпускаются через кальцинатор и проходят в скруббере первую обработку. Скруббер улавливает находящиеся в газах частицы и растворяет их в постоянном потоке кипящей азотной кислоты. Образующийся раствор постоянно посту-



пает в кальцинатор. Отходящие газы обрабатываются затем в рекомбинационном сосуде, нитрованной паровой фракции, двух абсорбционных колоннах и фильтрах. Затем газы выпускаются в вентиляционную систему. Рекомбинированная в результате обработки отходящих газов кислота рециклируется.

Стекло выливается в канистру из тугоплавкой нержавеющей стали, которая по ее заполнении закрывается крышкой и заваривается автоматической плазменно-дуговой сваркой. После промывки струей воды под давлением 250 бар канистра помещается в вентилируемый сборник для промежуточного хранения.

На конец октября 1988 г. с помощью процесса AVM было остекловано около 1225 куб. метров раствора продуктов деления с общим содержанием активности 250 мегакюри*. Эта масса заняла 1547 канистр, содержащих около 540 тонн боросиликатного стекла.

Данный процесс будет применяться также на двух установках по остекловыванию, разработанных и построенных фирмой SGN на мысе Аг на площадке заводов по переработке топлива. Эти установки практически идентичны: обе включают в себя три линии остекловывания, каждая со способностью выпаривания 60 литров в час и скоростью производства стекла 25 килограммов в час.

Процесс AVM принят также на установке в Селлафилде Уиндскейлского завода по остекловыва-

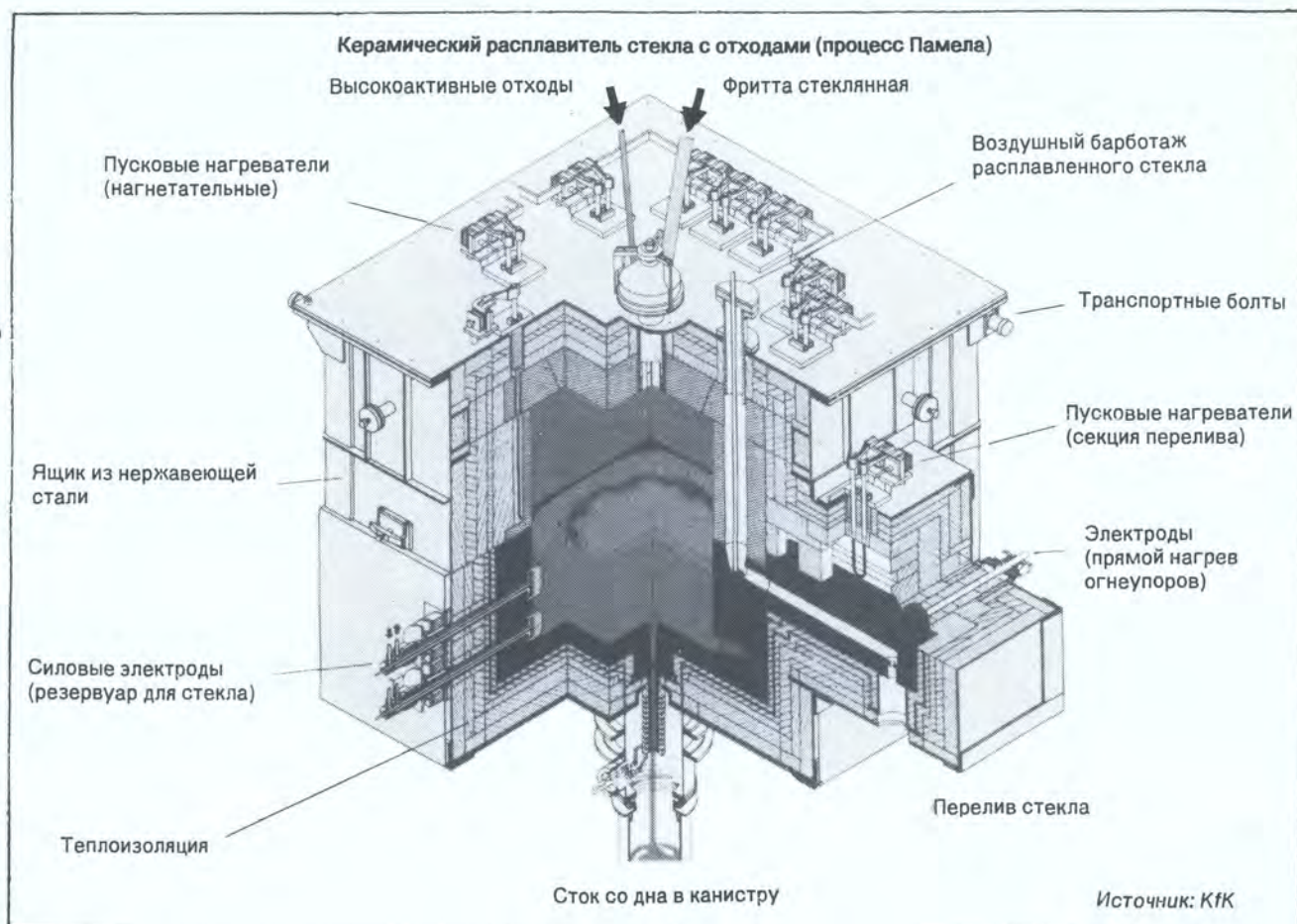
нию (WVP) в Великобритании, на которой будут работать две линии.

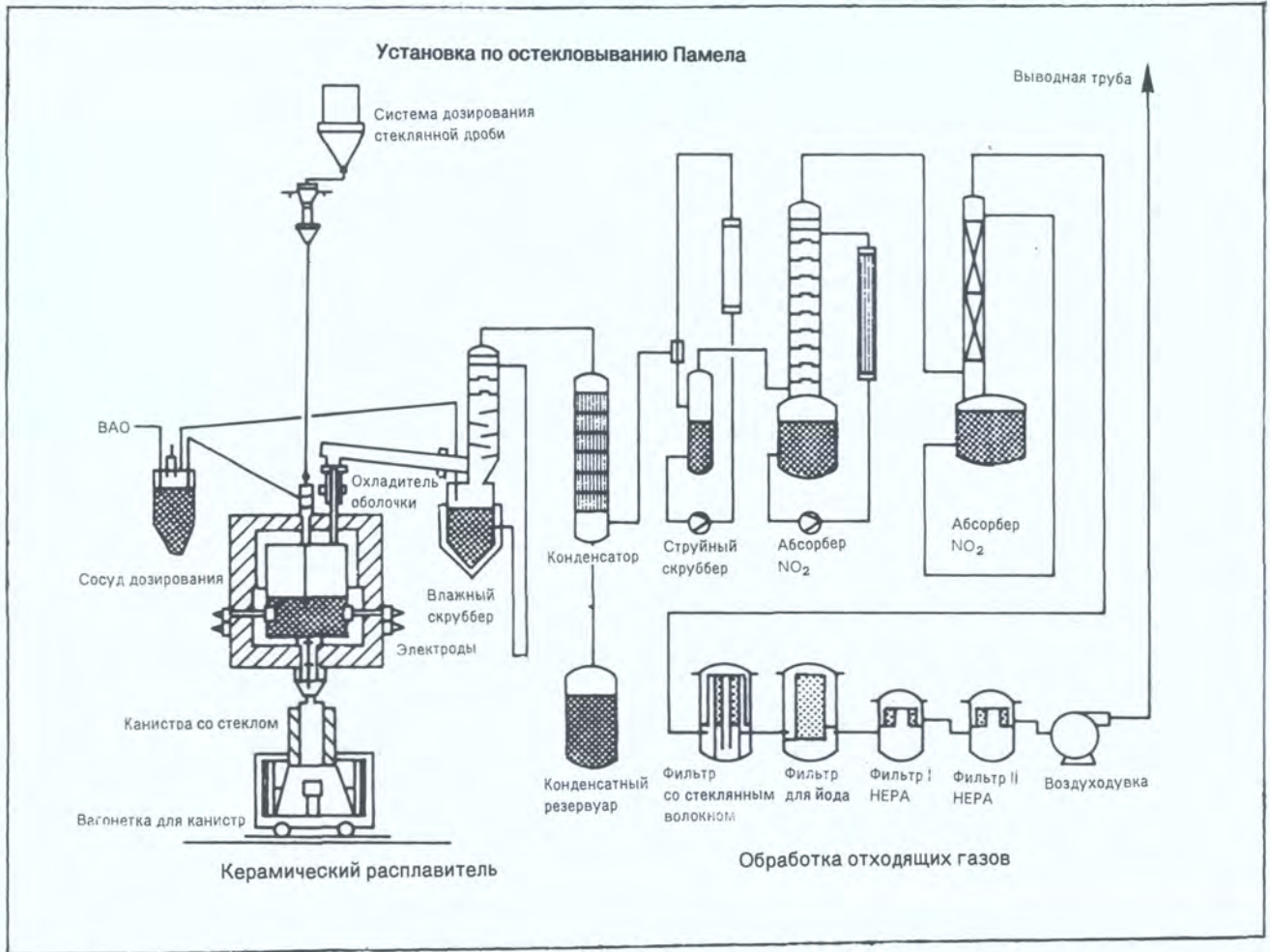
Процесс Памела

На установке по остекловыванию в Памела осуществляется одностадийный процесс. Он основывается на керамическом расплавителе, из которого раствор высокоактивных продуктов деления подается непосредственно (вместе со стеклом или отдельно) в расплавитель стекла, где стадии выпаривания, кальцинации и расплавления совершаются одновременно. В керамическом расплавителе применяется нагрев джоулевым теплом, поскольку стекло становится при высоких температурах хорошим проводником электричества. Проходящий между погруженными в стекло электродами переменный ток образует тепло в результате эффекта Джоуля. Рассеиваемое резистивное тепло поддерживает в расплавленном состоянии стекло и расплавляет поступающий материал. Такие расплавители изготавливаются из огнеупорных и стойких к коррозии материалов. Подводимая мощность обеспечивается четырьмя парами пластинчатых электродов Inconel-690, помещаемых в расплавитель на двух уровнях с температурой 1150–1200 °С (см. рисунок).

Выгрузка стекла осуществляется через выпускное отверстие на дне расплавителя или с помощью воздушного барботажа, поддерживающего слив.

*1 кюри = 37 гига-беккерелей.





На рисунке показаны процедуры обращения с канистрами для стекла, выполняемые на установках по остекловыванию на основе процессов АVM и Памела. После заполнения канистры стеклом она становится объектом ряда операций, имеющих целью подготовить ее для временного хранения или окончательного захоронения. Основными операциями являются регулируемое охлаждение заполненной канистры, заваривание крышки, проверка на утечку и очистка.

Для повышения температуры стекла в выходном канале донного стока и обеспечения движения потока стекла устанавливаются два нагревательных контура. Для прекращения потока стекла достаточно отключить один из них. Такая же система нагрева применяется при заполнении канистр расплавленным стеклом через переливное устройство. До сброса в окружающую среду отходящие газы керамического расплавителя очищаются в многостадийной очистной системе для таких газов. Системы очистки отходящих газов в различных процессах остекловывания в основном аналогичны (см схему процесса Памела).

Чтобы избежать трещин в стекле и ухудшения качества получаемого продукта, требуется контроль за охлаждением. Проверка на утечку и очистка предотвращают загрязнение от установки по остекловыванию.

С момента пуска установки Памела в эксплуатацию в октябре 1985 г. и по май 1988 г. остекловано около 265 куб. метров растворов высокоактивных отходов, занявших 1381 канистру с 265 тоннами боросиликатного стекла и девятью мегакюри активностью.

Заключительные замечания

За истекшее десятилетие в разработке методов остекловывания высокоактивных жидких отходов достигнут большой прогресс.

Безопасным и успешным показывает себя в течение ряда лет французский процесс AVM в Маркуле. На мысе Аг построены еще две установки на основе того же процесса (вращающийся кальцинатор-металлический расплавитель). Одна из этих установок начала работать в 1989 г., другая должна вступить в строй в 1990 г. Аналогичная установка строится в Селлафилде, Великобритания, и она также будет введена в эксплуатацию в 1990 г.

Разработанный в 70-х годах процесс с керамическим расплавителем принят несколькими странами с различной степенью его применения. Федеративная Республика Германия успешно эксплуатирует процесс Памела на заводе по переработке „Еврокемик“ в Бельгии. В период 1986–1988 гг. СССР пользовался установкой по остекловыванию, тоже работавшей по технологии с керамическим расплавителем. В настоящее время такие установки строятся в Саванна Ривер и Вест Велли в Соединенных Штатах Америки и в Токай Сайт в Японии. В стадии разработки находятся установки для Хенфорда, США, и для Японии. Это – крупные промышленные установки, отвечающие всем индустриальным и ядерным критериям.

В последующие годы процесс с керамическими расплавителями станет таким же безопасным и эффективным, как и процесс AVM. Получаемое в результате обоих процессов высокоактивное стекло должно отвечать тем требованиям к их захоронению, которые установили компетентные органы для хранилищ ВАО.

