



19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

11 Número de publicación: **2 274 982**

51 Int. Cl.:
G21F 9/30 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Número de solicitud europea: **02749033 .3**

86 Fecha de presentación : **22.07.2002**

87 Número de publicación de la solicitud: **1412950**

87 Fecha de publicación de la solicitud: **28.04.2004**

54 Título: **Encapsulado de residuos.**

30 Prioridad: **03.08.2001 GB 0118945**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:
01.06.2007

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:
01.06.2007

73 Titular/es: **British Nuclear Fuels plc.
Risley
Warrington, Cheshire WA3 6AS, GB**

72 Inventor/es: **Maddrell, Ewan R.**

74 Agente: **Durán Moya, Luis Alfonso**

ES 2 274 982 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Encapsulado de residuos.

La presente invención se refiere a un medio de inmovilización para el encapsulado de residuos radiactivos.

Las centrales nucleares generan numerosos tipos de residuos radiactivos que deben encapsularse para largos periodos de almacenamiento. Un esquema actual del tratamiento de los licores de residuos radiactivos, por ejemplo los que se presentan en la descontaminación de las centrales mediante rociado con ácido nítrico, comprende la precipitación de los residuos en forma floculenta agregando hidróxido sódico, la separación del flóculo precipitado utilizando la ultrafiltración y el encapsulado del flóculo en cemento. Sin embargo, los residuos en forma cementada pueden no ser tan resistentes al lixiviado, y su contenido de residuos puede no ser tan grande como se desea.

Por consiguiente un objetivo de la invención es dar a conocer una forma de residuos que sea más resistente y/o que tenga un mayor contenido de residuos que las formas actuales de residuos.

De acuerdo con el primer aspecto de la presente invención se da a conocer un medio de inmovilización de los residuos que tiene una matriz de vidrio basada en silicato de sodio, que contiene los residuos radiactivos en el que los residuos comprenden uno o más componentes metálicos inertes y uno o más productos de fisión.

El término componentes metálicos inertes se utiliza aquí para indicar los componentes metálicos no derivados del combustible nuclear irradiado, es decir, no se incluyen los productos de fisión o actínidos. Los componentes metálicos inertes pueden ser componentes metálicos derivados de la central. Los componentes metálicos inertes pueden ser, por ejemplo, originados a partir de la disolución del acero inoxidable en la central como resultado de los tratamientos mediante rociado con ácido nítrico.

Por consiguiente la invención es efectiva para el tratamiento de los flujos de residuos generados en la descontaminación de las centrales, ricos en componentes inertes metálicos.

Como mínimo una parte de los componentes inertes metálicos se disuelven en la matriz de vidrio y se aumenta su durabilidad. Estos componentes inertes metálicos se pueden disolver en la matriz de vidrio hasta sus límites de solubilidad impartiendo durabilidad al vidrio.

Como consecuencia, el medio de inmovilización de los residuos es altamente duradero y resistente al lixiviado, y es adecuado para el almacenamiento de residuos radiactivos durante largos períodos. Se ha descubierto que la resistencia al lixiviado del medio de inmovilización de los residuos según la presente invención es mejor que la de los vidrios de borosilicato que se utilizan actualmente.

Los componentes inertes metálicos preferentemente comprenden hierro, níquel y cromo. Los componentes inertes metálicos también pueden comprender otros metales, por ejemplo cinc.

Los residuos también pueden comprender uno o más fosfatos. Los residuos también pueden comprender otros aniones; por ejemplo puede contener uno o más sulfatos.

Normalmente, los residuos comprenden hasta un 10% de productos de fisión y como mínimo un 90%

de componentes inertes metálicos, porcentajes calculados utilizando las masas de los óxidos de los productos de fisión y de los componentes inertes metálicos.

Típicamente, la cantidad de productos de fisión es muy inferior del 10%.

Preferentemente, como mínimo el 90% del residuo, calculado tal como se ha indicado anteriormente, comprende hierro, níquel, cromo, y, opcionalmente, cinc.

Además, preferentemente como mínimo el 90% del residuo, calculado como se ha indicado anteriormente, comprende hierro, níquel y cromo.

El medio de inmovilización de los residuos tiene un contenido de residuos de aproximadamente el 90% del peso. Preferentemente, el contenido de los residuos varía entre el 80% y el 90% del peso. El contenido de residuos se define como el cociente entre la masa de residuos y la masa total del medio de inmovilización de los residuos, que es igual que el cociente entre la masa de residuos y la suma de la masa de residuos y la masa de aditivos. De esta forma, maximizando el contenido de residuos se minimiza el volumen final de residuos.

La matriz de vidrio de silicato de sodio actúa eficazmente como receptor de los productos de fisión y los elementos actínidos que están presentes en el residuo. Por ejemplo, el cesio, bario y estroncio pueden disolverse en el vidrio.

La relación de peso de sílice a sosa en el vidrio está comprendida, preferiblemente, entre 4,5-2,5 : 1. Más preferentemente, la relación de peso es de aproximadamente 4:1.

Si en los residuos está presente un alto nivel de fosfato, se debe incorporar en el medio inmovilizante un elemento de tierras raras para precipitar monacita. Los elementos de tierras raras típicos que pueden utilizarse incluyen el lantano, neodimio o cerio. Es preferente el lantano. La función de la fase monacita es inmovilizar el fosfato que podría, de otra manera, causar la separación de la fase en el vidrio de silicato de sodio.

El medio inmovilizante puede utilizar sodio, que puede estar en los residuos para proporcionar como mínimo algo del sodio utilizado en la formación del vidrio de silicato de sodio.

De acuerdo al segundo aspecto de la presente invención se da a conocer un método de preparación del medio de inmovilización de los residuos según el primer aspecto de la invención, incluyendo el método las etapas de:

- formación de una mezcla comprendiendo los residuos radiactivos, un precursor conteniendo sodio, y sílice;
- secado de la mezcla;
- calcinamiento de la mezcla seca; y
- prensado y sinterizado de la mezcla calcinada.

Las cantidades de sodio que contienen el precursor y el sílice se ajustan para que se forme un vidrio de silicato de sodio en el medio final de inmovilización de los residuos.

Los residuos radiactivos se encuentran normalmente en forma de un licor residual.

Los licores de residuos pueden contener un com-

ponente que contenga sodio. Por tanto, los licores de residuos pueden proporcionar como mínimo algo de sodio para formar la matriz de vidrio de silicato de sodio.

El precursor que contiene sodio puede ser óxido de sodio (Na_2O) o, preferiblemente, silicato de sodio.

La composición preferente del precursor, que se añade a los residuos para formar la mezcla, comprende una frita de vidrio de aproximadamente el 20% en peso de sosa (Na_2O) y aproximadamente el 80% en peso de sílice (SiO_2).

En la mezcla, puede incluirse un elemento de tierras raras, por ejemplo lantano, para facilitar la formación de la monocita cuando hay fosfato en el residuo. El elemento de tierras raras puede añadirse en forma de óxido, por ejemplo La_2O_3 .

Muchos de los componentes de los residuos están presentes en el mismo en forma de nitratos, como consecuencia de la utilización de ácido nítrico en las centrales nucleares.

Preferentemente, dichos licores de residuos, se desnitruran antes de la formación de la mezcla o durante la misma. Esto se hace además mediante un proceso sencillo. Si el licor no es desnitrurada, puede formarse en la mezcla una pasta o lodo no deseados que pueden dificultar la efectividad del secado.

La desnitruración puede realizarse de una o varias formas. Un método preferente de desnitruración comprende la reacción de los licores de residuos con formaldehído. Después de la desnitruración, el licor permanece sustancialmente en fase líquida.

El mezclado de los componentes en la mezcla se efectúa normalmente por agitación. La agitación asegura la homogeneidad de la mezcla. Pueden utilizarse otros métodos para homogeneizar la mezcla.

La mezcla se seca después de haberse formado y

mezclado suficientemente. El secado debe llevarse a cabo mediante uno de los varios métodos conocidos por los especialistas en la materia.

Después de que la mezcla se haya secado, se calienta para formar polvo. La calcinación debe llevarse a cabo en una atmósfera neutra (por ejemplo con gas N_2) o en una atmósfera reductora. La atmósfera reductora puede comprender una mezcla de Ar/H_2 o una mezcla de N_2/H_2 . El hidrógeno se diluye normalmente al 10% o menos en el gas inerte. Por ejemplo, se puede utilizar una mezcla de un 5% de H_2 en N_2 .

La calcinación puede llevarse a cabo entre 650-800°C.

Normalmente, puede realizarse aproximadamente a 750°C.

Opcionalmente, el polvo calcinado, especialmente el polvo calcinado en una mezcla de N_2/H_2 , puede mezclarse con un material absorbente de oxígeno antes de la compactación y sinterización. El absorbente de oxígeno puede ser un metal. Por ejemplo, el titanio metálico es un absorbente efectivo.

Cuando se utiliza un absorbente metálico, por ejemplo titanio, puede estar presente en el polvo en una cantidad de, por ejemplo, alrededor del 20% en peso.

Finalmente, el polvo calcinado se compacta y sinteriza para producir el medio inmovilizante final adecuado para un almacenamiento de larga duración.

La compactación y sinterización pueden llevarse a cabo de acuerdo a métodos conocidos tales como la presión uniaxial en caliente o la presión isotática en caliente (HIP). El método HIP es el preferido. Preferiblemente la temperatura para el HIP es 1000-1400°C. Más preferentemente la temperatura para HIP es 1100-1300°C.

REIVINDICACIONES

1. Medio para inmovilizar residuos que tiene una matriz de vidrio con base de silicato de sodio que contiene residuos radiactivos, en el que los residuos comprenden un primer componente que contiene metales incluyendo hierro, níquel y cromo, y un segundo componente que contiene uno o más productos de fisión.

2. Medio para inmovilizar residuos, según la reivindicación 1, en el que como mínimo una parte del primer componente se disuelve en la matriz de vidrio.

3. Medio para inmovilizar residuos, según la reivindicación 2, en el que los metales del primer componente se disuelven en la matriz de vidrio hasta sus límites de solubilidad.

4. Medio para inmovilizar residuos, según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, en el que los residuos tienen un contenido de hasta un 10% del segundo componente y como mínimo un 90% del primer componente calculado utilizando las masas de los óxidos de los productos de fisión y de los metales del primer componente.

5. Medio para inmovilizar residuos, según la reivindicación 4, en el que como mínimo un 90% de los residuos comprenden hierro, níquel, cromo y, opcionalmente, cinc.

6. Medio para inmovilizar residuos, según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, en el que el medio inmovilizante de residuos tiene un contenido de residuos de aproximadamente hasta un 90% del peso, y preferiblemente entre un 80% y 90% del peso.

7. Medio para inmovilizar residuos, según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, en el que la relación de pesos de sílice a sosa en el vidrio es de aproximadamente 4,5-2,5 : 1.

8. Medio para inmovilizar residuos, según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, en el que hay una fase monacita.

9. Método de preparación del medio para inmovilizar residuos, según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, incluyendo dicho método las etapas de:

- formación de una mezcla que comprende el residuos radiactivos, un precursor que contiene sodio, y sílice;

- secado de la mezcla;

- calcinamiento de la mezcla seca; y

- prensado y sinterizado de la mezcla calcinada.

10. Método de tratamiento de los flujos de residuos generados en la descontaminación de centrales, que contienen hierro, níquel y cromo y uno o más productos de fisión, comprendiendo dicho método las etapas de:

- formación de una mezcla que comprende los residuos radiactivos, un precursor que contiene sodio, y sílice;

- secado de la mezcla;

- calcinamiento de la mezcla seca; y

- prensado y sinterizado de la mezcla calcinada para producir una matriz de vidrio de silicato de sodio.

11. Método, según cualquiera de las reivindicaciones 9 ó 10, en el que el sodio contenido en el precursor es óxido de sodio (Na_2O) o silicato de sodio.

12. Método, según cualquiera de las reivindicaciones 9 a 11, en el que la mezcla se forma entre los residuos y un compuesto que comprende una frita de vidrio de aproximadamente un 20% en peso de sosa (Na_2O) y aproximadamente un 80% de sílice (SiO_2), y en el que, opcionalmente, se añade en la mezcla un elemento de tierras raras.

13. Método, según cualquiera de las reivindicaciones 9 a 12, en el que los residuos son desnitrurados antes de la formación de la mezcla o durante la formación de la mezcla.

14. Método, según cualquiera de las reivindicaciones 9 a 13, en el que la calcinación se realiza en una atmósfera neutra o reductora.

15. Método, según cualquiera de las reivindicaciones 9 a 14, en el que la calcinación se realiza entre 650-800°C, preferiblemente alrededor de 750°C.

16. Método, según cualquiera de las reivindicaciones 9 a 15, en el que la compactación y la sinterización se realiza mediante prensada uniaxial en caliente o prensada isostática en caliente.