



GERENCIA DE PROTECCION RADIOLOGICA Y SEGURIDAD

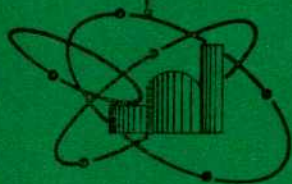
C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº	AÑO
1	1987

REPO-30

CNEA-NT 26/87

INMOVILIZACION DE RESIDUOS DE
ALTA ACTIVIDAD EN VIDRIOS
SINTERIZADOS:
I) PROCESO DE Prensado en caliente

Russo, D.O.; Messi de Bernasconi, N.;
Audero, M.A.



REPUBLICA ARGENTINA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
Dependiente de la Presidencia de la Nación
GERENCIA DE PROTECCION RADIOLOGICA Y SEGURIDAD

REPO-30

CNEA-NT 26/87

INMOVILIZACION DE RESIDUOS DE
ALTA ACTIVIDAD EN VIDRIOS
SINTERIZADOS:
1) PROCESO DE PENSADO EN CALIENTE

Russo, D.O.; Messi de Bernasconi, N.;
Audero, M.A.

Este trabajo fue presentado en la " XIII Reunión Científica de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear", realizado en Buenos Aires, del 11 al 15 de noviembre de 1985.

BUENOS AIRES
1987

INIS CLASSIFICATION AND KEYWORDS

E52.00

BOROSILICATE GLASS
HIGH-LEVEL RADIOACTIVE WASTES
HOT PRESSING
RADIOACTIVE WASTE DISPOSAL
SINTERED MATERIALS
VITRIFICATION

INMOVILIZACION DE RESIDUOS DE ALTA ACTIVIDAD EN VIDRIOS SINTERIZADOS 1) PROCESO DE PRENSADO EN CALIENTE

D.O. Russo; N. Messi de Bernasconi; M.A. Audero

1. INTRODUCCION

De los diversos materiales que pueden ser usados para inmovilizar residuos nucleares de alta actividad, los vidrios borosilicatos son los que más se han estudiado y cuyo desarrollo se encuentra más avanzado. Usualmente, la incorporación de los residuos calcinados al vidrio se realiza mediante el mezclado en estado líquido a temperaturas entre 1000°C y 1400°C, dependiendo de la composición del vidrio.

Como ruta alternativa a la de vidrios fundidos, en nuestro laboratorio se está ensayando el método de sinterización de polvo de vidrio mezclado con los residuos calcinados (simulados). Este proceso presenta, en principio, la ventaja importante que se realiza a menores temperaturas (600°C aproximadamente), lo que disminuye las exigencias sobre los equipos de proceso y conduce, entre otras cosas, a minimizar la volatilización de componentes activos.

Este desarrollo se está realizando en forma compartida entre el CENTRO ATOMICO BARILOCHE y el CENTRO NUCLEAR DE KARLSRUHE, dentro del Convenio de Cooperación Argentino-Alemán.

En este trabajo se presentan los avances logrados desde el trabajo preliminar presentado en la Reunión de la AATN de diciembre de 1984 [1]. Se continuó con la línea de prensado en caliente (sinterizado bajo presión) utilizando el polvo de vidrio VG-98/12, que no presentaba problemas de devitrificación, y cuya composición se muestra en la Tabla 1. Se utilizó una formulación de residuos simulados más completa que la anterior (ver tabla 1), y se ha modificado el método de incorporación. Se han optimizado la temperatura de calcinación de residuos y las variables del proceso, obteniéndose mejores características del producto final. Se han ensayado dos variantes del proceso de prensado en caliente:

- 1) Dentro del recipiente definitivo (in-can-hot-pressing).
- 2) En matriz de grafito, con extracción de la pastilla sinterizada.

2. PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

2.1. ACONDICIONAMIENTO E INCORPORACION DE LOS RESIDUOS SIMULADOS:

Los residuos simulados (RSSs en lo sucesivo), se prepararon a partir de una solución denitrada mediante el agregado de formaldehído, con la composición adecuada de elementos, según se ve en la Tabla 1. Esta solución fue calcinada a 700°C, obteniéndose un polvo que, luego de molido en un molino de anillos o en mortero (molienda manual), fue incorporado en una proporción de 10 % en peso de óxidos al material de matriz. Esta incorporación se realizó mediante un mezclado en húmedo con agua destilada, secándose la suspensión con agitación continua, a temperaturas entre 90°C y 100°C, aproximadamente.

2.2. OBTENCION DE LOS COMPACTOS SINTERIZADOS

- a) Ensayos en matriz metálica: Se utilizó un caño de hierro de 12,3 mm de diámetro, cerrado en el extremo inferior y recubierto en su interior con pintura de grafito, lo mismo que el punzón (construido en acero inoxidable). De este modo se consiguió evitar la adherencia del vidrio a las paredes de la matriz, que ocasiona la aparición de tensiones internas en el material, y producen fisuras en el mismo. Se realizaron ensayos a diferentes temperaturas entre 590°C y 680°C, utilizando presiones de 1 a 1,6 MP a (10,2 a 16,3 Kg. cm⁻²).
- b) Ensayos en matriz de grafito: Se utilizó una matriz de grafito con punzones del mismo material, de 9.8 mm de diámetro. Debido a que la operación se realizaba en aire, se produjo un deterioro prematuro, tanto de la matriz como de los punzones, por oxidación. Por este motivo se suspendieron los ensayos con este método hasta tanto se implemente un sistema de protección con circulación de gas inerte.

2.3. ANALISIS DE LAS MUESTRAS

A las probetas obtenidas se les midió la densidad, calculándose la porosidad resultante. Algunas de ellas fueron cortadas en rodajas a fin de realizar ensayos de lixiviación en agua. Estos se llevaron a cabo según se describió en un trabajo anterior [1]. También se realizaron ceramografías de distintas probetas. Se hicieron observaciones mediante microscopia óptica y electrónica de las muestras pulidas, a fin de observar la distribución de los residuos dentro del compacto.

3. RESULTADOS Y DISCUSION

3.1. PRENSADO EN CALIENTE DENTRO DEL RECIPIENTE

Los resultados obtenidos se resumen en la figura 1, donde se observa la variación de la densidad con la temperatura. Se puede apreciar que existe un valor óptimo de esta (590°C), para el cual se alcanza la máxima densidad. A temperaturas mayores aquella disminuye. Este efecto ya fue observado al estudiar la cinética de sinterizado del material de matriz (trabajo II, ref. [2]; en este caso se repite el comportamiento de la porosidad, es decir que la temperatura de sinterizado y la porosidad cerrada aumenta. Por lo tanto la explicación es la misma que en el trabajo mencionado: inhibición de la densificación por la atmósfera atrapada en la porosidad cerrada. El valor máximo obtenido es de (2,63 +/- 0,02) g/cm³, lo que equivale a (95,6 % DT). La dependencia de la densidad con el tiempo de permanencia a la temperatura de sinterizado, puede observarse en la figura 2. De allí se infiere que el tiempo óptimo es de alrededor de 180 min.

3.2. PRENSADO EN CALIENTE EN MATRIZ DE GRAFITO

Estos resultados están incluidos en la figura 1. En este caso, como ya hemos dicho, se realizaron pocos ensayos, sin embargo se han obtenido resultados concordantes con los anteriores.

3.3. MICROESTRUCTURA

La Figura 3 muestra una microfotografía de una pastilla típica, en ella se observa que los residuos simulados no se disuelven en la matriz vítrea, sino que quedan dispersos en la misma. Esto fue confirmado mediante microanálisis (EDAX) en microscopio electrónico de barrido.

3.4. RESISTENCIA A LA LIXIVIACIÓN EN AGUA DESTILADA

Las velocidades de lixiviación resultaron independientes de la densidad, en el rango de 91 a 95 % DT, y del tipo de matriz utilizado. Se encontró que para Na la velocidad de lixiviación es de $2 \times 10^{-4} \text{ g.cm}^{-2}.\text{d}^{-1}$. Es decir que no hay diferencia en la velocidad de disolución de estos elementos. También se analizaron Ca y Si, para los que se obtuvieron velocidades de disolución algo menores ($2 \text{ a } 6 \times 10^{-5} \text{ g.cm}^{-2}.\text{d}^{-1}$). Estos valores son comparables con los de la literatura existente para este tipo de vidrio (fundido), que oscilan entre 10^{-4} y $10^{-5} \text{ g.cm}^{-2}.\text{d}^{-1}$. Esto nos indica que, a pesar de que los residuos no se disuelven en la matriz, ello no incide en la velocidad de lixiviación.

4. AGRADECIMIENTOS

Al Laboratorio de Química Analítica de INVAP S.E. y, en particular, a la Lic. Isabel Gómez Constenla de Olcese por el análisis químico de los lixiviados.

Al Dr. M. Ipohorski Ilenkiewicz, del Departamento de materiales de la CNEA, por la observación y microanálisis de las muestras mediante microscopía electrónica de barrido.

TABLA 1

	OXIDO	CONC. PARCIAL	CONC. FINAL - 10% % PESO	IDEM	CONC. PARCIAL % PESO	CONC. FINAL - 10% % PESO
M	SiO ₂	56.7	51.0	Si	23.8	21.4
A	TiO ₂	4.6	4.1	Ti	2.5	2.3
I	Al ₂ O ₃	2.6	2.3	Al	1.2	1.1
R	B ₂ O ₃	12.6	11.3	R	3.5	3.2
I	MgO	2.1	1.9	Mg	1.1.	1.0
Z	CaO	4.1	3.7	Ca	2.6	1.3
	Na ₂ O	17.5	15.8	Ma	11.7	10.3
R						
E						
S	Rb ₂ O	0.9	0.09	Rb	0.9	0.09
I	SrO	2.4	0.24	SR	2.1	0.21
D	Y ₂ O ₃	1.4	0.14	Y	1.2	0.12
U	ZrO ₂	18.6	1.86	Zr	13.7	1.37
O	MoO ₃	18.7	1.87	Mo	12.4	1.24
S	TeO ₂	2.0	0.20	Te	1.6	0.16
	Cs ₂ O	6.7	0.67	Cs	6.3	0.63
S	BaO	5.2	0.52	Ba	4.7	0.47
I	La ₂ O ₃	4.0	0.40	La	3.4	0.34
M	CeO ₂	13.3	1.33	Ce	10.9	1.09
U	Nd ₂ O ₃	13.0	1.30	Nd	11.1	1.11
L	CrO ₃	2.0	0.20	Cr	1.0	0.10
A	Pr ₆ O ₁₁	3.7	0.37	Pr	3.3	0.33
D	Sm ₂ O ₃	2.8	0.28	Sm	2.4	0.24
O	Fe ₂ O ₃	5.3	0.53	Fe	3.7	0.37
S						

REFERENCIAS

- (1) Russo, D.O.; Messi de Bernasconi, N. y Audero, M.A. "Fijación de residuos de alta actividad en matriz vitrea sinterizada. "XII Reunión Científica, III Encuentro Latinoamericano de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear. Buenos Aires, Argentina, dec. 3-7, 1984. REPO-25.
- (2) Bevilacqua, A.M. et al. "Inmovilización de residuos de alta actividad en vidrios sinterizados: II) Proceso de prensado a temperatura ambiente". XII Reunión Científica, III Encuentro Latinoamericano de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear. Buenos Aires, Argentina, dec. 3-7, 1984.

LISTA DE FIGURAS

FIG.1. Densidad vs. temperatura de sinterizado

FIG.2. Densidad vs. tiempo de sinterizado

FIG.3 Micrografía de una pastilla típica. Se observa la dispersión de las partículas de tejidos simulados.

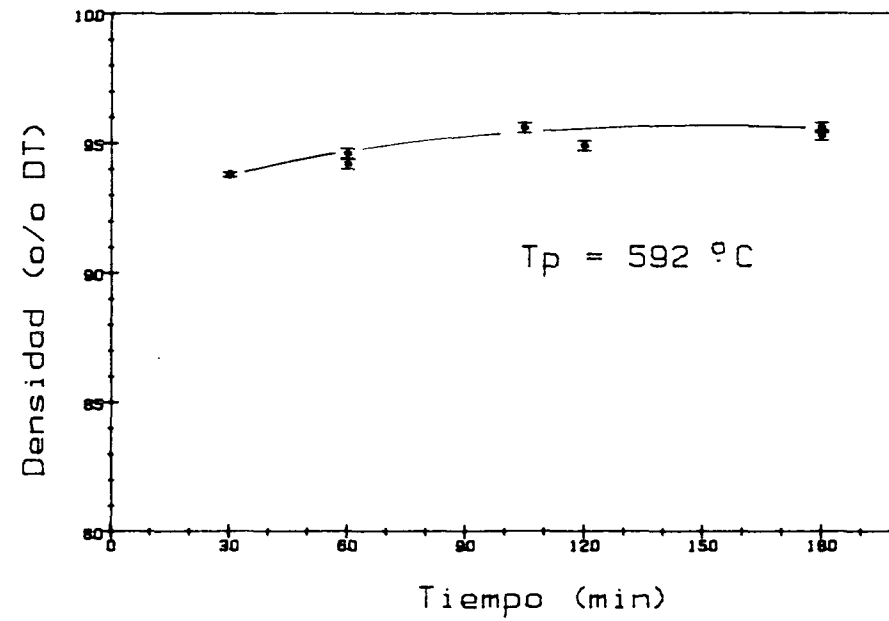


Fig. 2: Densidad vs. tiempo de sinterizado

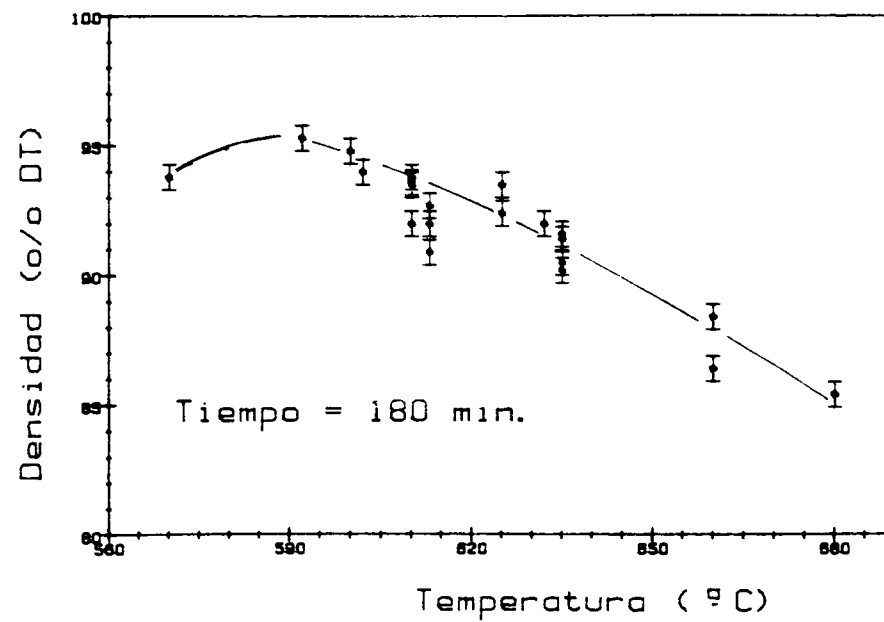


Fig. 1: Densidad vs. temperatura de sinterizado

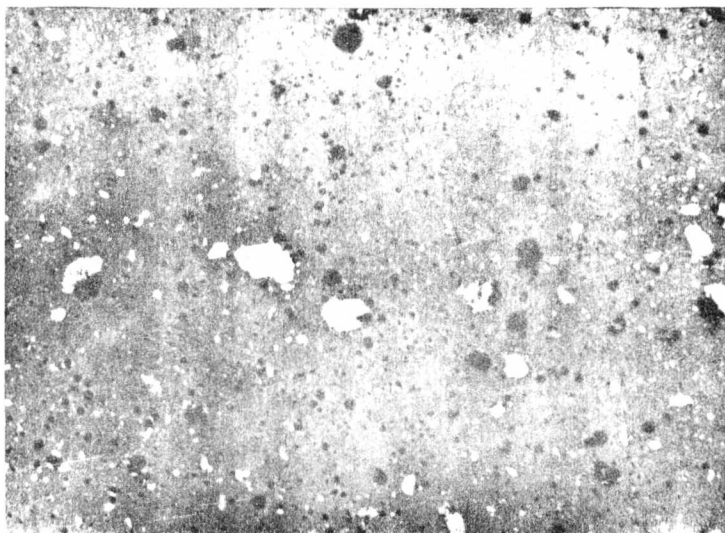


FIGURA 3: Micrografía de una pastilla típica. Se observa la dispersión de las partículas de tejidos simulados.

- REPO-01 Beninson, D.; Migliori de Beninson, A.
"Radiological impact of radioactive waste management"
- REPO-02 Lucero Michaut, H.
"Aplicación de la geoestadística a la resolución de problemas estructurales en macizos rocosos homogéneos"
- REPO-03 Ventura, M.; Ferreri, J.C.
"Evolución temporal de un macizo granítico bajo cargas térmicas generadas por productos de fisión"
- REPO-04 Ventura, M.; Ferreri, J.C.
"Evolución temporal de un macizo granítico bajo cargas térmicas generadas por productos de fisión (estudio paramétrico)"
- REPO-05 Beninson, D.
"Radioactive emissions and radiation exposures resulting from nuclear power production"
- REPO-06 Beninson, D.; Lindell, B.
"Application of ICRP recommendations to radioactive waste isolation"
- REPO-07 Migliori de Beninson, A.; Cancio, D.
"Impacto radiológico de la gestión de residuos radiactivos del Programa Nuclear Argentino"
- REPO-08 Migliori de Beninson, A.; Palacios, E.
"Política en materia de gestión de desechos y su aplicación en Argentina"
- REPO-09 Palacios, E.; et al.
"Bases conceptuales para la construcción de un repositorio en la Argentina".
- REPO-10 Palacios, E.; et al.
"Estudios para la selección del emplazamiento de un repositorio en Argentina"
- REPO-11 Matar, J.A.; Girardi, J.P.; Matar de Sarquís, M.
"Aplicación de técnicas geoestadísticas al estudio de una formación granítica destinada a la construcción de un repositorio"
- REPO-12 Ferreri, J.C.; VENTURA, M.
"Numerical aspects of the study of the regional thermal impact of a radioactive waste repository"
- REPO-13 Ferreri, J.C.; Caballero, C.H.
"Difusión de calor a partir de una fuente plana rectangular finita"
- REPO-14 Beninson, D.; González, A.J.
"Radiological protection criteria for radioactive waste repositories"
- REPO-15 Palacios, E.; Ferreri, J.C.
"Marco conceptual para el desarrollo de los modelos de predicción de los efectos locales de un repositorio de residuos radiactivos de alta actividad"

- REPO-16 Ferreri, J.C.; Ventura, M.
"Aspectos numéricos del modelado de los efectos locales de un repositorio de residuos radiactivos de alta actividad"
- REPO-17 Beninson, D.
"Criterios de radioprotección en el caso de eventos disruptivos probabilísticos"
- REPO-18 Ferreri, J.C.; Grandi, G.
"Models for the study of the local effects produced by a high-level radioactive waste repository"
- REPO-19 Beninson, D.J.; et al.
"The argentine radioactive waste repository: basic criteria, preliminary siting and design conceptual basis"
- REPO-20 De Micheli, S.M. de; et al.
"Uso del plomo en contenedores de residuos radiactivos de alta actividad: estudio de resistencia a la corrosión"
- REPO-21 Peruca, J.C.; et al.
"Investigaciones geológicas e hidrológicas con procesamiento geoestadístico en la preselección del emplazamiento de un repositorio subterráneo para los residuos radiactivos de alta actividad del Programa Nuclear Argentino"
- REPO-22 Varani, J.L.; et al.
"Analysis of different vitreous matrices of the borosilicatype"
- REPO-23 Varani, J.L.; Petraitis, E.J.; Vazquez, A.
"Vitrificación de residuos radiactivos líquidos de alta actividad"
- REPO-24 Varani, J.L.; Petraitis, E.J.; Pasquali, R.C.
"Evaluación de matrices vitreas para inclusión de residuos radiactivos"
- REPO-25 Russo, D.; Messi de Bernasconi, N.; Audero, M.
"Fijación de residuos de alta actividad en matriz vítrea sinterizada"
- REPO-26 Wetten, C.; Grassi, J.I.
"Hydrogeological features of a rocky massif to be used as a nuclear repository"
- REPO-27 Girardi, J.P.; Matar de Sarquís, M.
"Selection of a minimum fracturation area by means of geostatistic for emplacement of subsurface civil works of a nuclear repository in crystalline rock"
- REPO-28 Matar, J.A.; et al.
"Geostatistical investigations of rock masses. The Sierra del Medio case (Argentina)"
- REPO-29 Perucca, J.C.; et al.
"Geological and geophysical investigations at Sierra del Medio Massif - Argentina"

- REPO-30 Russo, D.O.; Messi de Bernasconi, N.; Audero, M.A.
"Inmovilización de residuos de alta actividad en vidrios sinterizados: 1) Proceso de prensado en caliente"
- REPO-31 Bevilacqua, A.M.; et al.
"Inmovilización de residuos de alta actividad en vidrios sinterizados: II) Proceso de prensado a temperatura ambiente"
- REPO-32 Ventura, M.
"Predicción de la migración de radionucleídos en un medio rocoso. Parte I"
- REPO-33 Ventura, M.
"Predicción en la migración de radionucleídos en un medio rocoso. Parte II-Caso bidimensional"
- REPO-34 Palacios, E.
"Política argentina para la eliminación de residuos radiactivos"
- REPO-35 Pahisa, M.; et al.
"Primeros ensayos vinculados a la vitrificación de residuos líquidos de alta actividad".

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
Gerencia Protección Radiológica y Seguridad

	Domicilio Postal Postal Address	Télex	Facsimil	Teléfono
Sede Central (Main Headquarters)	Av. Libertador 8250 1429 - Euenos Aires Argentina	21388 PREAT AR	701 - 2431 (int. 248) (ext. 248)	701 - 2431
Centro Atómico Ezeiza Ezeiza Atomic Center	Casilla de Correo 40 1802 - Aeropuerto Ezeiza Argentina	23462 CAE PRS AR	620 - 0480	620 - 0160