



VITRIFICACION DE RESIDUOS MIXTOS MEDIANTE PLASMA TRANSFERIDO E INDUCCION ELECTROMAGNETICA

Joel Osvaldo Pacheco Sotelo, Marquidia Pacheco Pacheco, Laura Verónica Díaz Archundia,
Fabiola Monroy Guzmán, Miguel Emeterio Hernández,
Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares, Km 36.5, Carr. México-Toluca, Edo. de México,
Universidad Autónoma de Querétaro, CEACA, Ave. Hidalgo S/N, Cerro de las Campanas, Qro. Querétaro

Resumen

Para asegurar una adecuada disposición final de desechos radiactivos de nivel bajo e intermedio se propone un sistema híbrido que combina un plasma de arco eléctrico con un sistema de inducción electromagnética de alta frecuencia para la fundición homogénea y su posterior solidificación siguiendo un perfil de enfriamiento adecuado. En este trabajo se describe su principio de operación y principales características, se presenta un análisis de la eficiencia en la transferencia de energía y del proceso de fundición así como el acoplamiento del material a tratar. Los beneficios obtenidos por esta técnica híbrida, son múltiples dado que se puede tratar una variada gama de residuos radiactivos de nivel bajo e intermedio asegurando una disposición estable y de larga duración con una tecnología completamente a nuestro alcance.

Palabras clave: Plasma térmico, inducción electromagnética, vitrificación

1. Introducción

La central nucleoelectrónica de Laguna Verde (CNLV), situada en Veracruz, México, genera 1.22 GWe, utilizando dos reactores nucleares, los cuales contribuyen con el 7% de la generación eléctrica en el país. La Unidad uno, se encuentra en operación desde 1990 y la Unidad dos, desde 1995. La CNLV cuenta con una unidad de almacenamiento de residuos radiactivos, que son generados durante diferentes actividades. Actualmente los residuos se mezclan con asfalto, se compactan y se almacenan en bidones de 200 L.

La CNLV aprovecha un recurso energético alternativo y diversifica la fuente de energía. Dentro del programa de Seguridad Radiológica, se contempla la aplicación de tecnologías de tratamiento, estabilización y destrucción de residuos radiactivos de bajo y mediano nivel por lo que en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (ININ) se realizan estudios de degradación de desechos radiactivos de nivel bajo e intermedio (DRNBI) para su disposición final mediante un sistema híbrido que combina una primera etapa mediante el tratamiento de un arco de plasma el cual inicia la fundición de los DRNBI mezclados con el material vítreo. La segunda etapa se lleva a cabo para sostener y homogeneizar el material ya fundido mediante inducción electromagnética de alta frecuencia y para controlar su solidificación mediante un perfil de enfriamiento adecuado.

La primera técnica usada para la fundición de vidrio fue mediante hornos de resistencia eléctrica [1], cuya energía por convección y radiación es transferida al vidrio, sin embargo esta técnica requiere crisoles de gran volumen para colocar resistencias que calientan por radiación infrarroja, por lo que la velocidad de fundición es lenta debido a los bajos coeficientes de transferencia de calor. La falta de agitación térmica durante la fundición dificulta su homogenización. Adicionalmente se tienen problemas



de interacción entre el vidrio y los refractarios. Para superar las deficiencias anteriores se puede recurrir al calentamiento dieléctrico con microondas; pero debido a su baja eficiencia, a la complejidad de su generación y adaptación, es conveniente proponer procesos alternativos como el sistema híbrido que a continuación se describe.

2. Plasma Transferido

La tecnología de plasma térmico proporciona una solución al almacenamiento definitivo de (DRNBI), por tal motivo algunos países ya han incorporado esta tecnología para tal efecto [2-7]. El plasma está constituido por una mezcla de electrones, iones y especies neutras que componen un medio parcial o totalmente ionizado y se caracteriza por tener una densidad energética alta y porque la temperatura de las partículas pesadas (iones) T_g y la temperatura de los electrones T_e son prácticamente iguales. Además, tiene una densidad electrónica alta (10^{13} a 10^{16} cm^{-3}) y las energías de los electrones están en el orden de 1 a 2 eV. La densidad de energía del plasma (10^5 W/cm^3) es muy superior a la flama por combustión.

Como la temperatura de operación de un Plasma Transferido esta en el intervalo de 4000 a 7000°C, su capacidad de transferencia de energía se multiplica enormemente en función del gas plasmágeno utilizado, además, es una fuente rica en radiación, con un espectro muy amplio (incluye radiación ultravioleta e infrarroja). Al analizar el calor generado por radiación, se observa que es función de la temperatura a la cuarta potencia, lo que significa que arriba de 1,700°C (que corresponde a la temperatura máxima de la flama), el calor generado por radiación comienza a ser significativo y la transferencia de calor es mucho más rápida que por los medios convencionales. La alta densidad de energía y su reducida inercia térmica se utilizan para el “rompimiento” de enlaces de las moléculas de los compuestos que forman los residuos peligrosos, dando como resultado una mezcla de partículas constitutivas que al enfriarse originan gases considerados como permanentes y sólidos estériles de las partículas metálicas presentes.

Un plasma puede ser creado pasando un gas a través de un arco eléctrico. Este arco puede ser generado por AC ó DC, en este último caso los electrodos son de tungsteno (cátodo) y de cobre (ánodo). En el caso de AC los electrodos deben ser del mismo material. El plasma permite transferir la energía del arco eléctrico hacia una aplicación gracias a sus elevados coeficientes de transporte térmico.

Los gases que se usan en un plasma incluyen nitrógeno, oxígeno, gases nobles y mezclas de estos. En la vitrificación normalmente se usa un plasma transferido, en el cual el producto vitrificado participa como el segundo electrodo, Es decir el calentamiento ocurre por convección, radiación y efecto Joule.

Dentro de los efluentes gaseosos existe un importante porcentaje de CO y H₂, los cuales pueden ser recirculados como gases plasmágenos debido a su elevado contenido energético.

El sistema propuesto requiere de una sección de tratamiento de gases (scrubber) de dimensiones muy reducidas dado que la entalpía y eficiencia del plasma es superior a los fósiles combustibles y requiere solo 5% del gas necesario que ocuparía un fósil combustible, no se requiere exceso de oxígeno y los gases emanados son de bajo flujo y de rápido tratamiento.

Para conocer las características del plasma térmico, se ha dirigido una atención especial en el estudio de los flujos térmicos del cañón de plasma y en las distribuciones de temperatura, mediante



espectroscopía por emisión óptica. De acuerdo al gas o mezcla de gases, se puede aumentar la densidad de energía y optimizar la capacidad de transferencia térmica.

El prototipo comprende también de un sistema de diagnóstico por espectroscopia óptica y por espectrometría de masas para observar el proceso y confirmar la evolución de la vitrificación en tiempo real.

3. Inducción Electromagnética:

Las técnicas actuales de fundición de vidrio involucran la Inducción Electromagnética (IEM) [8-13] pero se requiere un precalentamiento para transformar el vidrio en un conductor eléctrico lo suficientemente adecuado para que acepte la energía proveniente por inducción.

La aplicación de la inducción electromagnética (IEM) crece rápidamente en la industria dada su capacidad de transferir energía sin necesidad de electrodos o elementos contaminantes. Este sistema puede ser modelado por una pieza de trabajo asociándola con el secundario de un transformador [13]. El devanado primario se conecta a un sistema convertidor de alta frecuencia.

Un análisis elemental implica la resolución de las ecuaciones de Maxwell

$$\nabla \times \bar{H} = \bar{J} + \frac{\partial \bar{D}}{\partial t} \quad (1)$$

Donde \bar{H} es la intensidad magnética senoidal, \bar{J} la densidad de corriente, y \bar{D} la corriente de desplazamiento. Las líneas de campo eléctrico \bar{E} son transversales a las del campo magnético. Asumiendo que los parámetros anteriores tienen una simetría cilíndrica y solo varían radialmente, se puede partir de la siguiente ecuación:

$$\frac{\partial^2 H_{(r)}}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial H_{(r)}}{\partial r} - j\omega\mu\sigma H_{(r)} = 0 \quad (2)$$

Cuya solución esta dada por la función de Bessel de orden cero:

$$H_{(r)} = A \left[\left(ber \sqrt{2} \frac{r}{\delta} \right) + j bei \left(\sqrt{2} \frac{r}{\delta} \right) \right] \quad (3)$$

donde
$$\delta = \frac{1}{\sqrt{\pi \mu \sigma f_o}} \quad (4)$$

es la profundidad de penetración de las corrientes inducidas a una frecuencia f_o . Aplicando las condiciones de frontera se puede encontrar la variación del campo eléctrico en función del radio de la pieza:

$$E(r) = \frac{\sqrt{2} H_a}{\sigma \delta} \sqrt{\frac{\left(ber' \left(\sqrt{2} \frac{r}{\delta}\right)\right)^2 + \left(bei' \left(\sqrt{2} \frac{r}{\delta}\right)\right)^2}{\left(ber \left(\sqrt{2} \frac{a}{\delta}\right)\right)^2 + \left(bei \left(\sqrt{2} \frac{a}{\delta}\right)\right)^2}} \quad (5)$$

El resultado gráfico de la ecuación 5 se muestra en la figura 1

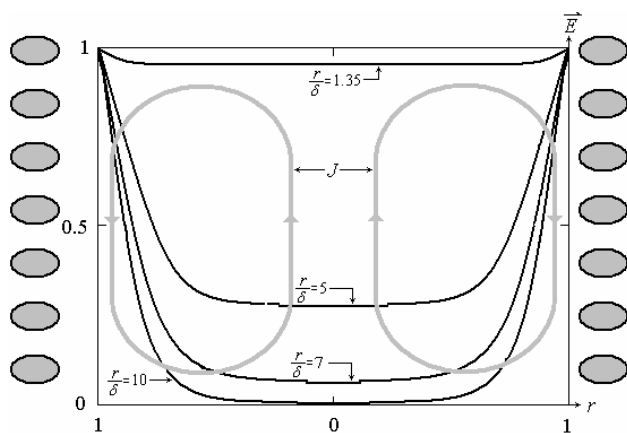


Fig. 1.- Distribución del Campo eléctrico en función del radio r.



Fig. 2.- Fundición de vidrio por inducción electromagnética [Ref 13]

Finalmente la densidad de potencia inducida en la pieza de trabajo puede deducirse de la ecuación:

$$P = \frac{2 \pi H_a^2 \sqrt{2} a}{\sigma \delta} \left\{ \frac{\left(ber \left(\sqrt{2} \frac{a}{\delta}\right)\right)\left(ber' \left(\sqrt{2} \frac{a}{\delta}\right)\right) + \left(bei \left(\sqrt{2} \frac{a}{\delta}\right)\right)\left(bei' \left(\sqrt{2} \frac{a}{\delta}\right)\right)}{\left(ber \left(\sqrt{2} \frac{a}{\delta}\right)\right)^2 + \left(bei \left(\sqrt{2} \frac{a}{\delta}\right)\right)^2} \right\} \quad (6)$$

Cuando $\frac{a}{\delta} \geq 5$ la ecuación anterior se simplifica a

$$P = \frac{2 \pi H_a^2 a}{\sigma \delta} \quad (7)$$

Lo que muestra que el total de potencia disipada es inversamente proporcional al producto de la resistividad por la profundidad de penetración. La potencia descrita por la ecuación 7 fue aplicada en un desarrollo experimental (ver Fig. 2) descrito en la referencia 13.

Debido a que la conductividad en un vidrio fundido es originada por los iones, es conveniente utilizar la fundición mediante inducción electromagnética ya que la corriente alterna evita la electrólisis.

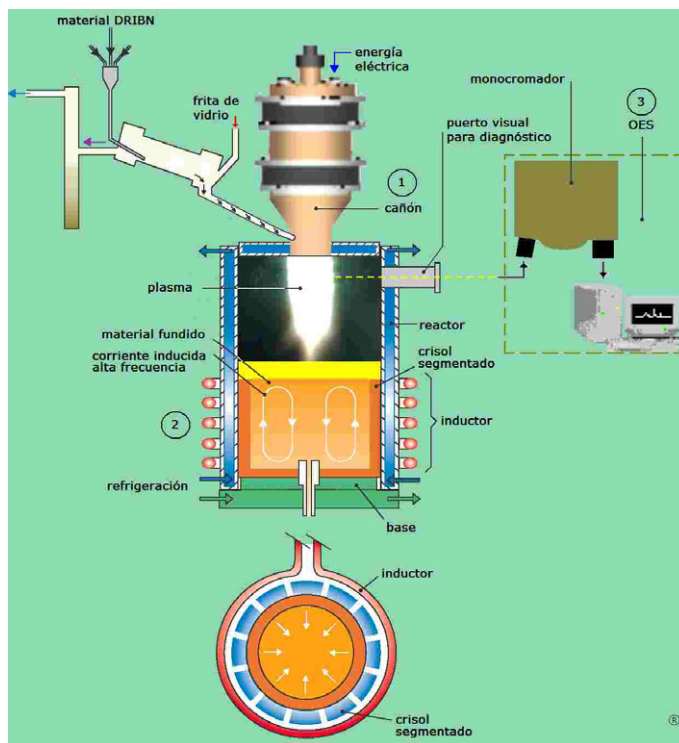


Fig. 3.- Vitrificación de DRNBI en un sistema híbrido plasma e IEM [14]

El material fundido (compuesto de DRNBI + vidrio) está contenido en un crisol de cobre segmentado para evitar la generación de corrientes de Eddy. El crisol está forrado internamente por una capa de vidrio que se fija a la pared y contiene el baño fundido. Esta capa delgada de vidrio es una barrera de aislamiento eléctrico y térmico, y sirve además para evitar la corrosión de los segmentos del crisol y por lo tanto el baño fundido está libre de toda interacción con el crisol [15].

La degradación DRNBI ocurre en dos etapas descritas en la figura 3: La primera se realiza mediante el tratamiento de un arco de plasma (1) el cual inicia la fundición de los DRNBI mezclados con el material vítreo. La segunda etapa se lleva a cabo para sostener y homogeneizar el material ya fundido mediante inducción electromagnética (2) de alta frecuencia y para controlar su solidificación mediante un perfil de enfriamiento adecuado. Un sistema de espectroscopia óptica (3) efectúa el diagnóstico del proceso y confirmar la evolución de la vitrificación en tiempo real.

4. Vitrificación

La vitrificación permite una disposición final y estable de larga duración, tal como ha permanecido el vidrio natural durante millones de años, ya que comprende un proceso de inmovilización orgánica e inorgánica. El proceso de vitrificación es más atractivo que el de cementación dado a su durabilidad y a su flexibilidad a tratar una mezcla variada de residuos

El vidrio es un material no cristalino rígido y de muy baja porosidad, ordinariamente compuesto de borosilicatos y aluminosilicatos, entre otros.

Los vidrios poseen alta resistividad (10^{11} a $10^{18} \Omega\text{-cm}$) y esfuerzo dieléctrico (50 a 3000kV/cm) a temperatura ambiente. Sin embargo, estas características se modifican fuertemente cuando se eleva su temperatura proveniente del plasma térmico. Ya en estado líquido, es un material conductor y por lo tanto susceptible de absorber flujos de corriente por IEM [13]. Su coeficiente de temperatura es negativo y muy elevado.

5. Capacidad de Retención:

Algunos elementos utilizados en la fundición de vidrio tienen una gran compatibilidad para ser transformados y retenidos en la matriz de vidrio (Fig. 4). Los elementos tales como el Si, Al, Fe, Mg y Ca, así como el Titanio y el Cerio quedan confinados en el vidrio en un porcentaje superior al 95% y solo porcentajes reducidos (2% al 3%) se alojan en la pared del reactor. El Cerio es utilizado para simular el Plutonio. Los óxidos de estos siete elementos poseen temperaturas de ebullición sumamente elevadas, por lo que se explica su capacidad de retención dentro del baño de vidrio.

El caso del sodio es diferente pues el Na_2O se sublima a 1250°C y alrededor de 88% queda en el vidrio, el resto (12%) se deposita en la pared o se volatiliza en forma de gas.

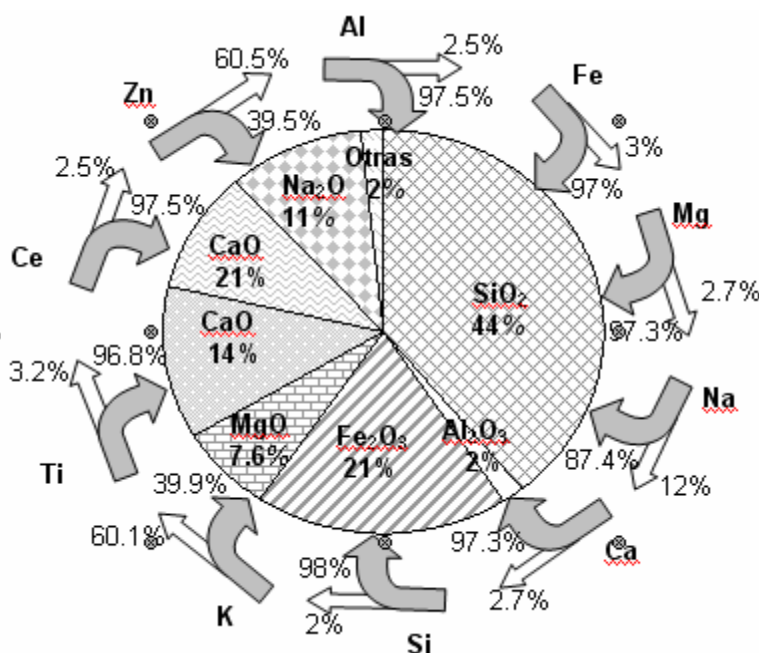


Figura 4.- Compatibilidad de elementos para retenerse en vidrio.

El Potasio se vuelve gaseoso a los 760°C y su óxido a 350°C , por lo que un elevado porcentaje de este elemento se deposita en el reactor y sólo el 40% se retiene en la fundición, algo similar ocurre con el Zn.

Finalmente una composición propuesta para obtener una adecuada vitrificación se describe en los porcentajes que se aprecian en la figura 4.

Se considera que los materiales que forman el vidrio tienen una estructura formada por poliedros [16] con cationes rodeados de un número variable de átomos de oxígeno. Los cationes reciben el nombre



de “formadores” de la red donde se incrustan otros cationes “modificadores” que perturban la estructura. El resto de cationes pueden servir como “intermediarios” y se agregan para aumentar la concentración. Algunas características que proporcionan los materiales al vidrio se presentan en la tabla I.

SiO ₂	Aumenta grandemente la viscosidad Reduce la solubilidad	Incrementa la durabilidad
B ₂ O ₃	Reduce la viscosidad, aumenta la solubilidad	Incrementa la durabilidad
Al ₂ O ₃	Incrementa la viscosidad y tiene tendencia a desvitrificar	Incrementa la durabilidad
Fe ₂ O ₃	Reduce la viscosidad, difícil de disolver	Incrementa la durabilidad

Tabla I. Características proporcionadas al vidrio.

6. Material a tratar:

Las resinas orgánicas de intercambio iónico a base de un co-polimeros de estireno-divinilbenceno (RII) son ampliamente utilizadas en las plantas nucleares. Sin embargo, en la actualidad son más utilizadas las RII inorgánicas por que tienen mayor capacidad de absorción por unidad de volumen, captando por ejemplo Cs-137 con mayor facilidad [17].

El uso de RII en la eliminación de partículas radiactivas y metales pesados en la industria nuclear origina una cantidad importante de DRNBI por lo que es conveniente la propuesta de un proceso para su tratamiento. La selección de un tipo específico de RII así como su caracterización y tratamiento ya se ha realizado en la referencia [14].

El inconveniente es que este material funde a 670°C y se generan gases volátiles por lo que se requerirá un tratamiento en el sistema de gases ó bien se agregan formadores de vidrio para encapsular el Cs durante la vitrificación en más de un 98%.

Durante el proceso de fundición por plasma los materiales son fundidos y los residuos no metálicos flotan en forma de escoria facilitando su separación y postratamiento.

Algunos metales como mercurio y cadmio son difíciles de incorporar en la matriz vítrea dado su volatilidad que requiere de un sistema de tratamiento de gases.

7. Conclusiones:

Esta técnica no genera residuos secundarios tóxicos y permite obtener una matriz inerte para la disposición final de los desechos radiactivos (DRNBI). Además, es posible vitrificar dichos desechos, haciéndolos inertes y resistentes a esfuerzos mecánicos, evitando la lixiviación de estos desechos a los mantos freáticos, cumpliendo con los requerimientos de la norma oficial mexicana NOM-019-NUCL-1995.



La ausencia de electrodos en el crisol de la fundición de vidrio y de los DRNBI permite el tratamiento de compuestos muy variados y sin importar su agresividad, es decir se obtiene una interacción libre de toda contaminación.

La densidad de potencia en términos de flujo de calor por unidad de superficie depende de la geometría y de las propiedades físicas de la carga. La frecuencia de operación debe ser escogida de tal manera que la relación r/δ se mantenga de 5-7 de acuerdo con la ecuación 9 y figura 1.

Los reactores son compactos y trabajan a presión atmosférica e inercia térmica reducidas y está compuesto del propio reactor, un cañón de plasma, un generador de inducción electromagnética, una unidad de monitoreo y de control y de una unidad de tratamiento de gases.

8. Agradecimientos:

Este trabajo se desarrolla en el ININ mediante la participación de un grupo multidisciplinario que trabaja en tres departamentos (Departamento de Desechos Radiactivos, de Materiales Radiactivos y de Estudios Ambientales), por su colaboración queremos agradecer su participación, así como el apoyo brindado por el ININ bajo los proyectos AM516 y AM517.

Referencias

- Scott B. and Rawson H.; "Techniques for producing low loss glasses for optical fibre communication systems"; Glass Technology, Vol. 14, No. 5, pp. 115-124, October, (1973).
- T. Inaba and T. Iwao "Treatment of Waste by dc Arc Discharge Plasmas", *IEEE Trans. on Dielect. Elec. Insul*; Vol. 7 No. 5, Oct 2000. pp 684-692.
- Anthony L Peratt, "The Plasma Torch for the Vitrification of Low-Level Radioactive Waste"; Los Alamos National Laboratory; Environmental Energy Issues in Plasma Science 8 June 1995.
- Chin-Ching Tzeng, Yung-Yen Kuo, Tsair-Fuh Huang, Deng-Lain Lin, Yuh-Jenq Yu, "Treatment of radioactive wastes by plasma incineration and vitrification for final disposal", Journal of Hazardous Materials 58 (1998) pp 207-220.
- Waste Vitrification Systems, Lessons Learned, march 1999; U. S. Department of Energy
- Lacoste Andrée-Claude; "La gestion des déchets nucléaires en France"; Revue Générale Nucléaire, No. 5, pp. 8-9, Sept-Oct, (1997).
- Massit H., Naud G., Atabek R., and Thiéblemont J-C.; "Solidification des déchets des centres du CEA au moyen d'un système plasma"; Solidification of middle-level wastes by the CEA by means of one plasma system. International symposium on environmental technologies: Plasma systems and applications. Atlanta, GA (United States); Volume 2.; pp. 529-537; 8-11 Oct. (1995).
- Pautz J.; "Induktives Schmelzen von Glas"; Iew Elektrowärme International, 47, B6, pp. 258-264, Dezember, (1989).



- Moulin J., Reboux J., Bonniaud R., and Sombret C.; "New developments in the electrical melting of refractory glasses"; English translation of the French written paper: "Nouveaux développements dans la fusion électrique des verres réfractaires"; Verres Refractaires, Vol. 26, No. 4-5, pp. 123-127, July-October, (1972).
- Roland Ernst; " Le chauffage par induction des verres "; Journal Francais de l'Électrothermie, N° 7, pp 43-46, mai (1985).
- Bereza J.; "Toward higher efficiency of radio-frequency induction heating generators"; Electrowarme International B, Vol. 46, No. 1, pp. 20-23, February, (1988).
- Jong-Kil Park, Myung-Jae Song; "Feasibility study on vitrification of low-and intermediate-level radioactive waste from pressurized water reactors"; Nuclear Power Research Laboratory, Korea Electric Power Research Institute, Waste Management 18 (1998) pp157-167.
- J. O. Pacheco Sotelo, E. Gutiérrez Ocampo, J. S. Benítez-Read J. Martínez-Valencia, R. López-Callejas. "Glass-melting using an IGBT full-bridge resonant converter". Glass Technology. Vol41, N° 2, April 2000, pp 59-64.
- Laura V. Díaz Archundia, Joel O. Pacheco Sotelo, Marquidia Pacheco Pacheco Fabiola Monroy Guzmán, Miguel Emeterio Hernández "Prototipo de Degradación Térmica para Desechos Radiactivos de Nivel Bajo e Intermedio" XVI Congreso Anual de la SNM y XXIII Reunión Aual de la SMSR, Oaxaca, México, Julio 10-13, 2005 / Oaxaca, Oaxaca, México, Julio 10-13, 2005.
- Jean-Pierre Moncouyoux *et Jean-Philippe Nabot*; *Les recherches pour la gestion des déchets nucléaires La vitrification des déchets ajoute des cordes á son arc*; Clefs CEA, N° 46 Printemps 2002. <http://www.cea.fr/fr/Publications/clefs46/sommaire.html>.
- Medina C. O. L. "Estudio de las propiedades térmicas de algunos vidrios y policristales de la forma A_2BX_4 ", Tesis de Maestría en Ciencias en Física, Universidad de Puerto Rico, 2005.
- Connie A. Cicero-Herman, R. Kevin Poole, Donald L. Erich, Thomas J. Overcamp and John M. Harden "Vitrification demonstration with Argentine Ion Exchange Material in Stir-Melter". Westinghouse, Savannah River Technology Center WSRC-TR-98-00112, June 28 2002.