



УКРАЇНА

ДЕРЖАВНЕ
ПАТЕНТНЕ
ВІДОМСТВО

(19) UA (11) 18122 (13) A

(51) G 21 F 9/36; C 22 B 9/00

ОПИС ДО ПАТЕНТУ
НА ВІНАХІДбез проведення експертизи по суті
на підставі Постанови Верховної Ради України
№ 3769-XII від 23 XII 1993 рПублікується
в редакції заявника

(54) СПОСІБ ПІРОДЕЗАКТИВАЦІЇ МЕТАЛЕВИХ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ

1

(21) 95031303

(22) 22.03.95

(24) 01.07.97

(46) 31.10.97, Бюл. № 5

(47) 01.07.97

(72) Марковский Евгений Адамович, Найдек
Володимир Леонієвич, Бутенко Леонід
Йосипович, Гаврилюк Володимир Петрович,
Таранов Михайло Іванович, Шинський Олег
Йосипович, Ніконов Альберт Васильович,
Чайкін Вадим Всеволодович, Кельвич Воло-
димир Тихонович(73) Інститут проблем лиття НАН України
(UA)(57) 1. Способ пиродезактивации металличе-
ских радиоактивных отходов, путем плавле-

2

ния с флюсовыми добавками, отличаю-
щийся тем, что рафинирование металла
от радионуклидов осуществляют за счет
предварительной поверхностной дезакти-
вации металлической шихты ее нагревом и
обработкой в шлаково-флюсовых расплавах
в диапазоне температур 500–1000°C, допол-
нительного рафинирования флюсами жид-
кого металла в тигле или ковше перед его
разливкой и раздельного слива и кристалли-
зации шлака и очищенного металла.

2. Способ по п.1, отличающийся с
тем, что осуществляют дополнительное ра-
финирование жидкого металла в тигле с
применением низкотемпературной плазмы.

Изобретение (патент) относится к обла-
стям ядерной и металлургической техно-
логий и может быть использовано для
переплава шихты, полученной из металло-
отходов и скрапа с наличием радиоактивно-
го загрязнения.

Известны способы рафинирования
сплавов от вредных примесей и неметалли-
ческих включений, в том числе и оксидов
(Воинов С.Г., Шалимов А.Г. и др. Рафиниро-
вание стали синтетическими шлаками. Изд.
2-е. М.: Металлургия, 1970). Калугин А.С.,
Калугина К.В. Эффективность рафинирова-
ния при переплавных процессах. – М.: Ме-
таллургия, 1988.

В настоящее время эти способы рафи-
нирования используются для дезактивации
металлов и сплавов, имеющих поверхност-
ное и объемное загрязнение радиоактивны-
ми нуклидами за счет переплава этих
металлических радиоактивных отходов
(МРАО) с наведением на жидкий металл ак-
тивных металлургических шлаков, которые в
свою очередь ассимилируют оксиды радио-
нуклидов (Manfred Sappok/Results of
melting large Quantities of radioactive steel
Scrap//Nuclear technology., 1989. – Vol.86. –
P.188–191; Дмитриев О.А., Стефанов-
ский С.В., Князев И.А. Иммобилизация
радионуклидов в шлаке при высокотемпе-
ратурной переработке твердых радиоактив-

(19) UA (11) 18122 (13) A

ных отходов// В сб. Теплотехнические вопросы применения низкотемпературной плазмы в металлургии. - Магнитогорский горнометаллургический институт. - 1989. - С.139-144.

Основной недостаток этого способа заключается в том, что при наличии на МРАО значительной поверхностной загрязненности при одно- или двухцикловом переплаве часть радионуклидов с поверхности шихты переходит в объем металла, что резко снижает его потребительские качества.

Наиболее близкими по технической сущности являются способ дезактивации радиоактивного железа или стального скрапа и способ обезвреживания радиоактивных отходов непостоянного состава (патент Германии № 3318377, кл. С 21 F 9/30. Способ дезактивации радиоактивно загрязненного железа или стального скрапа. Загрязненный металл очищают плавлением в присутствии шлакообразующих материалов; авт.св. СССР № 1597936, кл. С 21 F 9/16. Способ обезвреживания радиоактивных отходов непостоянного состава, заключающийся в том, что образующийся при плавлении хальмозный остаток диспергируют обратно в расплав и замораживают - прототип).

Недостатки этих способов заключаются в том, что при наличии в качестве загрязняющих радионуклидов радиоизотопов железа и кобальта они полностью переходят в металл при переплаве, а также в значительном выделении пыли, которая содержит до 60-70% радионуклидов от их первичного содержания в поверхностном и объемном загрязнении МРАО. Последнее требует дополнительных затрат на очистку и сбор радиоактивных отходов, находящихся в воздухе в виде аэрозолей. Поэтому технология основанная только на переплаве МРАО со значительным поверхностным загрязнением не применима. Она может быть использована только для МРАО с малой удельной активностью, которая соответствует работам третьего класса согласно НРБ 76/87 и ОСП 76/87.

В основу изобретения поставлена задача создания способа дезактивации (пиродезактивации) металлических радиоактивных отходов, который позволяет получать очищенный металл, пригодный для повторного использования, снижает до минимума затраты на захоронения вторичных радиоактивных отходов и затраты энергии и материалов при дезактивации обеспечивает высокую экологичность процесса за счет снижения до минимума выброса в атмосфе-

ру радиоактивных аэрозолей за счет применения взаимосвязанных металлургических операций: поверхностной дезактивации нагретой шихты в шлаке (флюсе), переплаве в индукционной печи поверхностно-дезактивированной шихты, внепечного рафинирования в ковше.

Поставленная задача решается тем, что в способе дезактивации металлических радиоактивных отходов путем плавления шихты с флюсовыми добавками, согласно изобретению рафинирование металла от радионуклидов осуществляют за счет предварительной поверхностной дезактивации металлической шихты ее нагревом и обработкой в шлаково-флюсовых расплавах при температурах 500-1000°C, а также дополнительным рафинированием флюсами жидкого металла в тигле или ковше перед его разливкой, в том числе и с применением низкотемпературной плазмы. Использование описанного способа позволяет устранить основные недостатки используемых технологий - выброс радиоактивных аэрозолей в атмосферу, загрязнение металла радиоизотопами железа и кобальта при переплаве, большие затраты энергии и материалов на захоронение вторичных радиоактивных отходов. Благодаря предварительной поверхностной дезактивации металлической шихты ее нагревом и обработкой в шлаково-флюсовых смесях основная часть поверхностных радионуклидов (до 90%) переходит в шлак. Последующая плавка очищенного металла под слоем активного шлака осуществляет дальнейшее его рафинирование от радионуклидов. Окончательное рафинирование жидкого металла осуществляется в ковше перед разливкой. Применение низкотемпературной плазмы позволяет окончательно отрафинировать металл. Таким образом, благодаря применению описанной технологической схемы производится ассимиляция радионуклидов шлаком, который затем захоранивается. Устраняются операции по зачистке поверхности с применением методов, вызывающих образование аэрозолей - пескоструйная, дробеструйная зачистка и т.п. Это значительно улучшает экологическую обстановку. Перевод основной массы радионуклидов в шлаке на стадии твердой шихты предохраняет металл от загрязнения радиоизотопами железа и кобальта при переплаве. Захоронение шлака с перешедшими в него радиоизотопами не требует дополнительной его переработки, на которую обычно требуются большие затраты энергии и материалов для заключения отходов в матричные сплавы и оболочки.

Предлагаемые в ряде случаев методы механической поверхностной дезактивации за счет дробеструйной (пескоструйной) обработки не применимы для скрапа, имеющего внутренние полости и из-за большого выделения пыли, которую трудно удалить из аппаратов очистки, т.е. этот процесс не приемлем по экологии. Метод химического травления (ВНИПИЭТ) (Всесоюзный проектный и научно-исследовательский институт комплексной энергетической технологии.) сложен, требует сложного дорогостоящего оборудования, очистки водных растворов и специальных контейнеров для захоронения радиоактивного и одновременно агрессивного шлака. Поэтому поставленная задача пиродезактивации МРАО на первом процессе будет решаться за счет снятия поверхностного оксидного слоя и тонких металлических слоев за счет обработки нагретого до 500–800°C скрапа в расплавах активных шлаковых флюсов при температуре 500–1000°C. По этому процессу полностью подавляется выброс радионуклидов в атмосферу, они поглощаются активным шлаковым флюсом за счет растворения в нем оксидов радионуклидов. Температура флюса выбирается в зависимости от вида обрабатываемого металла. Обработку алюминиевых сплавов, имеющих температуру плавления около 600°C, следует производить при температуре 500°C. Обработку медных сплавов, с температурой плавления около 900°C, следует производить при температуре 800°C. Обработку железа и чугуна следует производить при температуре 1000°C. Недогрев шлака снижает его активность и уменьшает эффективность обработки. Перегрев шлака приводит к растворению в нем металла и его загрязнению радиоизотопами.

Предлагаемый способ пиродезактивации МРАО осуществляется следующим образом.

Обрабатываемый металлический скрап сортируется по химическому составу, уровню радиоактивного загрязнения и помещается в мерные корзины (бадьи). Корзины с шихтой перед окунанием в расплав активного флюса нагревают до 500–800°C. Нагретая шихта выдерживается в расплаве шлака при температуре 500–1000°C в течение 30–40 минут, при том 70–80% радиоактивного загрязнения по активности переходит в шлак. Для обеспечения эффективности поверхностной дезактивации в ванне шлаковой печи создается циркуляция расплава активного шлака за счет градиента температурного поля по высоте шлаковой печи со скоростью 0,2–0,4 м/мин.

Поверхностно-дезактивированный металл загружается в плавильную печь или охлаждается и промежуточно складывается. Металл после поверхностной дезактивации подвергается второму процессу – плавке в индукционной печи на воздухе с дополнительным наведением на поверхность расплава металла активного шлака, выполняющего как защитные, так и рафинирующие функции. В результате этих двух основных дезактивирующих операций остаточная радиоактивность металла будет составлять 0,05–0,1%. Из такого металла отливаются в основном слитки, которые могут быть использованы для нужд атомной энергетики и служб захоронения радиоактивных отходов. В последнем случае очищенный металл (углеродистая сталь, чугун) используется для изготовления металлических контейнеров для захоронения высокоактивных отходов практически любого происхождения.

В случае необходимости более глубокого рафинирования расплавленный металл перегревается в индукционной печи на 150–170°C, переливается в ковш, в котором подвергается дополнительной обработке шлаками, химическими реагентами, а также низко-температурной плазмой за счет применения плазмотронов. При обработке плазмой часть химических реагентов может вводиться в расплавленный металл с плазменной струей.

Технология по данному изобретению реализуется следующим образом.

Металлический скрап из МРАО сортируется по составу и уровню радиоактивности согласно норм НРБ-76/87 и ОСП-72/87.

Подготовленная шихта из скрапа укладывается в мерные корзины; вес шихты стальных или чугунных отходов 100–200 кг.

Для проведения поверхностной дезактивации шихта в корзинах подогревается в электротермической печи до 800°C и в этом нагретом состоянии вынимается из печи и погружается в ванну расплавленного шлака-флюса, температура которого 1000°C. В качестве шлака-флюса использован оксидный состав $\text{SiO}_2 - \text{Na}_2\text{O} - \text{PbO} - \text{B}_2\text{O}_3 - \text{ZnO}$. В ванне расплава шлака-флюса шихта выдерживается 30 минут, в результате чего с поверхности металлической шихты удаляется от 75 до 90% радионуклидного загрязнения по следующим радиоактивным изотопам: церий-144, цезий-137, стронций-90, плутоний-241, америций-241.

Поверхностно дезактивированная шихта поступает на переплав в индукционную печь, в процессе плавки которой наводится покровный и рафинированный металлурги-

ческий шлак следующего состава: SiO_2 - CaO - MnO - Al_2O_3 - Na_2O - CaF_2 . После переплава шихты в индукционной печи, где происходит процесс объемной дезактивации, перегревом металла для интенсификации процесса ассимиляции радионуклидов на $150-200^\circ\text{C}$ для МРАО с низким и средним загрязнением (по бета-активности) от 100 кБк/кг до 1000 кБк/кг, остаточная активность составляет 0,1-1,0%. В случае более высокой остаточной активности при переплаве (>1,0%) расплав рафинируемого металла подвергается в тигле печи или в ковше 10-15 минутной обработкой аргоновой плазмой с помощью плазмотрона мощностью 5 квт с введением химически активных реагентов: CaF_2 , CaO , CaS и др.

В этом случае достигается рафинирование сталей и чугунов до степени остаточной активности ниже 0,1%. Металл становится пригодным для использования в народном хозяйстве.

Благодаря применению описанного способа обеспечивается стабильный характер процесса глубокой пиродезактивации МРАО, обеспечивается высокая экологичность процесса за счет снижения до минимума выброса в атмосферу радиоактивных аэрозолей. Кроме этого продуктом вторичных радиоактивных отходов является шлак-флюс, который в процессе затвердевания остекловывается и не требует специальных мер и средств по захоронению.

Упорядник

Техред М. Келемеш

Коректор М. Самборська

Замовлення 4267

Тираж

Підписне

Державне патентне відомство України,
254655, ГСП, Київ-53, Львівська пл., 8

Відкрите акціонерне товариство "Патент", м. Ужгород, вул Гагаріна, 101