

Schmelzofentechnologie des INE zur Verglasung hochradioaktiver Flüssigabfälle

W. Grünewald, G. Roth, W. Tobie, S. Weisenburger, INE

Einführung

Hochradioaktive Spaltproduktlösungen aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen erfordern eine sichere Langzeitverwahrung zum Schutz der Biosphäre gegen die extrem lang anhaltende Strahlenwirkung. Die weltweit verfolgten Konzepte zur Behandlung derartiger Abfälle sehen die Immobilisierung in einer Glasmatrix und die anschließende Endlagerung in einer dafür ausgewiesenen geologischen Formation vor. Borosilikatgläser erfüllen die Anforderungen in einem Endlager hinsichtlich chemischer und radiologischer Beständigkeit. Der Prozess der Immobilisierung in Glas wird als Verglasung bezeichnet.

Industrielle Verglasung hochradioaktiver Flüssigabfälle findet seit Ende der siebziger Jahre statt. Die am weitesten verbreitete Verglasungstechnologie basiert auf keramisch ausgekleideten Schmelzöfen mit elektrischer Direktbeheizung der Glasschmelze. Glasschmelzsysteme für hochradioaktive Abfälle müssen die hochspezifischen Anforderungen der Kerntechnik erfüllen. Sie werden zum Schutz des Bedienungspersonals gegen die hohe radioaktive Strahlung in abgeschirmten heißen Zellen ohne manuelle Zugänglichkeit untergebracht. Die Durchführung des Hochtemperaturprozesses in der Heißzellularumgebung erfordert eine robuste, funktionssichere Schmelzofentechnologie und eine aufwendige Fernbedienungstechnik.

Struktur und Funktionsprinzip des flüssig-gespeisten keramischen Schmelzofens

Die Attraktivität keramischer Schmelzöfen für den nuklearen Einsatz besteht in der Möglichkeit, Spaltproduktlösungen ohne Vorbehandlung in einem einstufigen, kontinuierlichen Prozess in Glas einzuschmelzen. Die schematische Darstellung in Abb. 1 zeigt Aufbau und Funktionsprinzip einer Variante, die am Institut für Nukleare Entsorgung (INE) des Forschungszentrums Karlsruhe entwickelt wurde. Hierbei werden Flüssigabfall und glasbildende Materialien in separaten Strömen dem Schmelzofen zugegeben. Durch die Flüssigeinspeisung des Abfalls bildet sich auf

der Oberfläche der heißen Glasschmelze eine kühle, stationäre Prozesszone aus, von der die flüssigen Abfallbestandteile verdampfen und die trockenen Rückstände nach thermischen Zersetzungen und Umwandlungen in Oxide mit der Glasfritte reagieren und verschmelzen. Die aus dem Prozess entstehenden Schmelzofenabgase müssen einer intensiven Reinigung unterzogen werden.

Aufbau der Keramikstruktur des Schmelzofens

Beim Aufbau des Schmelzsystems kommen eine Reihe unterschiedlicher, aufeinander abgestimmter keramischer Materialien zum Einsatz. Der im Glaskontakt stehende Bereich besteht aus einer schmelzgegossenen Hoch-

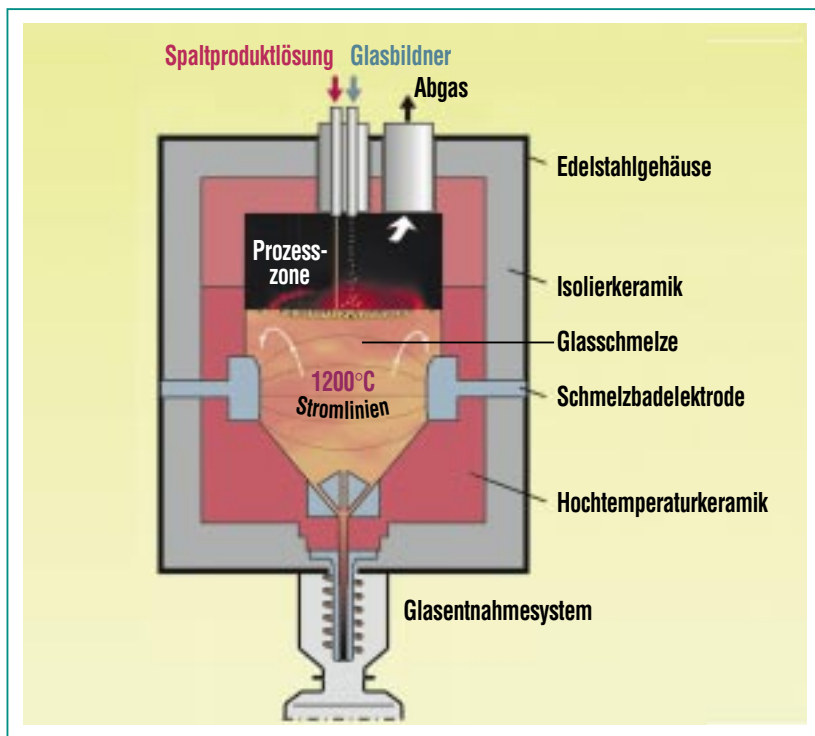


Abb. 1: Schematischer Aufbau und Funktionsprinzip eines flüssig-gespeisten keramischen Schmelzofens zur Verglasung hochradioaktiver Spaltproduktlösungen.

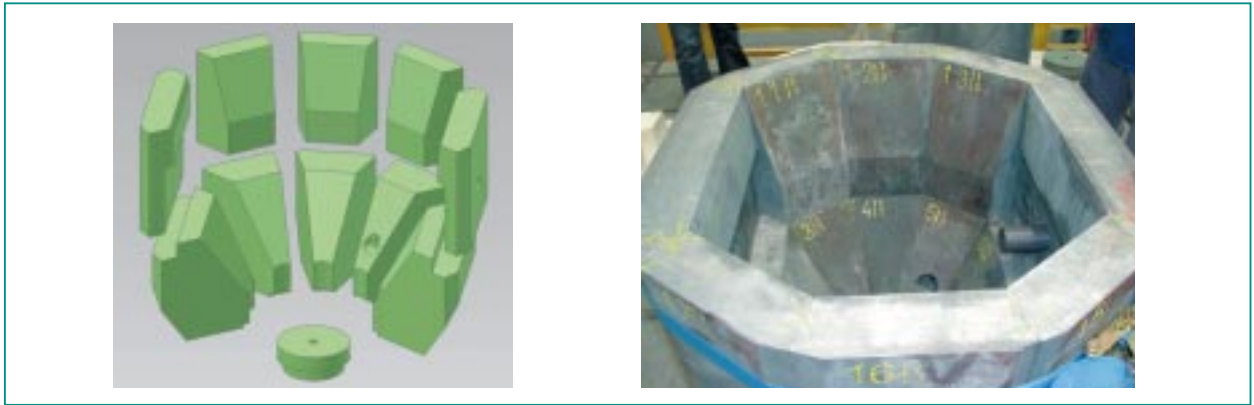


Abb. 2: Schmelzbadwände aus hochfeuerfester, schmelzgegossener Keramik. Schematische Darstellung (links) und aufgebaute Wanne (rechts).

temperaturkeramik mit der Bezeichnung ER 2161 (Hauptbestandteile je ca. 27 % Al_2O_3 , Cr_2O_3 , Zr_2O_3 sowie ca. 15 % SiO_2). Die Schmelzbadwände sind aus einzelnen Blöcken aufgebaut, die zueinander passgenau geschliffen sind, um eine hohe Dichtigkeit der Wanne gegen Penetration der Schmelze in dahinter liegenden Schichten zu erzielen. Abb. 2 zeigt schematisch den Aufbau einer Schmelzwanne (links) sowie

ein Photo der für die Herstellerabnahme zusammengefügtten Wannensteine (rechts). Die weitere Struktur geht aus Abb. 3 hervor, die einen Einblick in die Ausmauerung eines Schmelzofens (Bild links) und den Schichtenaufbau der Wand gibt (Bild rechts). An die Blöcke der Schmelzbadkeramik schließt sich eine Sperrschicht aus einer fugenüberdeckend gemauerten feuerfesten Keramik an. Nach außen hin folgt

eine keramische Isolation, die aus mehreren Lagen unterschiedlicher Steinqualitäten besteht. Ihre Wärmeleitfähigkeit nimmt nach außen zum abschließenden Edelstahlgehäuse hin ab. Die Auswahl der Materialien wird so getroffen, dass eventuell aus Fugen der Wannenkeramik austretendes Glas auf seinem Weg nach außen noch im Bereich der glasresistenten Keramik erstarrt. Durch diese gezielt ausgelegte Wärmeisolation

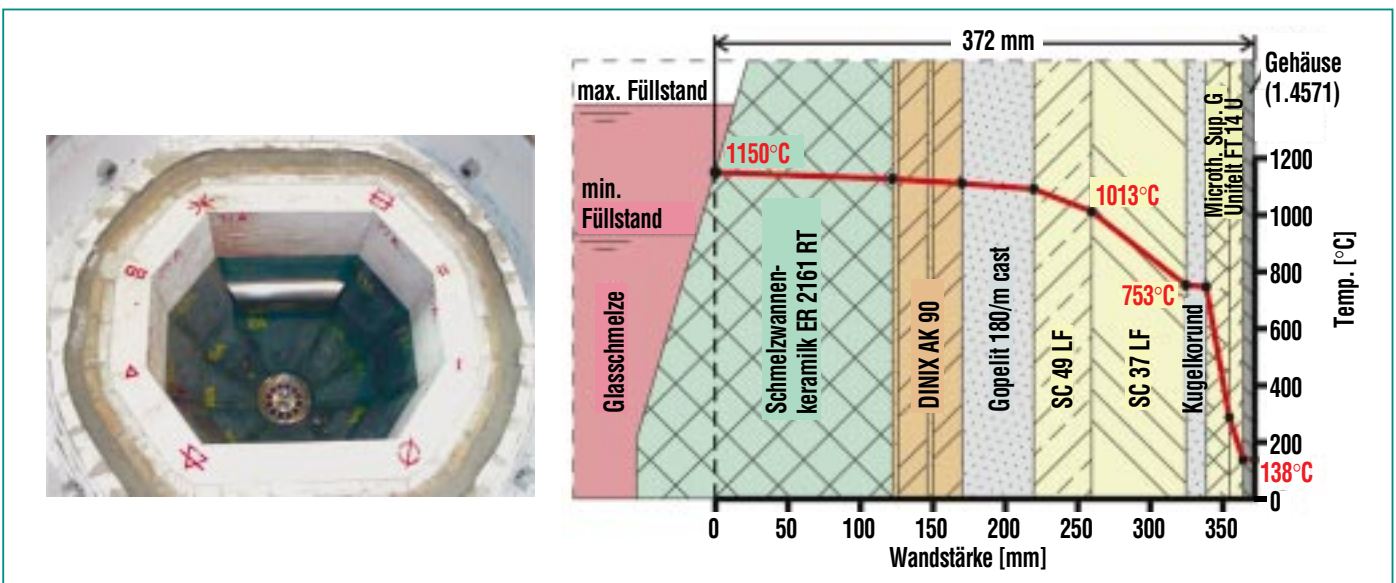


Abb. 3: Wandaufbau eines keramischen Glasschmelzofens. Photo von der Ausmauerung, Ansicht von oben (Bild links) und Schichtenaufbau der Wand mit rechnerischem Temperaturverlauf (rechts).

on erreicht der Schmelzofen an seiner Edelstahlaußenwand Temperaturen um 100°C. Damit wird eine Zwangskühlung der Edelstahlaußenwand überflüssig.

Beheizung

Die Beheizung der Glasschmelze auf maximal ca. 1200°C beruht auf dem Joule-Prinzip: Durch Anlegen einer Wechselfrequenz (50 Hz) zwischen zwei oder mehreren paarweise gegenüberliegenden, fest in die Wand eingelassenen metallischen Schmelzbadelektroden baut sich ein räumliches elektrisches Potentialfeld in der Glasschmelze und in den unmittelbar umgebenden Wannengebieten auf. Die lokale Energiefreisetzung wird durch die dort herrschende Stärke des elektrischen Feldes und den lokalen spezifischen elektrischen Widerstand des Materials bestimmt: Die Gesamtleistung folgt aus der Summe aller lokalen Leistungsbeiträge.

Der spezifische elektrische Widerstand der Keramikstruktur liegt um etwa zwei Größenordnungen über der der Glasschmelze. Somit bleibt die Energiefreisetzung außerhalb der Schmelze vernachlässigbar. Übliche Werte für den spezifischen elektrischen Widerstand der Schmelze liegen temperaturabhängig zwischen ca. 4 und 20 $\Omega\cdot\text{cm}$.

Das Elektrodenmaterial besteht aus einer hochtemperaturbeständigen Chrom-Nickel-Legierung (Ni > 58 %, Cr 27-31 %) mit dem Handelsnamen Inconel 690®. Die Schmelztemperatur dieser Legierung liegt bei 1365°C. Bei Temperaturen ab etwa 1100°C nimmt

der Materialabtrag allerdings deutlich zu. Für eine ausreichend lange Standzeit werden die Elektroden deshalb durch Luftkühlung auf einer Glaskontakttemperatur von ca. 1000°C gehalten.

Anzahl und Anordnung der Elektroden in der Schmelzwanne folgen aus Kriterien wie einer möglichst hohen Energiefreisetzung im Glasbad, einer ausgeprägten thermischen Konvektion zur homogenen Durchmischung der Schmelze sowie ausreichendem Energietransport zur Prozesszone auf der Schmelzbadoberfläche, die einen hohen Energiebedarf aufweist (Verdampfung, Einschmelzung).

Die Beheizung der Schmelze geschieht unter Konstanzhaltung des Stromes. Diese Art der elektrischen Einspeisung hilft, den Leistungseintrag in die Schmelze im Falle zu hoher Schmelzbadtemperatur wegen des mit der Temperatur abnehmenden spezifischen Widerstandes zu begrenzen und damit Temperaturexzesse zu vermeiden. Außerdem wird dadurch gewährleistet, dass die zulässige Stromdichtebelastung der Elektrodenoberflächen nicht überschritten wird.

Geometrie der Schmelzwanne

Größe und Form der Schmelzwanne werden bestimmt vom Durchsatz, der im Falle der Flüssigeinspeisung weitgehend von der Schmelzbadoberfläche abhängt, von der angestrebten mittleren Verweilzeit der Schmelze (Läuterung) sowie von Menge und Art der Glasentnahme. Auch spezielle Eigenschaften der

Schmelze können sich auf die Wannengeometrie auswirken. Die Einschmelzung von Abfällen mit hohem Gehalt an Platinmetallen (Ruthenium, Palladium, Rhodium), die aufgrund der fehlenden chemischen Affinität zur Glasnetzstruktur der üblicherweise verwendeten Borosilikatgläser zu sedimentierenden Partikelabscheidungen und Bildung viskoser, elektrisch äußerst leitfähiger Bodenschichten führt, erfordert besondere Gestaltungsmerkmale für die Glaswanne, um systemgefährdende Akkumulationen zu verhindern. Abfälle mit hohem Platinmetallgehalt stammen vor allem aus der Wiederaufarbeitung von hochabgebrannten Kernbrennstoffen zur kommerziellen Energieerzeugung.

Aufgrund der minimalen Löslichkeit der Platinmetalle in der Borosilikatglasschmelze scheiden glasschemische Ansätze zur Beseitigung des Platinmetallproblems aus. Technologische Lösungswege zielen entweder auf die Vermeidung der Sedimentation der Partikel durch homogenisierende mechanische Maßnahmen oder darauf, die sich bildenden Ablagerungen möglichst umgehend aus dem System zu entfernen. Erfahrungen bei der Verglasung solcher Abfälle haben gezeigt, dass sich die Fließeigenschaften der Bodensedimente und damit die Austragswahrscheinlichkeit bei längerer Aufenthaltzeit im System deutlich verschlechtern. Die Homogenisierung der Schmelze durch mechanisches Rühren (z. B. durch Luftrührung mittels eingetauchter Luftanlagen) ist nur bedingt geeignet und lässt sich nur bei niedri-

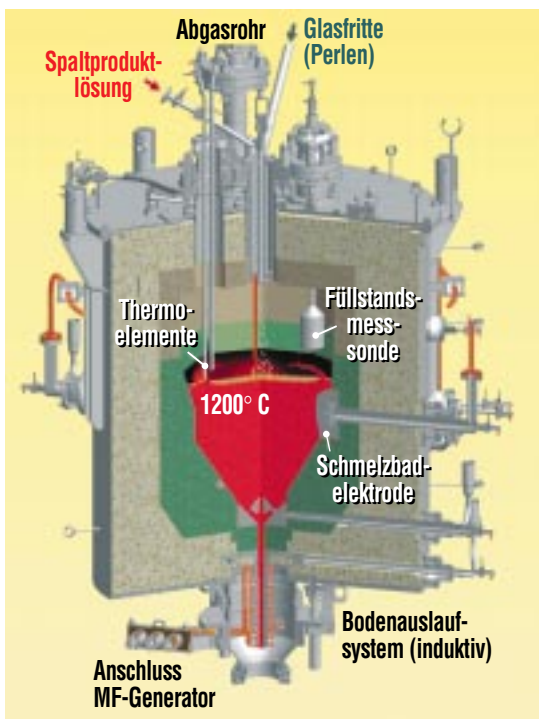


Abb. 4: 3D-Darstellung eines Glasschmelzofens mit stark geneigtem Wannensboden zur Verglasung stark platinmetallhaltiger Spaltproduktlösungen.



Abb. 5: Photo eines flüssig gespeisten keramischen Glasschmelzofens.

ger Platinmetallkonzentration in der Schmelze erfolgversprechend einsetzen. Das im INE entwickelte Konzept beruht auf der Minimierung der Aufenthaltszeit durch Erzwingen des Ausflusses der Sedimente mittels konstruktiver Maßnahmen. Hierzu werden die sedimentierenden Platinmetallpartikeln durch die Hangabtriebswirkung an schrägen Wänden im Bodenbereich der Wanne ($>50^\circ$) dem tieflegendsten Teil der Wanne zugeführt und dort in konzentrierter Form gesammelt. Sie fließen dann im Zuge der periodisch durchgeführten Glasabstiche durch den unmittelbar darunter angeordneten Glasentnahmekanal aus. Das Design eines platinmetalltauglichen Schmelzofens ist in Abb. 4 dargestellt. Abb.5 zeigt die Außenansicht des einbaufertigen Schmelzofens.

Glasantnahme

Die Entnahme des schmelzflüssigen Glases erfolgt diskontinuierlich über ein Bodenauslaufsystem, wobei jeweils nur ein Teil der Schmelze entnommen wird. Der Schmelzofen wird dabei nur soweit entleert, dass die Elektroden noch vollständig in die Schmelze eingetaucht bleiben. Das Glasentnahmesystem im zentralen unteren Teil der Glaswanne, dessen Aufbau in Abb. 6 gezeigt ist, arbeitet nach dem Prinzip eines thermischen Ventils (Gefrierverschluss). Der Glasentnahmekanal besteht aus einem oberen, keramischen Teil und einem unteren, metallischen Teil (dickwandiger Rohrkanal aus Inconel 690®). Zum Ablassen der Glasschmelze in Edelstahlbehälter (Kokillen) muss der Glasentnahmekanal

beheizt werden, bis das Glas schmelzflüssig wird. Die Beheizung des in die Bodenkeramik des Schmelzofens integrierten metallischen Kanals geschieht durch eine 10 kHz Mittelfrequenz(MF)-Induktionsheizung. Zur Unterstützung der MF-Heizung bis zum Glasfluss wird das Glas im oberen keramischen Kanal für eine begrenzte Zeit über direkten Stromeintrag beheizt. Die Kontrolle des Glasflusses (ca. 120 kg/h) in die Kokille erfolgt über den induktiven Leistungseintrag in das Inconel-690®-Rohr. Zur Beendigung des Glasflusses durch Erstarren wird die Heizleistung in mehreren Stufen gedrosselt und dann abgeschaltet. Der Schmelzfluss kommt zum Erliegen und das Glas im Auslaufkanal erstarrt.

Im Übergangsbereich zwischen Glasauslaufkanal und der Glaswanne befindet sich ein metallischer Einsatz, der den tieflegenden Kanal gegen Blockagen durch Fremdkörper wie z.B. Keramiksplitter schützt (siehe Abb. 6). Um einen ungehinderten Ausstrom der Edelmetallsedimente sicherzustellen, ist der Blockageschutz mit 12 seitlichen Öffnungen sowie einem zentralen Zulaufkanal versehen. Der Durchgang durch die Kanäle ist strömungstechnisch so optimiert dass ein ungehinderter Zulauf der Schmelze zum Glasauslaufkanal gewährleistet ist. Neben der Schutzfunktion übernimmt der Einsatz auch die Aufgabe einer Elektrode zur Joule-Beheizung des Glases im keramischen Kanalbereich. Der Flansch des metallischen Entnahmekanals bildet die Gegenelektrode.

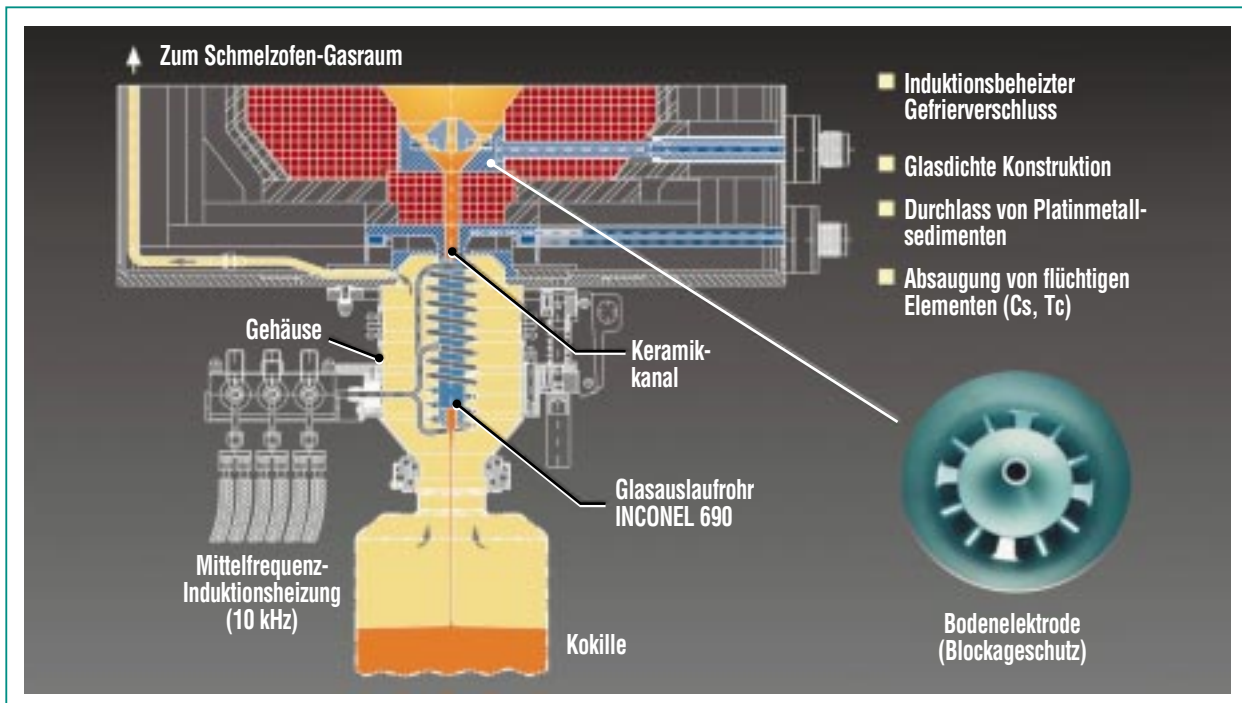


Abb. 6: Aufbau des Bodenauslaufsystems zur diskontinuierlichen Glasentnahme.

Zum Schutz der Zelle gegen Kontamination durch flüchtige Bestandteile aus dem heißen Glasstrahl (wie Cäsium als einem der Hauptaktivitätsträger) werden während des Abstichs Gase aus dem Gehäuse des Bodenauslaufs abgesaugt und in den Gasraum des Schmelzofens eingeleitet. Dabei strömt Luft aus der Zelle in das durch eine Labyrinthdichtung mit der Kokille verbundene Gehäuse.

Messtechnik

Zur Überwachung des Hochtemperaturprozesses ist der Schmelzofen mit Temperaturmesseinrichtungen (Thermoelementen) sowie einer Füllstandsmesssonde ausgerüstet. Mehrere Temperaturmessungen sorgen für die Einhaltung der Temperaturbedingungen in verschiedenen Bereichen der Keramikstruktur, in den

Elektroden sowie im Bereich des Glasentnahmesystems. Die vier in Abb. 4 gestaffelt im Oberofenraum angeordneten Thermoelemente dienen zur Prozesskontrolle. Sie liefern Informationen über die Ausdehnung der Prozesszone auf der Schmelzbadoberfläche, den Glasfüllstand und die Glasschmelztemperatur. Die Glasfüllstandsmesssonde zeigt an, wenn ein Glasabstich eingeleitet werden muss. Eine Druckmessung im Gasraum oberhalb der Schmelze dient dazu, den zur Absaugung der Schmelzofenabgase in den Abgasreinigungstrakt erzeugten Unterdruck im Schmelzofen zu überwachen. Durch die Unterdruckhaltung werden Emissionen in die Zellenumgebung verhindert. Die der Schmelze zugeführte elektrische Leistung wird über

Messungen von Spannung und Strom erfasst.

Auftempern

Vor der ersten Inbetriebnahme müssen keramische Glasschmelzöfen einer Temperaturbehandlung unterzogen werden. Bei diesem als Auftempern bezeichneten Vorgang wird der noch leere Schmelzofen über eine temperaturgeregelte, schonende Aufheizphase von etwa 3 Wochen bis auf eine Wannentemperatur von ca. 1000°C gebracht. Dieses Aufheizen hat u.a. zum Ziel, noch verbliebene Restfeuchte aus den Schmelzofenwänden sowie insbesondere Kristallwasser aus der schmelzgegossenen Keramik auszutreiben und betriebsnahe Temperaturverhältnisse in der Struktur zu erhalten. Die Auftempung wird durch mehrere externe SiC-Strahlungs-

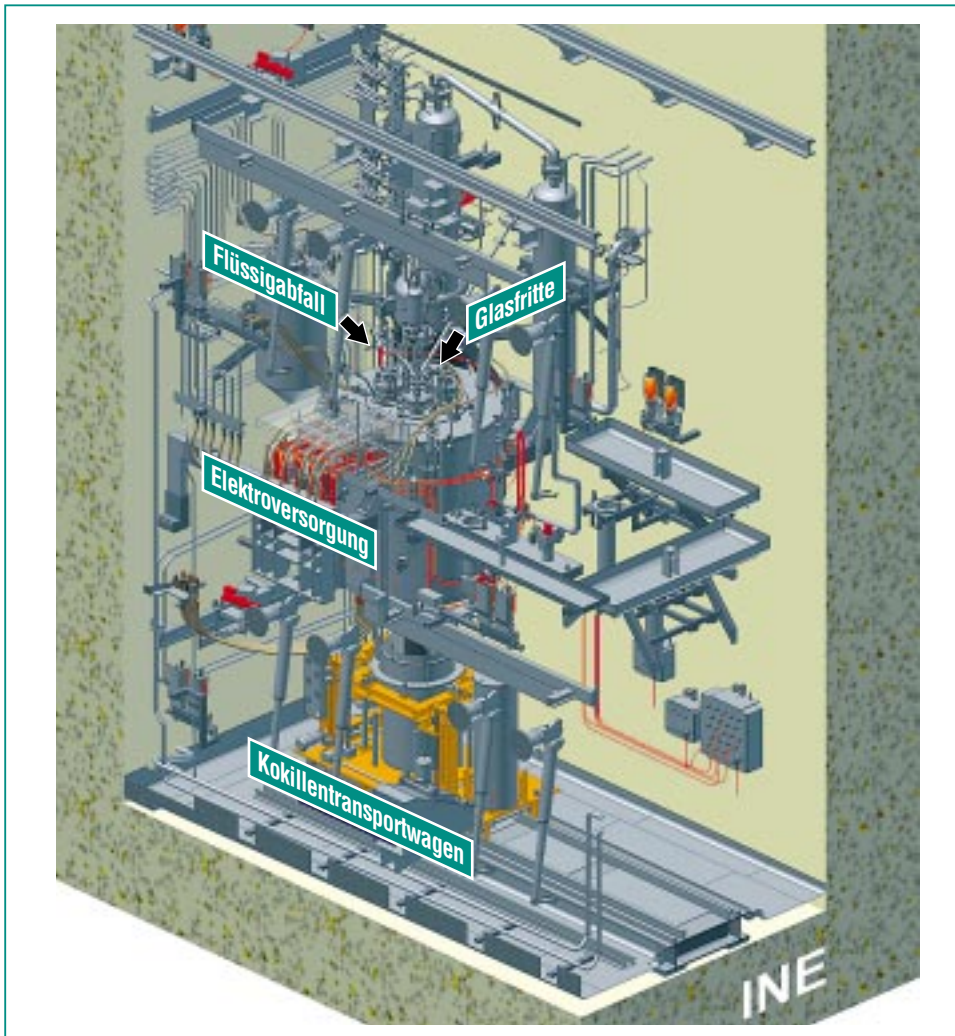


Abb. 7: 3D-Darstellung einer mit Fernhandlungstechnik ausgerüsteten Schmelzofenzelle.



Abb. 8: Blick in die fernhandlungsfähige Schmelzofenzelle der inaktiven Prototypverglasungsanlage (PVA) des INE.

heizelemente vorgenommen, die durch Öffnungen in der Schmelzofendecke in den Innenraum eingeführt werden. Nach Erreichen der Solltemperatur wird das im Zentrum positionierte Element entfernt und durch die Einspeisevorrichtung ersetzt. Danach erfolgt die schrittweise Zugabe von Glasfritte in kleinen Chargen in Zeitabständen, die das zwischenzeitliche Aufschmelzen der Fritte durch die restlichen Heizelemente ermöglichen. Erreicht der Füllstand der Schmelze das

Elektrodeniveau, kann auf die Elektrodenbeheizung umgeschaltet werden. Nach Ausbau der restlichen Heizelemente und Montage der übrigen Schmelzofenbauteile (Abgasrohr, Thermoelementstützen etc.) und Anschluss an die Prozessperipherie ist der Schmelzofen bereit für den Verglasungsbetrieb.

Fernhandlung

Aufgrund der hohen Strahlung muss die Verglasung hochradioaktiver Spaltproduktlösungen in einer Heißzellenumgebung stattfinden. Für das Schmelzofendesign ergibt sich daraus die Notwendigkeit, Wartungs- oder Reparaturarbeiten sowie den Austausch von Bauteilen oder der gesamten Komponente von außerhalb der Zelle durchführen zu können. Der Schmelzofen verfügt hierzu über spezielle Verbindungen, die durch entsprechende Manipulatorwerkzeuge fernhandlungsfähig lösbar und montierbar sind. Abb. 7 vermittelt die Einbausituation in der mit Fernhandlungstechnik ausgerüsteten Schmelzofenzelle anhand einer 3D-Darstellung. Abb. 8 gestattet einen Blick von oben in die vergleichbare fernhandlungsfähige Schmelzofenzelle der inaktiven Prototypverglasungsanlage (PVA) des INE.

Literatur

- G. Roth, *atw* 40. Jg. (1995) Heft 3
- G. Roth, S. Weisenburger *Nuclear Engineering and Design* 202 (2000), pp. 197-207
- S. Weisenburger *NUCEF'98, Ibaraki (Japan) Nov. 16-17, 1998; Proceedings* pp. 241-251