

UTILISATION D'UN MELANGE TRIPHASIQUE PRESSURISE
GRAPHITE-EAU-OXYGENE EN INCINERATION
DIRECTE DE GRAPHITE IRRADIE

G. ANTONINI - UNIVERSITE DE COMPIEGNE - CENTRE DE
RECHERCHE DE ROYALLIEU - BP 233
60206 COMPIEGNE CEDEX

JP. PEROTIN . P. CHARLOT - Société des Techniques
en Milieu Ionisant - 9 rue Fernand Léger -
91190-GIF-sur-YVETTE

THE UTILIZATION OF A PRESSURIZED-GRAPHITE/WATER/OXYGEN
MIXTURE FOR IRRADIATED GRAPHITE INCINERATION

The authors demonstrate the interest of the utilization of a pressurized-graphite/water/oxygen mixture in the incineration of irradiated graphite. The aqueous phase comes in the form of a three-dimensional system that traps pressurized oxygen, the pulverulent solid being dispersed at the liquid/gas interfaces. These three-phasic formulations give the following advantages :

- reduction of the apparent viscosity of the mixture in comparison with a solid/liquid mixture at the same solid concentration;
- reduction of the solid/liquid interactions;
- self-pulverizability, thus promoting reduction of the flame length ;
- utilization of conventional burners;
- reduction of the flue gas flow rate ;
- complete thermal destruction of graphite.

INTRODUCTION

Dans le cadre du démantèlement de réacteurs nucléaires UNGG, les auteurs proposent un nouveau procédé visant la destruction complète du graphite irradié par incinération directe à haute température, d'un mélange triphasique graphite/eau/oxygène (PG-WOM pressurized/graphite/water/oxygen mixture).

Le transport en conduit de solides divisés en vue de l'alimentation d'enceintes de réaction est classiquement réalisé grâce à deux vecteurs :

- le transport pneumatique, par lequel le solide divisé est convoyé en conduite sous forme d'une dispersion gaz/solide pseudo-homogène, ou bien sous forme d'un lit mobile aux plus faibles vitesses;
- le transport dense en phase " slurry " dans lequel le solide divisé est convoyé en conduite sous forme d'une suspension solide/liquide se comportant comme un fluide pseudo-homogène visqueux.

Les auteurs ont choisi une troisième voie qui consiste à utiliser une solution intermédiaire, à savoir le transport du graphite divisé sous forme d'une dispersion gaz/solide/liquide. Le mélange triphasique en question consiste en une mousse chargée, pressurisée présentant des caractéristiques rhéologiques intermédiaires entre un liquide et un gaz compressible. La phase liquide se présente sous forme d'un réseau cellulaire tridimensionnel, structuré, emprisonnant le gaz sous pression, et dans lequel le solide divisé se répartit aux interfaces liquide/gaz.

LES "MOUSSES CHARGÉES" - MISES EN OEUVRE - PROPRIÉTÉS

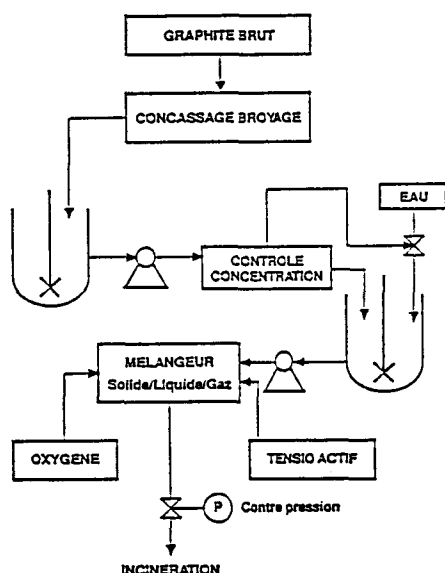


Schéma de principe de création de la mousse

La première étape consiste à concasser puis à broyer les chemises ou empilements de graphite. Afin d'obtenir un "slurry" ayant une granulométrie telle que 80% des grains obtenus soient inférieurs à 200 μm .

Comme l'indique le schéma ci-contre le mélange est obtenu par dispersion en continu du slurry obtenu dans une mousse pressurisée (foisonnement gaz/liquide en enceinte sous pression). Naturellement une étape de laboratoire permet de fixer le choix des agents tensio-actifs et stabilisants nécessaires au foisonnement et à la stabilité de la mousse.

Le mélange obtenu (mousse chargée) est compressible et les variations de sa masse volumique en fonction de la pression sont bien décrites par une équation d'état analogue à celle de Van Der Waals, dans laquelle le co-volume est le volume de la phase incompressible du mélange (solide à l'empilement compact plus eau interstitielle).

Ainsi le mélange triphasique, pressurisé lors de la phase de préparation est susceptible de transport en conduite par auto-détente par simple ouverture de vanne, ce qui permet par exemple, de supprimer les pompes de transport (fuites, érosion...), mais aussi de bénéficier de propriétés d'auto-pulvérisation du mélange lors de son introduction en enceinte de réaction.

De plus, cette formulation triphasique, permet de minimiser les contacts solide/solide, par aération du produit, abaissant ainsi sa viscosité apparente par rapport à la viscosité qu'aurait le produit en mélange solide/liquide à même concentration massique en solide. Autrement dit, la teneur massique en solide peut atteindre 80 à 85% dans la mousse pressurisée, alors qu'elle ne peut guère dépasser 60 à 65% dans un "slurry", et ce avec une relative indépendance à :

- la nature du solide (physico-chimie de l'interface solide/liquide), ce qui permet de limiter le choix des agents tensio-actifs à des molécules banales (agent moussant) et donc peu coûteuses ;
- la répartition granulométrique du solide divisé, ce qui permet de s'affranchir de la recherche de répartition multimodale en fluidification de mélanges solide/liquide.

La présence de liquide dans le mélange, par exemple ici l'eau, permet, malgré sa faible teneur, de supprimer les risques d'explosion dans les étapes de préparation et de manutention. De plus, ceci permet d'envisager l'utilisation de broyages en phase humide à l'amont de la préparation, et donc de minimiser les risques d'explosion ou d'envol dans les étapes de broyage.

Le produit fini peut être aisément chassé des conduites de transport ou d'injection par utilisation de gaz comprimés en cas d'indisponibilité du procédé aval (arrêt d'incinération par exemple). Le mélange peut être ainsi transféré dans un réservoir de confinement où la mousse chargée peut être "cassée" par dispersion d'agents anti-mousse, autorisant la minimisation du volume de l'enceinte de repos.

LE FOUR CYCLONE

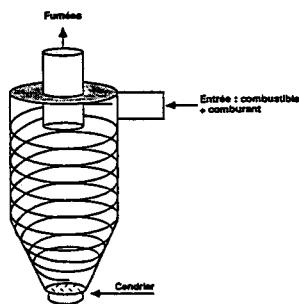


Schéma de principe de fonctionnement du foyer cyclone

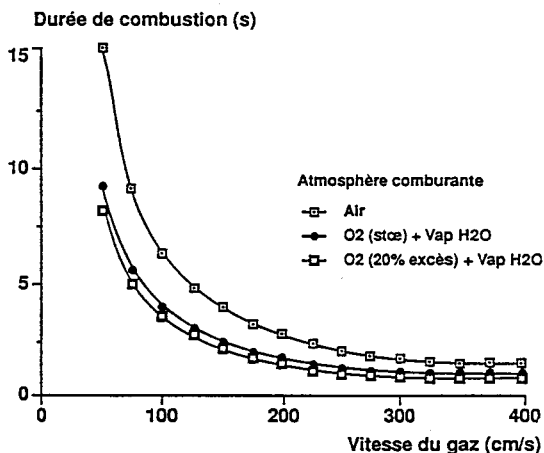
Le choix d'un foyer cyclone a constitué une alternative très intéressante pour la destruction du graphite, matériau difficile à incinérer parce que ne renfermant aucune matière volatile. Comme l'indique la figure ci-contre, le foyer utilise les mêmes principes aérodynamiques qu'un séparateur solide/gaz fonctionnant à froid.

L'entrée tangentielle du combustible/comburant (mélange gaz et particules solides) à très haute vitesse permet la centrifugation des particules vers les parois qui a pour effet de les désolidariser de la veine gazeuse ; de ce fait, elles séjournent plus longtemps dans le foyer et leur combustion s'en trouve améliorée ; ceci d'autant plus que l'effet cyclone provoquant une forte turbulence, les contacts combustible/comburant sont améliorés.

Le rôle de séparateur gaz/solide permet en outre aux cendres ou imbrûlés d'être évacués par le cendrier situé à la base du four.

INTERET DE L'OXYGENE

Le choix de l'oxygène comme gaz de formulation et combustion permet :



Comparaison de la cinétique de combustion d'un grain de graphite de 200 μm pour différentes compositions d'atmosphères comburantes

- l'amélioration de la cinétique de combustion des particules solides (voir courbe ci-contre)
- l'augmentation de la température adiabatique de flamme;
- la suppression des oxydes d'azote dans les produits de combustion;
- la réduction du volume d'effluents gazeux à traiter. Ainsi pour un même débit massique de graphite incinéré soit 150 kg/h et une même température d'incinération (1200°C), le débit volumique des fumées produit avec le procédé PG-WOM est de 1080 Nm³/h (dont 48% d'eau) alors qu'il serait de 2250 Nm³/h dans le cas d'un lit fluidisé.

CONCLUSION

L'intérêt de ce procédé réside dans sa sûreté liée à l'utilisation des " mousses chargées " en graphite, dans la qualité de la combustion grâce à l'auto-pulvérisation des mousses et à l'utilisation d'un four cyclone et dans l'écologie du procédé limitant le volume des fumées à traiter et évitant le dégagement d'oxydes d'azote.