

- Section de Chimie de Haute Activité -

- PROLIXE -

**Installation de décontamination en émetteurs alpha
de déchets irradiants**

M. LECOMTE ; R. SONTAG ; C. MADIC ; J. BOURGES

*Communication présentée lors de la 26ème réunion plénière du groupe de travail
"Laboratoires chauds - Télémanipulations"
de la Commission des Communautés Européennes
les 23 et 24 Septembre 1987 à ISPRA (Italie)*

- SCHA/87/294/ML/fm -
Septembre 1987

I. INTRODUCTION

Le Service des Etudes de Procédés dispose d'un parc d'une douzaine de cellules blindées dans le bâtiment de radiochimie du Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses.

Ces cellules blindées sont utilisées pour deux programmes principaux :

- les études de retraitement des combustibles nucléaires des réacteurs à eau pressurisée (combustible conventionnel et MOX) et des réacteurs à neutrons rapides,
- la production d'isotopes séparés d'éléments transuraniens obtenus par traitement de cibles spécifiques irradiées (^{242}Pu , ^{243}Am , ^{244}Cm) ou par récupération de produits de décroissance (^{240}Pu , ^{241}Am).

Ces procédés font appel à des opérations d'hydrométallurgie :

- dissolution de combustibles ou de cibles en solution aqueuse,
- extraction liquide-liquide, en batterie de mélangeurs-décanteurs, en colonne pulsée ou par chromatographie d'extraction,
- séparation par précipitation-filtration.

L'ensemble de ces activités génère environ 10 m^3 par an de déchets solides contaminés par des isotopes radioactifs : produits de fission et d'activation, émetteurs bêta-gamma, et éléments transuraniens, émetteurs alpha.

Le niveau de contamination en émetteurs alpha de ces déchets interdit leur évacuation dans un site de stockage en surface ou en sub-surface (activité alpha $> 0,1 \text{ Ci/t}$).

A l'heure actuelle, ces déchets sont simplement compactés, enrobés dans un mortier de ciment bitumineux, puis entreposés en surface en attente d'un site d'évacuation en profondeur.

Ce mode de gestion coûteux et précaire a conduit à la construction d'une installation dans l'optique de réduire l'activité alpha des déchets à une valeur aussi basse que possible et en tout cas inférieure à $0,1 \text{ Ci.t}^{-1}$ afin d'assurer leur évacuation définitive en stockage de surface.

Cette nouvelle installation, dénommée PROLIXE (PROTOTYPE de LIXIVIATION et d'Enrobage), utilise un procédé de décontamination par lixiviation des déchets broyés avec des solutions aqueuses spécifiques.

Les études de laboratoire montrent que ce procédé permet d'atteindre des facteurs de décontamination en émetteurs alpha de 20 à 30.

II. CARACTERISTIQUES DES DECHETS AVANT TRAITEMENT

Les déchets sont constitués en moyenne de 70 % en masse de matières organiques diverses et de 30 % de verre, acier inoxydable ou non et métaux non ferreux.

Les matières organiques sont les suivantes : polyéthylène, chlorure de polyvinyle, polyméthacrylate de méthyle, produits cellulosiques et élastomères.

Les déchets sont contaminés par divers émetteurs α , β , γ dont les produits de fission (principalement : ^{155}Eu , ^{154}Eu , ^{147}Pm , $^{144}\text{Ce}/^{144}\text{Pr}$, ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{125}Sb , $^{106}\text{Ru}/^{106}\text{Rh}$, $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ et $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) et les isotopes transuraniens (^{252}Cf , ^{244}Cm , ^{243}Am , ^{241}Am , ^{242}Pu à ^{238}Pu et ^{237}Np).

L'activité volumique moyenne due aux émetteurs alpha est voisine de 1 Ci/t avec occasionnellement des valeurs très supérieures.

Le débit de dose gamma dû aux produits de fission atteint une valeur moyenne de 20 Rad/h pour un conteneur standard (type "La Calhène") de 15 à 20 l de déchets.

Le bâtiment de radiochimie produit annuellement environ 600 conteneurs "La Calhène" de déchets contaminés α , β , γ .

III. INSTALLATION PROLIXE

III.1. OBJECTIFS

Les opérations à mettre en oeuvre dans la cellule blindée PROLIXE ont les objectifs suivants :

- réduire le volume des déchets par un facteur le plus grand possible ;
- décontaminer ces déchets en émetteurs α , β , γ jusqu'à une valeur de contamination alpha résiduelle inférieure à 0,1 Ci/t ;
- conditionner les déchets après décontamination sous forme d'un colis susceptible d'être transporté puis stocké définitivement dans un site de surface ;
- recycler les isotopes radioactifs récupérés, dont en particulier les éléments transuraniens ;
- générer un volume minimal d'effluents.

III.2. DESCRIPTION GENERALE DE L'INSTALLATION

L'installation PROLIXE (Figure 1) est composée d'une enceinte blindée et de 9 postes de travail afférents. Chaque poste de travail est un ensemble équipé d'une paire de manipulateurs maître-esclave (MA 11/80 ou MT 200 "La Calhène"), d'un moyen de vision, comprenant un hublot en verre au plomb et la glace de l'enceinte de confinement alpha, et des équipements d'exploitation.

Les postes de travail sont répartis, pour les 6 premiers dans quatre enceintes de confinement alpha protégées par une paroi de 150 mm de plomb, et pour les 3 restants dans deux zones de travail sous rayonnement à confinement dynamique seul, protégées par une paroi de 100 mm d'acier.

La première enceinte de confinement alpha sert à la réception des déchets contenus dans les poubelles "La Calhène" en provenance de l'installation voisine PETRUS par un convoyeur mécanique et des autres installations du bâtiment, à l'aide d'emballages de transport blindés (RD 15).

Dans la seconde enceinte, les déchets sont triés, puis broyés, selon leur nature.

La troisième enceinte est utilisée pour les lixiviations et le séchage des déchets broyés.

Les déchets secs et décontaminés sont alors transférés dans la quatrième enceinte pour enrobage et constitution du colis final.

Le colis de déchets enrobés est fermé dans la première zone gamma, puis contrôlé dans la seconde zone gamma par mesure de débits de dose γ et neutrons, avant sa sortie hors de l'enceinte PROLIXE (Figure 2).

III.3. PROCEDE DE TRAITEMENT DES DECHETS (Figure 3)

III.3.1. Tri préliminaire des déchets

Après leur introduction dans PROLIXE, les déchets sont sortis de leur conteneur et triés en fonction de leur nature et de leurs aptitudes à être broyés et lixiviés par l'acide nitrique.

Ainsi, les matières plastiques, le verre, les matériaux cellulosiques et élastomères peuvent être broyés et lixiviés à l'acide nitrique.

Les pièces en acier inoxydable ne peuvent être broyées, mais sont lixiviables par HNO_3 . Par contre d'autres pièces à forte teneur en métaux non ferreux doivent être traitées à l'aide d'autres solutions aqueuses.

Environ 85 % de la masse des déchets peuvent être broyés.

III.3.2. Broyage

Les déchets pouvant être broyés (organiques, verre, câbles électriques) sont traités dans un broyeur ROTAC 44136 (AUREC S.A.), équipé de deux lames circulaires montées sur deux axes parallèles. Un moteur électrique de 7,5 kW anime les couteaux à une vitesse de rotation de 66 t.mn^{-1} . Un panier en zirconium contenant une poche filtrante est placé sous le broyeur afin de recevoir les déchets broyés.

Les "broyats" sont constitués de particules de quelques millimètres de longueur.

Le facteur de réduction de volume apparent est voisin de 10.

III.3.3. Lixiviation

La poche filtrante contenant environ 22 litres de déchets broyés est introduite dans le réacteur de lixiviation.

Les déchets sont brassés à l'aide d'une turbine dans la solution d'attaque, constituée de 50 l d'acide nitrique 4 M. Pour la majeure partie des déchets à traiter, le lixiviant contient du nitrate d'argent et passe par un circuit en boucle dans un électrolyseur générant l'espèce oxydante Ag(II). Les ions Ag(II) ont la propriété de dissoudre en milieu nitrique les traces de PuO₂, réfractaire contenues dans les déchets.

A la fin de l'étape de lixiviation, la solution nitrique chargée en isotopes radioactifs est séparée des déchets par filtration, puis stockée en cuve pour analyse avant de subir une concentration d'un facteur 10 par distillation.

Les distillats sont réutilisés pour un nouveau traitement tandis que les concentrats sont transférés dans l'installation PETRUS afin de réaliser la récupération des actinides émetteurs alpha.

III.3.4. Lavage et séchage

Après l'étape de lixiviation, les déchets décontaminés sont lavés dans le but d'éliminer les traces de solution active et de neutraliser l'acide nitrique résiduel présent dans les déchets humides.

Après lavage neutralisant par une solution alcaline, les déchets sont rincés à l'eau jusqu'à obtention d'une solution d'un pH voisin de 7. Les solutions de lavage peuvent être utilisées pour plusieurs traitements et sont ensuite concentrées par distillation.

Les déchets humides neutralisés sont soumis à un traitement par air chaud pulsé pour séchage avant leur enrobage.

III.3.5. Enrobage

Les déchets secs et décontaminés sont introduits, avec un mélange de sable et de résine thermdurcissable, dans un conteneur de 1 m³ de capacité. Ce conteneur est constitué d'un fût en acier de 3 mm d'épaisseur, recouvert intérieurement d'une couche de 50 mm de résine époxyde.

La résine utilisée pour l'immobilisation des déchets est un produit CIBA-GEIGY, obtenu par polycondensation d'épichlorhydrine de glycol sur du diphénol A. Le durcisseur est un produit à base de polyamines.

Cette matrice d'enrobage peut être remplacée par des ciments ou des matrices mixtes ciment-résine époxyde comme variantes du procédé.

Ce mélange sable-résine époxyde retenu présente une viscosité suffisante pour assurer l'homogénéité du colis pendant la phase liquide. Durant l'étape de polymérisation de la résine, la température au coeur du colis reste inférieure à 100°C à condition d'avoir réalisé correctement la neutralisation des déchets.

Cette technique d'enrobage permet d'obtenir un bloc monolithique ne présentant ni retrait, ni fissure (Figure 4).

III.3.6. Contrôles radiométriques du colis

Un contrôle permanent du débit de dose du colis en cours de chargement permet de limiter éventuellement la quantité de déchets introduits. En effet, le colis final ne doit pas générer de débit de dose supérieur à 200 mRem/h au contact ou 10 mRem/h à 1 m (norme de transport).

En cas de dépassement occasionnel de ces valeurs, une protection en plomb complémentaire sera mise en place autour du colis (coque de type RD 16).

Le contrôle de non-contamination du fût est effectué par détection des émetteurs alpha à l'aide de sondes balayant toute la surface externe du fût.

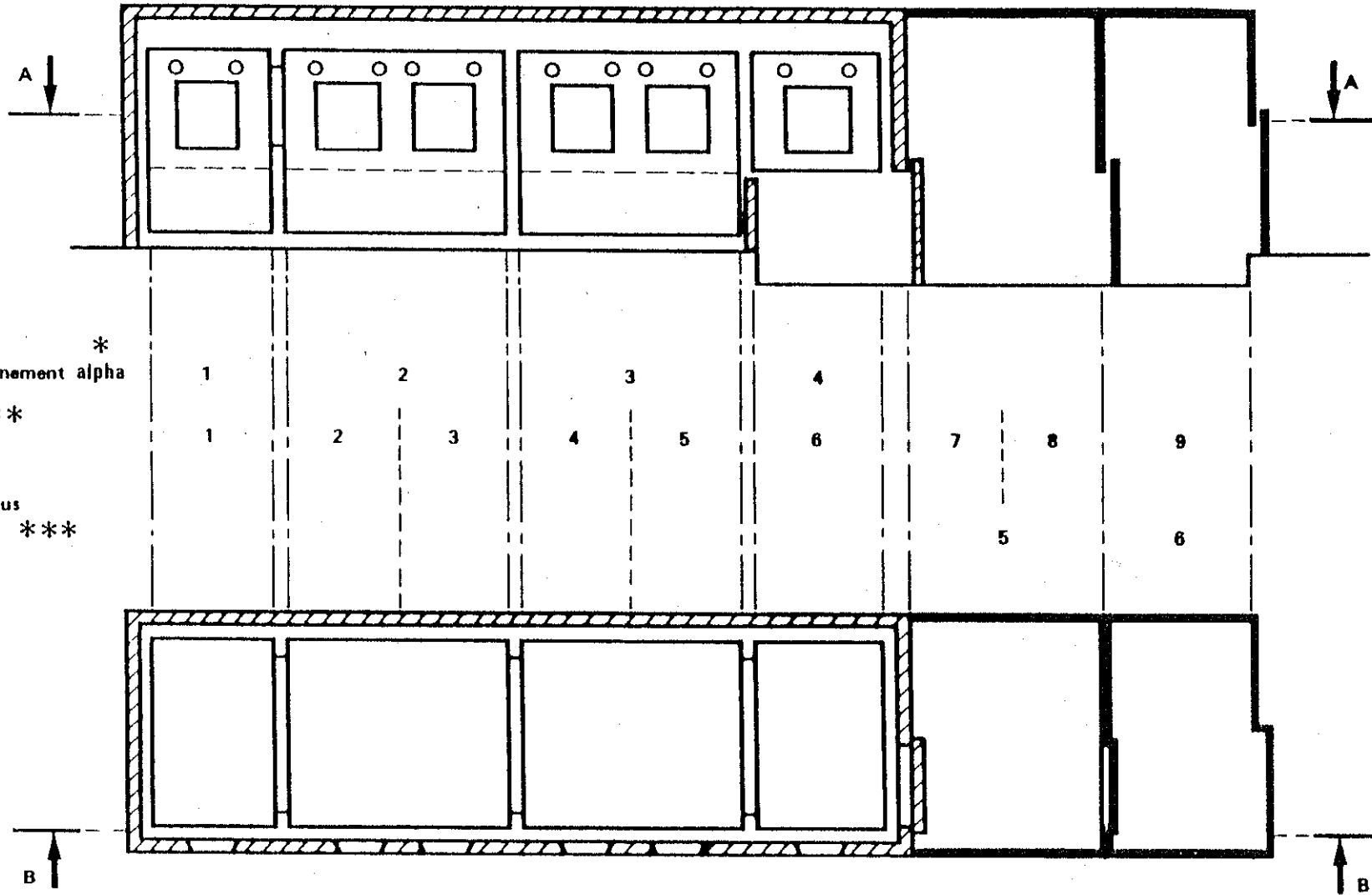
Une fois les contrôles de non-contamination et de débit de dose achevés, le colis est transféré au poste 9, puis sorti de l'installation PROLIXE.

IV. CONCLUSION

Le procédé de traitement des déchets alpha irradiants mis en oeuvre dans l'installation PROLIXE comporte trois opérations essentielles : broyage, lixiviation et enrobage.

- Le broyage a pour buts de réduire le volume des déchets, d'améliorer l'efficacité de la lixiviation par l'augmentation de la surface de léchage des déchets, d'obtenir une répartition plus homogène des déchets dans la matrice d'enrobage avec comme corollaire une uniformisation de la dose intégrée par le colis.
- La lixiviation doit éliminer au maximum les radionucléides, pour accéder à la limite d'activité alpha massique du colis de 0,1 Ci/t, ainsi que les produits chimiques, pour éviter tout risque d'incompatibilité avec la matrice.
- L'enrobage permet de confiner les émetteurs alpha résiduels des déchets lixiviés dans une matrice hydrophobe et aussi inerte que possible de manière à accroître au maximum la résistance du colis à la lixiviation des eaux naturelles.

Coupe BB



*
Enceintes de confinement alpha

**
Postes de travail

Zones de travail sous rayonnement

1	2	3	4	7	8	9	
1	2	3	4	5	6	5	6

Coupe AA

FIGURE 1

ENCEINTES DE CONFINEMENT ALPHA*, POSTES DE TRAVAIL**, ZONES DE TRAVAIL SOUS RAYONNEMENT***

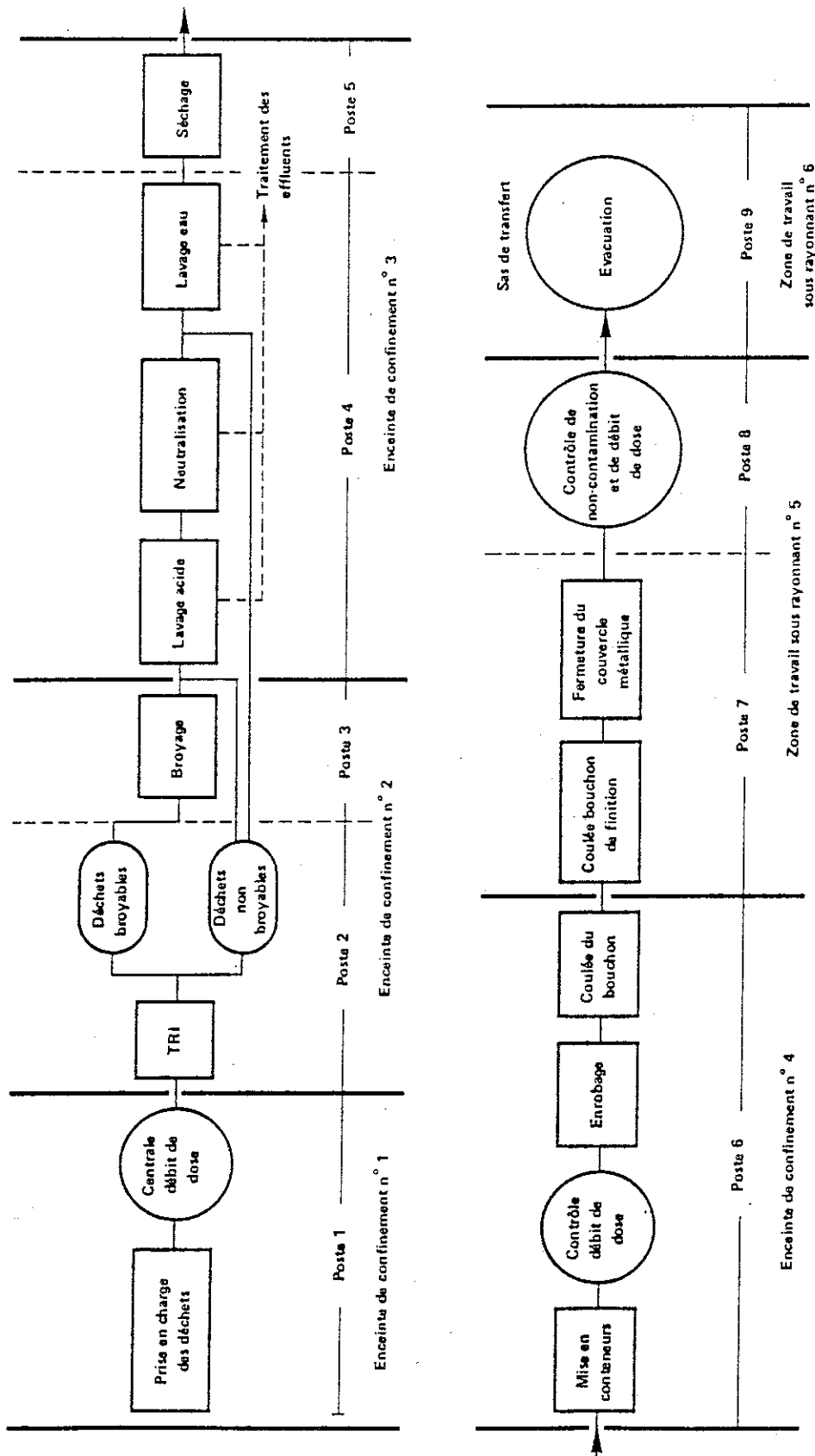


FIGURE 2
SCHEMA DU PROCEDE AVEC REPARTITION DANS LES POSTES DE TRAVAIL

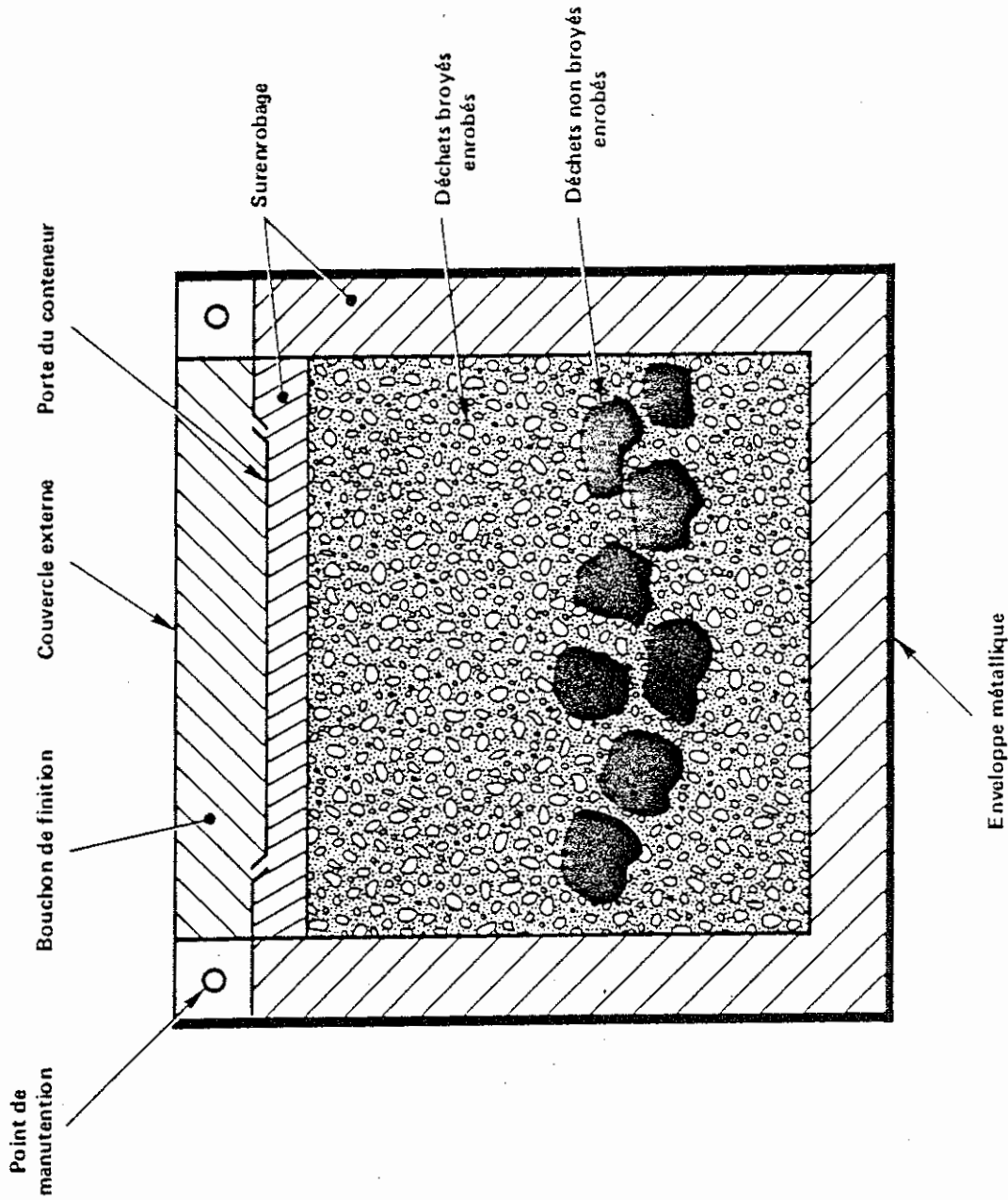


FIGURE 4
COLIS DE DECHETS TRAITES ET ENROBES