

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE
DIRECTION DU CYCLE DU COMBUSTIBLE

PROLIXE
Résultats de deux ans d'exploitation
d'une cellule de traitement de déchets.

M. LECOMTE, C. MADIC, J.C. BROUDIC

GRUPE DE TRAVAIL
"LABORATOIRES CHAUDS ET TELEMANNIPULATIONS
DES COMMUNAUTES ECONOMIQUES ET EUROPEENNES

REUNION PLENIERE A RISØ (DK)

12 et 13 Juin 1990

TABLE DES MATIERES

I - INTRODUCTION

II - PRINCIPE DU PROCEDE

III - L'INSTALLATION PROLIXE

IV - ETAPES ET EQUIPEMENTS DU PROCEDE

V - RESULTATS D'EXPLOITATION

VI - CONCLUSION

I - INTRODUCTION

Les études de retraitement des combustibles nucléaires et les productions d'isotopes d'éléments transuraniens, réalisées dans le bâtiment de Radiochimie du Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, génèrent des déchets solides contaminés par des radioisotopes alpha, bêta, gamma.

Afin de faciliter la gestion de ces déchets, l'installation PROLIXE (Prototype de Lixiviation et d'Enrobage) a été mise en actif en Mars 1988 avec les objectifs suivants :

- développer un procédé de décontamination par lixiviation assurant l'obtention de déchets de contamination alpha résiduelle inférieure à 0,1 Ci/t, compatible avec un stockage en surface ;
- recycler les isotopes radioactifs récupérés dont, en particulier, les éléments transuraniens ;
- définir un schéma de procédé suffisamment flexible pour l'appliquer à des déchets d'origines différentes et conduire à la conception d'une installation industrielle de traitement de déchets solides.

II - PRINCIPE DU PROCÉDE

Le procédé de décontamination des déchets solides est basé sur la technique de lixiviation en milieu nitrique.

Les actinides émetteurs alpha contaminant les déchets peuvent exister sous diverses formes chimiques. Dans le cas où les radio-contaminants sont présents sous forme de nitrate, leur solubilisation en milieu HNO_3 est aisée. Par contre, en cas de contamination par des oxydes, dont principalement PuO_2 , la simple lixiviation nitrique est inefficace.

Néanmoins, la dissolution du bioxyde de plutonium est possible par l'action de Ag(II) , réactif très oxydant ($E_0 \text{ Ag(II)/Ag(I)} = 1,92 \text{ V/ENH}$) capable d'oxyder PuO_2 en ions plutonyles PuO_2^+ et PuO_2^{2+} solubles en milieu nitrique.

Afin de minimiser la quantité de réactif Ag(II) nécessaire au traitement, certains composants des déchets (dont en particulier la cellulose) réagissant avec Ag(II) , la technique de régénération électrolytique du réactif a été retenue. Ce principe de fonctionnement est schématisé à la figure 1.

Après solubilisation de la quasi-totalité des radio-contaminants dans le lixiviant, celui-ci subit une étape de concentration par évaporation permettant le recyclage des distillats pour un nouveau traitement et la récupération des transuraniens valorisables (Pu, Am, Cm) et de l'argent contenu dans les concentrats.

III - L'INSTALLATION PROLIXE

L'installation PROLIXE est composée de 9 postes de travail en enceinte blindée. Chaque poste de travail est un ensemble équipé d'une paire de télémanipulateurs "maître-esclave" de type MA11/80 ou MT200 LA CALHENE, d'un moyen de vision comprenant un hublot en verre au plomb et la vitre de l'enceinte de confinement alpha, et des équipements de procédé.

Ces postes de travail sont répartis, pour les six premiers, dans quatre enceintes en INOX assurant le confinement alpha protégées par une paroi de 150 mm de plomb, et pour les trois restants dans deux zones de travail sous rayonnement à confinement dynamique seul, protégées par une paroi de 100 mm d'acier.

- La première enceinte sert à la réception des déchets solides alpha bêta gamma conditionnés en conteneurs AA29 LA CALHENE en provenance de la cellule blindée voisine PETRUS, par un convoyeur mécanique, et des autres cellules blindées du bâtiment, à l'aide d'emballages de transport en plomb de type RD15.
- Dans la deuxième enceinte, les déchets sont inventoriés, triés puis broyés selon leur nature.
- Les opérations de lixiviation et de séchage des déchets broyés ou des déchets métalliques massifs sont effectuées dans la troisième enceinte.
- 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.
- Le colis fermé est contrôlé dans la seconde zone gamma avant sa sortie hors de l'enceinte.

Les opérations réalisées ainsi que leurs localisations dans l'installation PROLIXE sont présentées à la figure 2.

IV - ETAPES ET EQUIPEMENTS DU PROCÉDE
--

Les principales étapes du procédé sont présentées dans le tableau I.

IV.1 - Tri et broyage

Après leur introduction dans PROLIXE, les déchets sont triés en fonction de leur aptitude au broyage. Les pièces métalliques massives, qui représentent environ 15% de la masse des déchets, ne sont pas broyées.

La composition moyenne des déchets broyables est reproduite au tableau II. Le broyeur est un appareil industriel (ROTAC 44136 AUREC S.A.) équipé de deux lames circulaires montées sur deux arbres parallèles mus par un moteur électrique de 7,5 kw, à une vitesse de rotation de 66 t/mn.

Les broyats sont calibrés à une dimension maximale de 10 mm par une grille métallique placée sous les couteaux du broyeur.

Le débit massique moyen du broyeur est de 24 Kg/h, limité principalement par la présence de la grille.

Le facteur de réduction de volume apparent des déchets après broyage est d'environ 2,5.

En deux années d'exploitation de PROLIXE, plus d'une tonne de déchets ont été triés et broyés. Une fraction de ces déchets a été reconditionnée pour entreposage, l'autre fraction ayant été soumise aux autres étapes du procédé.

IV.2 - Lixiviation

Les deux réacteurs de lixiviation sont constitués de cuves en acier inoxydable (URANUS S1N) de volume interne d'environ 100 l.

Les déchets broyés ou les pièces métalliques massives sont disposés dans une poche filtrante en polypropylène de 50 μm de pouvoir d'arrêt, placée dans un panier perforé en Zircaloy 2. L'ensemble est immergé dans 50 l de solution lixiviante.

Au cours d'une lixiviation de déchets broyés, l'agitation du mélange déchets/lixiviant est assurée par brassage à l'aide d'une turbine à 4 pales en Zircaloy 2, mue à 120 t/mn par un moteur électrique solidaire du couvercle du réacteur.

Dans le cas de déchets massifs, l'agitation est réalisée par bullage d'azote à travers des buses perforées disposées au fond du réacteur.

La circulation de la solution de lixiviation entre le réacteur et l'électrolyseur régénérant l'Ag(II) est effectuée par une pompe centrifuge à un débit de 1 m³/h environ.

IV.3 - Electrogénération d'Ag(II)

L'électrolyseur (fig 3) est constitué d'une cuve en Zircaloy d'un volume utile de 5 l, munie des équipements suivants :

- . Serpentin en Zircaloy à circulation d'eau réfrigérée
- . Dispositif d'agitation : Moteur électrique, couplage mécanique, arbre et pales en Zircaloy,
- . Anode en platine ; grille cylindrique d'environ 1000 cm²
- . Diaphragme en silicate d'alumine ; le compartiment cathodique contenant le catholyte HNO₃ 11N, comprend une cathode en tantale (tube en U avec circulation interne d'eau réfrigérée), une sonde de température, une tubulure d'alimentation d'acide nitrique concentré, une tubulure d'extraction des gaz de réduction.

L'arrivée de la solution à électrolyser se fait par une canalisation solidaire du couvercle de l'appareil, et la sortie de la solution d'Ag(II) est réalisée par trop-plein, via une tubulure en zircaloy vers le réacteur de lixiviation.

La production horaire maximale d'Ag(II), en régime stationnaire et en absence de déchets, est d'environ 1,2 moles d'Ag(II) pour une intensité de courant de 100 A. La figure 4 présente quelques courbes montrant les cinétiques d'électrogénération d'Ag(II).

Notons que le taux de conversion d'Ag(I) en Ag(II) est toujours largement inférieur à 1 car Ag(II) est un réactif instable, réduit par l'eau.

IV.4 - Séchage

Après lixiviation et lavage, les déchets sont séchés par circulation d'air à 60°C. Cette opération est réalisée, sous agitation pour les déchets broyés, dans un réacteur identique à ceux utilisés pour les lixiviations.

La vapeur d'eau contenue dans l'air humide extrait du réacteur de séchage est condensé dans un condenseur. L'air sec issu du condenseur est réchauffé par passage sur des résistances électriques, puis recyclé par soufflage vers le réacteur.

IV.5 - Enrobage

L'enrobage des déchets décontaminés sera réalisé à l'aide de résines époxydes CIBA GEIGY. Il sera entrepris dans des conteneurs métalliques de 200 l possédant un garnissage interne de résine époxyde de 2 cm d'épaisseur, faisant office de surenrobage du monolithe de déchets enrobés. La technique de préparation du colis consiste en la réalisation de strates successives de déchets enrobés, cette technique permettant d'obtenir un enrobage satisfaisant du déchet par la résine époxyde en s'affranchissant des difficultés liées, par exemple, à la mise en oeuvre d'une technique de malaxage.

Des colis inactifs de ce type ont été fabriqués ; 50 kg de déchets peuvent y être enrobés pour une masse totale du colis de 330 kgs.

Aucun colis actif n'a été réalisé à ce jour ; le dossier d'agrément de ce colis est en cours d'analyse auprès de l'ANDRA, organisme officiel chargé, en France, de la gestion des déchets nucléaires.

IV.6 - Recyclage des lixiviats

Les opérations de lixiviation génèrent des volumes importants de solutions chargées en radio-contaminants et en argent. Pour une gestion correcte de ces effluents, il est impératif de recycler l'essentiel du volume de ces solutions vers le traitement ultérieur d'une nouvelle charge de déchets.

La technique retenue est la distillation qui permet de recycler de 90 à 95 % du volume de ces effluents par réutilisation des distillats après ajustage en acide nitrique et en argent.

Pour ce faire, un appareil particulier a été conçu, basé sur le phénomène de thermosiphon et effet cyclone. Seul ce type d'appareil s'est révélé apte à la concentration d'effluents fortement réactifs, par suite d'intenses réactions, entre l'acide nitrique et les substances organiques réductrices provenant des déchets et passées en solution, qui produisent des vapeurs nitreuses (NO_x) et des quantités abondantes de mousses.

Cet appareil compact, d'une puissance de chauffe de 4,4 Kw, délivrée par 4 résistances électrique, a une capacité d'évaporation de 4l/h.

Les facteurs d'épuration des distillats obtenus sont voisins de 10^4 .

IV.7 - Traitement des concentrats

Le traitement des concentrats a deux objectifs : d'une part, la récupération de certains isotopes d'éléments transuraniens ; d'autre part, le recyclage de l'argent.

Ces opérations sont réalisées dans la cellule blindée voisine PETRUS.

La récupération quasi-quantitative du plutonium, de l'américium et du curium des concentrats est réalisée par la technique de chromatographie d'extraction au TBP. Ces éléments sont réutilisés à des fins d'études ou de productions de sources radioactives.

Un procédé de récupération de l'argent par extraction sur zéolithe (MORDENITE) est en cours de mise au point.

Les effluents, débarrassés des émetteurs alpha, sont évacués vers la Station de Traitement des Effluents (STE) de l'usine de la Hague (COGEMA).

<p>V - RESULTATS D'EXPLOITATION</p>
--

V.1 - Lixiviation par HNO₃ seul

L'essentiel des campagnes de lixiviation réalisées à ce jour sont relatives au traitement de déchets broyés par des solutions d'acide nitrique, à température ambiante.

Au total, 13 campagnes de lixiviation portant sur environ 200 kg de déchets ont permis la récupération de 500 Ci d'émetteurs alpha.

Afin de connaître les limites de la technique de lixiviation nitrique, des opérations successives ont été réalisées en utilisant à chaque étape une nouvelle charge de lixiviant. La détermination des performances de décontamination du lot de déchets traité est opérée par analyses radiométriques d'échantillons de déchets prélevés avant et après traitement.

Le tableau III montre les résultats obtenus par lixiviation nitrique de 20 kg de déchets solides contaminés en émetteurs alpha, bêta, gamma.

De l'ensemble des expériences, les remarques suivantes peuvent être dégagées :

- A l'issue d'une lixiviation, le soutirage du lixiviat, même après égouttage des déchets, n'est pas total : environ 4 à 5 l (soit environ 10 % du volume total) de lixiviat subsistent dans le déchet humide. Aussi, même en cas de transfert quantitatif du radio-contaminant du solide vers le lixiviat, des lavages ultérieurs sont nécessaires pour obtenir un facteur élevé de décontamination (FD) du déchet.
- Une fraction non négligeable (5 à 15 %) des déchets se présente sous forme de fines particules qui ne sont pas retenues par le média filtrant du réacteur de lixiviation, et accompagnent le lixiviant dans la boucle de circulation. Avant de transférer les lixiviats vers l'étape de concentration, il est nécessaire d'effectuer une filtration efficace pour récupérer ces "fines", essentiellement constituées de cellulose.

- La quasi-totalité des radio-contaminants sont transférés vers le lixiviant au cours de la première lixiviation, les lixiviations suivantes ne servant qu'à déborder la fraction des radio-contaminants retenue dans le déchet humide.
- Le FD (alpha) voisin de 120 n'est pas suffisant pour atteindre l'objectif de déclassement ; néanmoins, il faut rappeler que :
 - . les déchets étaient initialement très fortement contaminés en émetteurs alpha : environ 700 Ci/t.
 - . la norme de contamination résiduelle correspond à un colis ayant vieilli de trois siècles, aussi la contribution de certains isotopes tels ^{244}Cm ($t_{1/2} = 18,1$ ans) ou ^{238}Pu ($t_{1/2} = 87,7$ ans) sera diminuée.
 - . la norme de 0,1 Ci/t est relative à un colis de déchets enrobés ; dans le cas de l'enrobage par les résines époxydes, le facteur de dilution massique est de 6,6.

Au regard de ces remarques, on peut observer que si l'objectif de déclassement de déchets d'activité alpha moyenne est très certainement accessible par lixiviation nitrique, cet objectif ne peut être que plus facilement atteint par lixiviation "oxydante" par Ag(II)

V.2 - Lixiviation oxydante

La première campagne de lixiviation de déchets par la méthode oxydante à l'Ag(II) s'est déroulée en décembre 1989.

Cette campagne est relative au traitement d'un lot de déchets métalliques très fortement contaminés en émetteurs bêta gamma provenant du démantèlement d'une cellule blindée d'examen de combustibles irradiés (installation RM2 du Centre d'Etudes Nucléaires de FONTENAY-AUX-ROSES)

Ces déchets, d'une masse de 25 kg sont constitués de tubes, de plaques découpées dans des plans de travail et de pièces diverses en acier inoxydable dont l'inventaire complet figure au tableau IV.

Ces déchets ont subi quatre traitements successifs :

. une lixiviation nitrique :

$$V = 40 \text{ l}, [\text{HNO}_3] = 4\text{M}, t = 4 \text{ h}$$

. une première lixiviation oxydante :

V = 60 l, [HNO₃] = 4M, [AgNO₃] = 0,05M, courant d'électrolyse : 80 A, t = 6 h

. une seconde lixiviation oxydante :

V = 60 l, [HNO₃] = 4M, [AgNO₃] = 0,05M, courant d'électrolyse : 80 A, t = 4 h

. un rinçage :

V = 60 l, H₂O, t = 4 h

La première lixiviation oxydante a été effectuée en utilisant la solution de lixiviation nitrique après ajout de nitrate d'argent et complément d'acide nitrique pour favoriser l'immersion des pièces.

- Les observations expérimentales sont les suivantes :

. Au cours de la lixiviation nitrique, la solution prend une coloration bleu-vert caractéristique de la mise en solution des métaux (Fe, Ni, Cr) présents dans les aciers inox.

. La coloration de la solution s'intensifie lors de l'électrolyse, mais la couleur noire caractéristique d'Ag(II) n'apparaît pas. Les ions métalliques en solution s'oxydent, soit en consommant l'espèce Ag(II) dès sa génération, soit directement sur l'anode de l'électrolyseur en compétition avec les ions Ag⁺.

. la coloration caractéristique de la présence d'Ag(II) n'apparaît qu'après 45 mn de fonctionnement lors de la seconde lixiviation oxydante et disparaît après 3h40mn. Les métaux susceptibles de consommer l'argent (II) dès son électrogénération passent plus difficilement en solution, car issus des couches plus profondes de l'inox que lors de la première lixiviation. Au début de la seconde attaque oxydante, la concentration des cations métalliques à valence multiple n'est pas suffisante pour consommer la totalité de l'argent (II) formé à l'anode. Au-delà d'une concentration critique de ces cations en solution, la couleur de l'argent (II) disparaît.

- Les résultats des analyses radiométriques des lixiviats, présentés dans les tableaux V et VI, montrent que des 25 kg de déchets ont été extraits 0,116 Ci d'émetteurs alpha répartis de la façon suivante :

- 41,4 % lors de la lixiviation nitrique,
- 21,6 % lors de la première lixiviation oxydante,
- 33,6 % lors de la seconde lixiviation oxydante,
- 3,4 % lors du rinçage à l'eau.

Rapportée à une tonne de déchets, l'activité alpha extraite correspond à 4,64 Ci dont plus de 50 % est due au ^{244}Cm . La fraction d'activité alpha due au Pu augmente au cours du traitement, ce qui confirme l'efficacité de la lixiviation oxydante pour la solubilisation du PuO_2 .

- L'uranium dissous dans le lixiviats a été dosé par fluorescence X. Les lixiviats de la première et de la seconde attaque oxydante contiennent respectivement 2,10 g et 0,12 g d'uranium.

Ces résultats sont à comparer aux masses de plutonium solubilisées : l'attaque nitrique provoque la mise en solution de 0,039 g de Pu, la première attaque oxydante 0,041 g, la seconde attaque oxydante 0,060 g. Il faut noter que les pourcentages massiques (U/Pu) dans les lixiviats passent de (96,3% / 3,7%) pour la première attaque oxydante à (75% / 25%) pour la seconde, ce qui confirme à nouveau l'intérêt du procédé à l'Ag(II) pour la dissolution du PuO_2 .

- L'activité alpha surfacique résiduelle de chaque pièce a été mesurée avec une sonde à scintillateur. Ces mesures ont permis, connaissant la surface et la masse de chaque pièce, de calculer les activités alpha massiques résiduelles. De l'inventaire de la cinquantaine de pièces, il ressort que la plus contaminée présente une activité de $3,5 \times 10^{-2}$ Ci/t contre $2,2 \times 10^{-4}$ Ci/t pour la moins contaminée.

Une moyenne pondérale a été effectuée sur l'ensemble du lot dont l'activité alpha résiduelle est de $3,5 \times 10^{-3}$ Ci/t.

4,64 Ci/t ayant été extraits au cours des différentes lixiviations, le facteur de décontamination est égal à 1326.

Les déchets ainsi traités satisfont aux normes de stockage en site de surface.

VI - CONCLUSION

La technique de dissolution oxydante connaît en France, depuis le début des études en 1981, des développements spectaculaires. Ainsi, dans le cadre de la production d'Am 241 au Centre d'Etudes Nucléaires de FONTENAY-AUX-ROSES, plus de 35 kg de PuO₂ vieilli ont été dissous par cette technique désormais parfaitement maîtrisée et qui va être appliquée industriellement dans l'usine COGEMA UP3.

Par ailleurs, une installation de traitement de cendres plutonifères utilisant la dissolution par l'Ag(II) électrogénéré va être mise en place à l'usine COGEMA UP1 en 1990.

L'application de cette technique au traitement des déchets alpha, bêta, gamma, a démarré fin 1989 dans l'installation PROLIXE qui a vu s'accroître la maîtrise des autres phases du procédé ; on peut citer :

- le broyage de plus d'une tonne de déchets,
- la lixiviation nitrique de 200 kg de déchets ayant permis le transfert d'environ 500 Ci d'émetteurs alpha vers les lixiviants,
- une campagne de démonstration, portant sur 25 kg de déchets métalliques contaminés par des combustibles irradiés, montrant la faisabilité du déclasserment de tels déchets par lixiviation oxydante,
- le recyclage des lixiviats par distillation,
- la récupération des actinides à partir des concentrats.

De nombreux points restent néanmoins à développer, parmi lesquels :

- l'optimisation du nombre et de la durée de chaque cycle de lixiviation,
- la récupération de l'argent contenu dans les concentrats pour recyclage dans le procédé,
- la constitution de colis de déchets enrobés dans une résine époxyde, qui devrait être opérationnelle fin 1990, sous réserve de l'agrément de l'ANDRA,

- l'application d'une technique de mesure non destructrice de l'activité alpha du colis (interrogation par neutrons actifs ?)

Pour les deux années à venir, outre la poursuite des études de R. et D, l'installation PROLIXE est engagée dans le programme de démantèlement de la cellule blindée RM2 dont l'assainissement doit fournir plus de deux tonnes de déchets alpha bêta gamma qui devront être déclassés par lixiviation oxydante.

L'essentiel des informations acquises lors du développement du procédé de lixiviation de déchets dans PROLIXE a servi à la définition d'une installation industrielle de traitement de déchets solides contaminés en émetteurs alpha bêta gamma : la cellule blindée LEDA, implantée dans le bâtiment ATALANTE (CEN - Valrhô, FRANCE) dont la mise en actif est programmée en Septembre 1990.

ETAPE	OBJECTIF (S)
TRI	- Séparation broyable/non broyable
BROYAGE	- Accroissement de la surface d'échange solide/liquide
LIXIVIATION - HNO ₃ + AgII - H ₂ O	- Transfert quasi-quantitatif des radiocontaminants du solide vers le lixiviant
SECHAGE	- Minimiser la teneur résiduelle en eau pour rendre le déchet décontaminé compatible avec l'enrobage dans les résines époxydes. - Permettre un transfert aisé du déchet décontaminé
ENROBAGE	- Obtention d'un colis acceptable pour un stockage dans un site de surface
CONCENTRATION DES LIXIVIATS	- Recyclage du flux liquide principal vers un nouveau traitement - Minimiser le volume des solutions à traiter afin de récupérer les radiocontaminants et l'argent
TRAITEMENT CHIMIQUE DES CONCENTRATS	- Récupération des radiocontaminants pour réutilisation - Récupération de l'argent pour recyclage

TABLEAU I

TRAITEMENT DES DECHETS SOLIDES =
PRINCIPALES ETAPES DU PROCEDE

MATIERE	% MASSIQUE	TYPE DE DECHETS
P.E*	20	- Flacons échantillons - Bidons 0,25 à 10 dm ³
P.V.C.**	27	- Manches BAG - Feuilles - Tuyaux souples et armés
ELASTOMERES	21	- Gants de BAG - Prégants
PLEXIGLASS	14	- Colonnes de chromatographie - Appareillages
CELLULOSE	14	- Cartons - Papiers - Cotons
VERRE	2	- Appareils de laboratoire - Flacons - pipettes
CUIVRE	2	- Câbles électriques

* P.E. = polyéthylène
** P.V.C. = Chlorure de polyvinyle

TABLEAU II
COMPOSITION MOYENNE DES DECHETS BROYABLES

Déchet à traiter	Masse (kg)	20					
	Activité α	Bq (Ci)	5,22 10 ¹¹ (14,12)				
		Bq/kg (Ci/t)	2,61 10 ¹⁰ (706)				
	Irradiation	β,γ Gy/s (Rad/h)	2,8 10 ⁻⁶ à 3,6 10 ⁻⁶ (1 à 1,3)				
neutrons Gy/s (mRad/h)		2,8 10 ⁻⁸ à 4,2 10 ⁻⁸ (10 à 15)					
N° de lixiviation		1	2	3	4	5	
Lixiviant	HNO ₃ (M)	2	2	2	4	0	
	Volume (dm ³)	40	40	40	40	40	
Durée s (h)		10800 (3)	14400 (4)	10800 (3)	32400 (9)	25200 (7)	
Activité α désorbée Bq (Ci)	²⁴⁴ Cm	2,1 10 ¹¹ (5,7)	4,4 10 ¹⁰ (1,2)	1,1 10 ¹⁰ (0,3)	1,4 10 ⁹ (0,038)	3,7 10 ⁸ (0,001)	
	²⁴¹ Am	7,8 10 ¹⁰ (2,1)	2,4 10 ¹⁰ (0,66)	7,4 10 ⁹ (0,2)	1,1 10 ⁹ (0,03)	2,9 10 ⁸ (0,008)	
	²³⁸ Pu	9,0 10 ¹⁰ (2,45)	2,8 10 ¹⁰ (0,77)	7,8 10 ¹⁰ (0,21)	1,1 10 ⁹ (0,03)	2,6 10 ⁸ (0,007)	
	²³⁹ ²⁴⁰ Pu	7,4 10 ⁹ (0,2)	2,3 10 ⁹ (0,063)	1,6 10 ⁹ (0,043)	3,3 10 ⁸ (0,009)	< 3,7 10 ⁸ (< 10 ⁻³)	
	Total lixiviation	3,8 10 ¹¹ (10,45)	9,9 10 ¹⁰ (2,693)	2,8 10 ¹⁰ (0,753)	3,9 10 ⁹ (0,107)	= 6,3 10 ⁸ (=0,017)	
	Total campagne	5,19 10 ¹¹ (14,02)					
Déchet décontaminé	Masse après égouttage (kg)	17,5					
	Activité α	Bq	3,8 10 ⁹ [1,5 10 ⁹ (²³⁸ Pu), 7,8 10 ⁸ (²³⁹ , ²⁴⁰ Pu)				
		Bq/kg (Ci/t)	2,14 10 ⁸ (5,8) [8,9 10 ⁸ (²⁴¹ Am), 6,3 10 ⁸ (²⁴⁴ Cm)				
	F.D.	122 [77(²³⁸ Pu) 14(²³⁹ ²⁴⁰ Pu) 110(²⁴¹ Am) 373(²⁴⁴ Cm)					
Irradiation	β,γ Gy/s (Rad.h ⁻¹)	2,8 10 ⁻⁸ à 5,6 10 ⁻⁸ (1 à 2.10 ⁻²)					
	neutrons Gy/s(mRad.h ⁻¹)	= 2,8 10 ⁻⁹ (= 1)					

TABLEAU III

EXPERIENCE DE LIXIVIATION DE DECHETS αβγ

NATURE	NOMBRE	POIDS g	IRRADIATION mrad.h ⁻¹
bac 310x80x50	1	500	<4000
plaque 270x200x4	1	1020	<4000
plaque 270x200x4	1	550	<4000
plaque 270x200x4	1	1020	<4000
plaque 270x200x4	1	550	<4000
plaque témoin 1 205x205x3	1	1010	85
plaque témoin 2 205x205x3	1	1070	70
godet	1	400	1500
tubes ϕ 13x15 L150	2	800	1700
tube ϕ 40x42 L330	1	400	1500
tubes ϕ 13x15 L150	4	1600	1700
supports d'échantillon	4	800	1500
fourreau ϕ 40 L150	1	200	2500
axe ϕ 40 L300	1	1000	?
bac 150x150x40	1	240	<4000
bac 200x180x40	1	560	<4000
bac 250x70x50	1	520	<4000
bécher ϕ 80 h120	1	230	<4000
bécher ϕ 80 h100	1	170	<4000
"tube écrasé" ϕ 55 L230	1	360	<4000
bécher ϕ 140 h70	1	290	<4000
"tube écrasé" ϕ 55 L260	1	910	<4000
"tube écrasé" ϕ 35 L170	1	620	<4000
bécher ϕ 80 h120	1	230	<4000
"tube écrasé" ϕ 40 L240	1	880	<4000
tube ϕ 39x42 L300	1	1200	100000
tube ϕ 39x42 L250	1	800	60000
conteneur ϕ 39x42 L150	1	500	20000
porte aiguilles ϕ 55 L150	1	300	40000
vanne L100	1	200	15000
tube ϕ 39x42 L150	1	150	40000
tube ϕ 26x29 L150	1	200	<7000
tube ϕ 39x42 L150	1	150	40000
tube ϕ 39x42 L100	1	100	60000
tube ϕ 55 L100	1	200	1000
tube ϕ 39x42 L50	1	100	30000
tube ϕ 39x42 L50	1	50	1000
tube ϕ 21 L300	1	800	20000

TABLEAU IV
INVENTAIRE DES PIÈCES MÉTALLIQUES RM2

Etape	Volume solution en l	Activité en mCi/l	Activité totale solution en mCi	Pourcentage cumulé en %
Lixiviation nitrique	40	1,19	48	41,4
Lixiviation oxydante I	60	1,22	(48) + 25	62,9
Lixiviation oxydante II	60	0,65	39	96,6
Rinçage	60	0,07	4	100

TABLEAU V
ACTIVITE ALPHA DES LIXIVIATS

Etape	Pourcentage d'activité α des radiocontaminants
Lixiviation nitrique	Am241, Pu238 : 24.3 Cm244 : 68.3 Pu239 : 7.4
Lixiviation oxydante I	Am241, Pu238 : 27.8 Cm244 : 62.3 Pu239 : 9.9
Lixiviation oxydante II	Am241, Pu238 : 19.2 Cm244 : 67.1 Pu239 : 13.7
Rinçage	Am241, Pu238 : 40.9 Cm244 : 59.1 Pu239 : 1.1

TABLEAU VI
COMPOSITION EN RADIOCONTAMINANT ALPHA DES LIXIVIATS

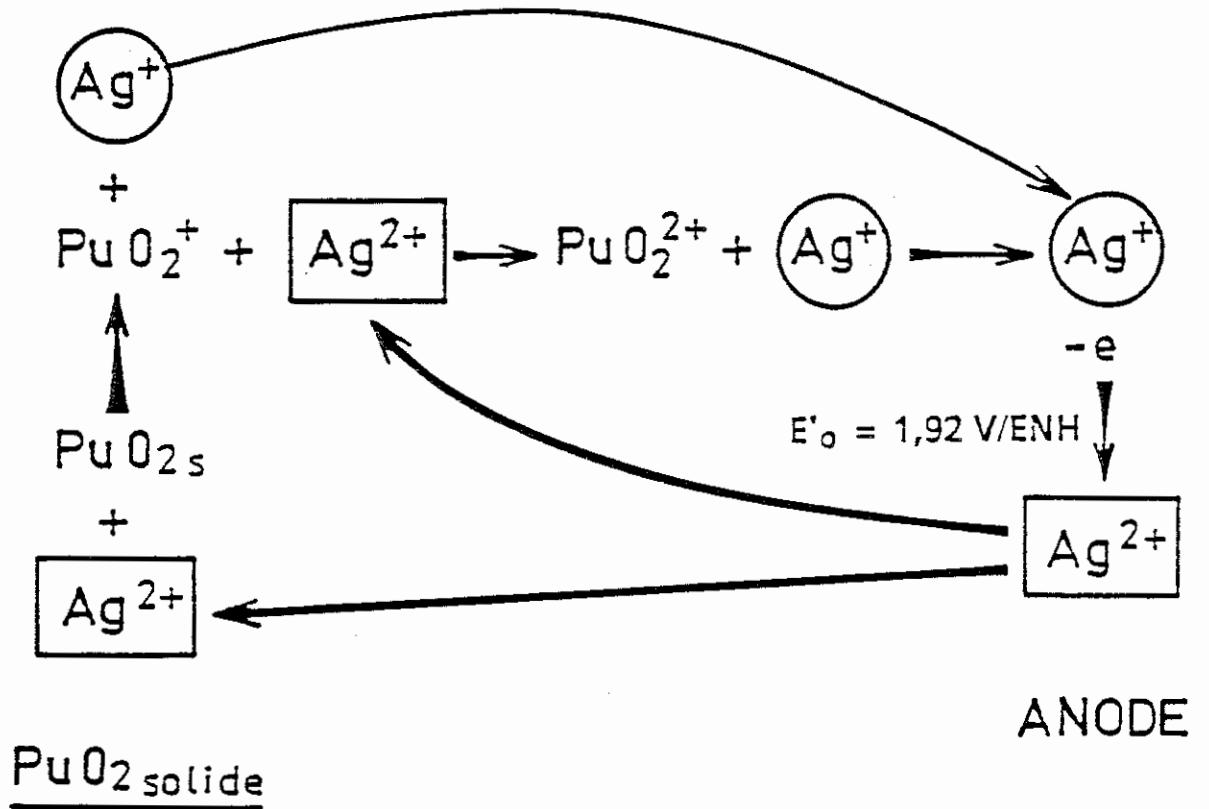


FIGURE 1

DISSOLUTION DE PuO₂ PAR Ag²⁺ ELECTROGENERE
- SCHEMA DE PRINCIPE -

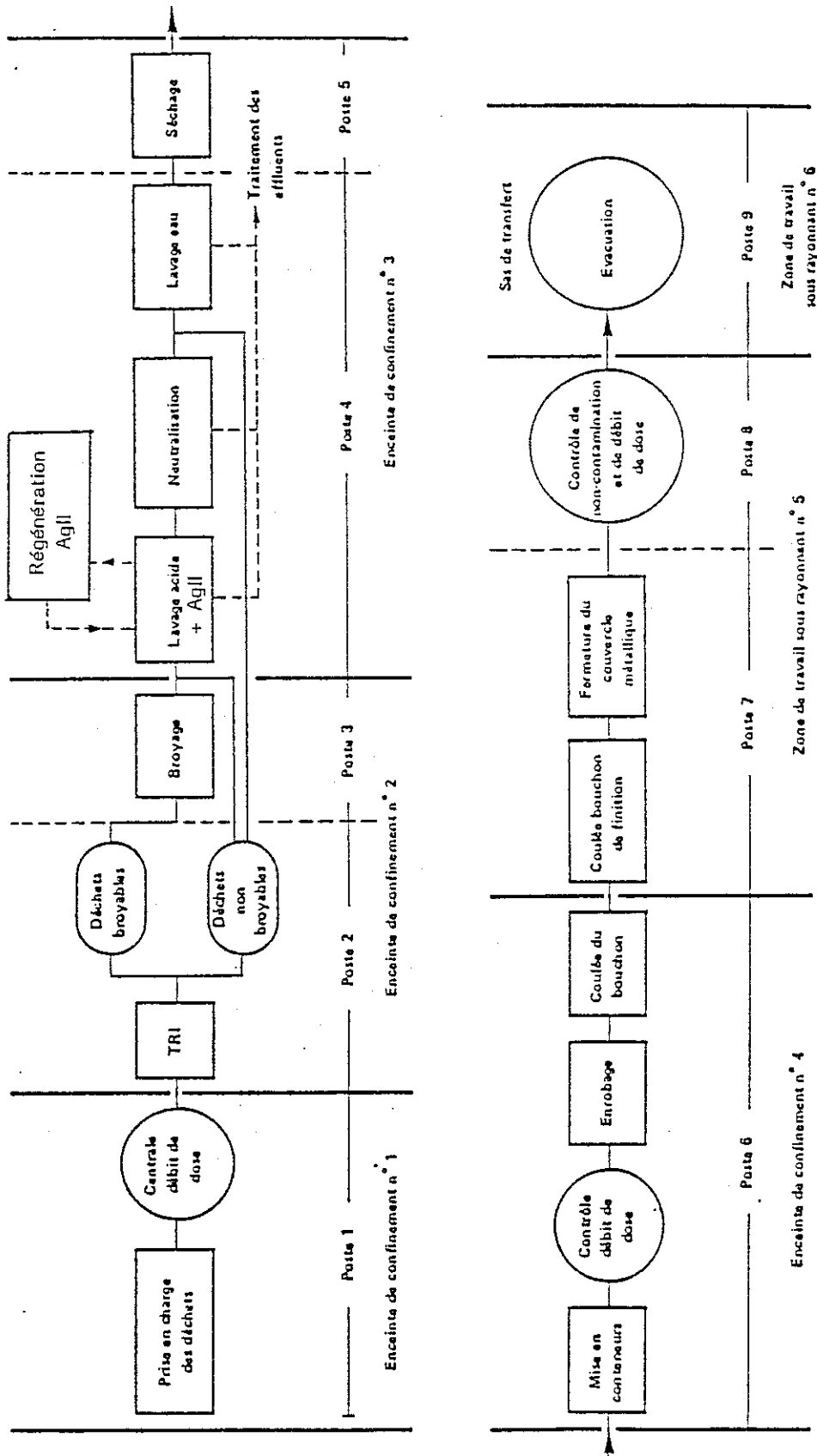


FIGURE 2
PROLIXE = SCHEMA DU PROCEDE AVEC REPARTITION DANS LES POSTES DE TRAVAIL

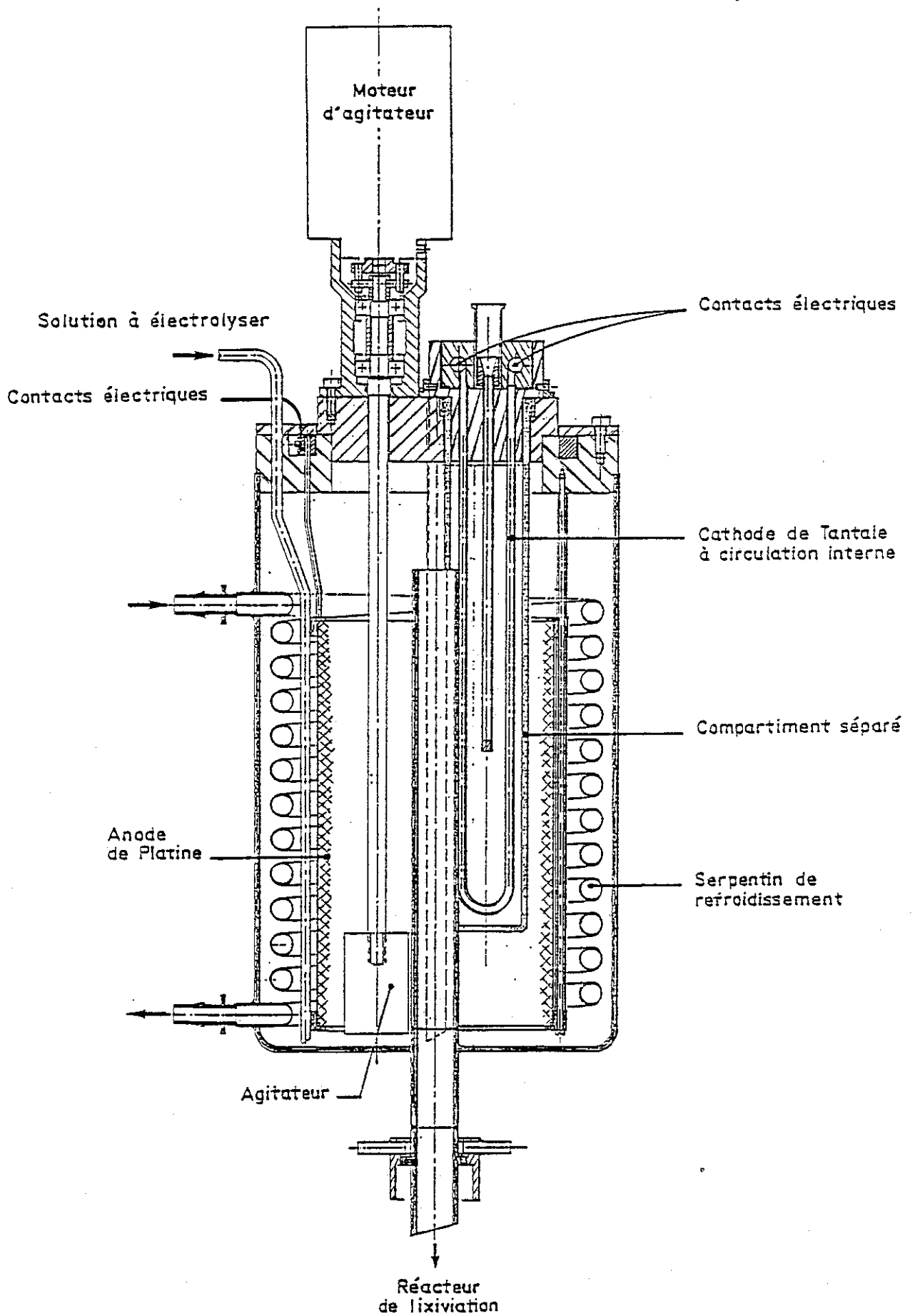
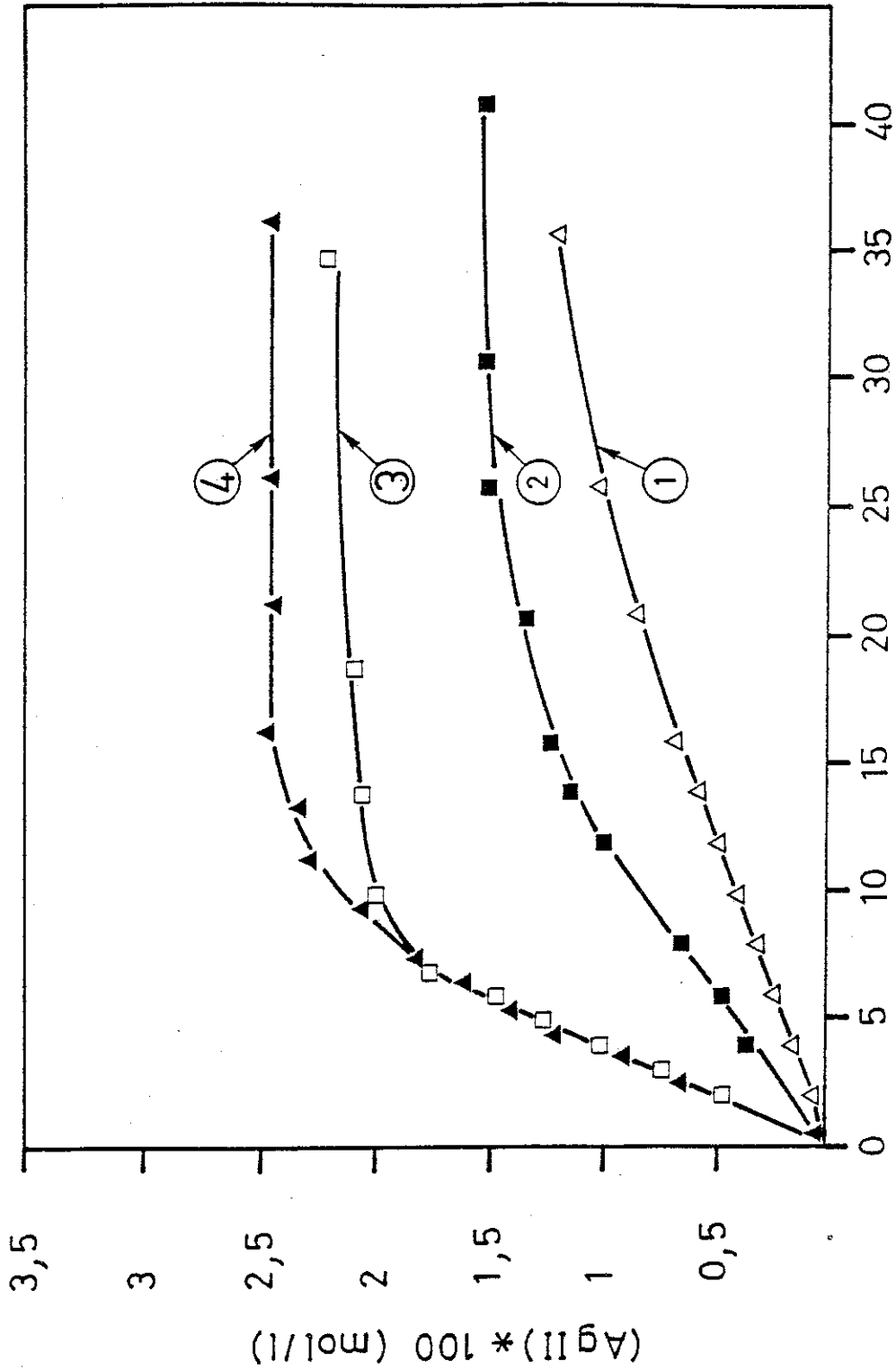


FIGURE 3

ELECTROLYSEUR SERVANT A GENERER AgII

LEGENDES

I = 10 A (courbe 1), 20 A (courbe 2), 100 A (courbes 4 et 6)
Anolyte = HNO₃ 4M, AgNO₃ = 0,1M, Vt = 12dm³, température = 23°C



Durée D'électrolyse (mn)

FIGURE 4

Cinétique de génération d'AgII par électrolyse
Conditions : Anolyte = HNO₃ = 4M ; AgNO₃ = 0,1M - Vol = 12dm³
Courant, I (A) = 10 (1), 20 (2), 100 (3 et 4)