

**AMELIORATIONS APPORTEES AUX TRAITEMENTS
DES RESIDUS RADIOACTIFS**

par

Gérald WORMSER, Jean RODIER, Emmanuel DE ROBIEN

Nicolas FERNANDEZ

Rapport C E A - R 2651

Genève 1964, A Conf. 28/P/86

mère un peu plus approfondie, les trois sujets suivants .

- 1 - Atelier de conditionnement par bituminage des boues provenant de la concentration des radio-nucléides, .
- 2° - Atelier de traitement des déchets solides radioactifs et combustibles par incinération
- 3° - Ensemble de concentration des effluents liquides radioactifs par évaporation.

Dans le domaine de la recherche, de nombreuses voies ont été abordées ; nous en ferons l'inventaire.

Il s'agit, dans la plupart des cas, de la concentration des radio-nucléides en vue d'un stockage pratique et peu onéreux, concentration associée à une décontamination efficace, et le meilleur marché possible, des liquides aqueux, en vue de leur rejet.

Pour l'amélioration des traitements aboutissant à la concentration des radio-nucléides, nos recherches ont naturellement porté sur l'amélioration des traitements utilisés en France : la coprécipitation et l'évaporation. . /.

1 - The workshop for treating with bitumen the sludge obtained after concentration of radio-nucléides.

2 - The workshop for treating radioactive solid waste by incineration.

3 - A unit for concentrating radio-active liquid effluents by evaporation.

In the field of research, several topics have been undertaken, a list will be given.

In most cases the research concerns the concentration of radio-nucléides with a view to a practical and low cost storage : a concentration involving an efficient decontamination of the aqueous liquids in the best possible economic conditions.

For improving the treatments leading to the concentration of nucleides, our research has naturally been concerned with perfecting the treatments used in France : coprecipitation and evaporation

In our work we have taken into account in particular two conditions laid down in the French Centres . /.

C1 A-R 2651 - Suite 1

Dans nos études, nous avons tout spécialement tenu compte des deux conditions imposées dans les Centres français :

- 1° - Tri très sévère des effluents à la source, afin de limiter dans chaque catégorie, le volume des liquides à traiter.
- 2° - Nécessité d'une décontamination très complète liée à la forte densité de population de notre pays.

Dans un dernier chapitre, nous présenterons l'étude de deux méthodes originales de traitement d'effluents liquides :

- 1° - L'emploi de résines échangeuses d'ions pour des liquides relativement chargés en sel.

Les résines sont utilisées sous forme sodique ; le régénérant à cet effet est une solution de sel de sodium qui, après décontamination par coprecipitation, est réutilisée. Ce procédé permet d'obtenir un volume de boue plus réduit. ./.

C1 A-R 2651 - Suite 3

1 - A very strict sorting out of the effluents at their source in order to limit in each category the volume of liquid to be dealt with.

2 - The necessity for a very complete decontamination due to the high population density in our country.

In the last part we present two original methods for treating liquid effluents

1 - The use of ion-exchange resins for liquids containing relatively many salts

The resins are used in the sodium form, the regeneration is carried out using a sodium salt solution which, after decontamination by coprecipitation is used again. With this process it is possible to use a smaller volume of sludge

2 - The use of a natural evaporator

This process uses atmospheric air which is not saturated with water ./.

2° - L'utilisation d'un évaporateur naturel.

Ce procédé utilise l'air ambiant non saturé d'humidité et à température ordinaire, pour extraire l'eau des effluents aqueux.

1964 - Commissariat à l'Energie Atomique - France

16 p.

vapour and which is at a normal temperature, in order to extract water from the aqueous effluents.

1964 - Commissariat à l'Energie Atomique - France

16 p.

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème.

The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème.

AMELIORATIONS APPORTEES AUX TRAITEMENTS DES RESIDUS RADIOACTIFS

par

Gérald WORMSER, Jean RODIER, Emmanuel de ROBIEN, Nicolas FERNANDEZ

Commissariat à l'Energie Atomique

I - INTRODUCTION

La densité de la population française et sa sensibilisation aux problèmes de pollution radioactive ont amené, depuis de nombreuses années, le Commissariat à l'Energie Atomique à faire des études sur le traitement des effluents radioactifs. De nombreuses recherches et réalisations ont été faites dans ce domaine.

Du point de vue réalisations, diverses stations pour la concentration des effluents peu ou moyennement actifs ont été construites : les procédés utilisés ont pour base soit la coprécipitation, soit l'évaporation.

Nous ne nous référerons, dans cette communication, qu'aux réalisations des Centres de Grenoble et de Marcoule, les autres seront traitées dans une autre communication.

Dans le domaine de la recherche, de nombreuses voies ont été étudiées, mais toutes tiennent compte du principe général suivant : obtenir la concentration des sels radioactifs contenus dans les effluents, mettre en forme les résidus radioactifs concentrés avant leur stockage et rejeter sans danger les effluents décontaminés.

Dans ce cadre, le Service de Chimie étudie plusieurs modes de concentration des radionucléides. Cet exposé présente plus particulièrement deux procédés qui nous paraissent très intéressants.

II - AMELIORATION des TRAITEMENTS d'EFFLUENTS

1° Traitement des liquides aqueux

Dans tous les Centres Atomiques français, on effectue "à la source" un tri très sévère des effluents selon leur contamination, ce qui permet de diminuer le volume des liquides à traiter. La charge en sels dissous de ces effluents est souvent importante et seule une concentration par coprécipitation peut alors être utilisée efficacement. Toutefois, dans certains Centres d'Etudes, une proportion plus ou moins importante des liquides collectés est peu chargée en sels et peut être concentrée par évaporation.

A - L'évaporation

Le premier évaporateur en fonctionnement pour le traitement des effluents radioactifs des Centres d'Etudes Nucléaires français a été construit à Grenoble où il est exploité depuis Octobre 1962.

Ce type d'installation a été choisi en raison :

- de la nature variée en quantité et en qualité des rejets radioactifs liquides,
- du fort taux de décontamination exigé en raison de la politique adoptée en matière de rejets,
- de la forte capacité nécessaire pour traiter les effluents radioactifs des piles en cas d'incident.

Cette installation est à simple effet et recompression mécanique de la vapeur. Le distillat passe avant compression à travers un cyclone et un filtre à laine de verre. L'évaporation peut être conduite au débit de $1 \text{ m}^3/\text{h}$ et jusqu'à une teneur en sel de 400 g/l pour les concentrats. Le facteur de décontamination varie entre 10^{+6} et 10^{+7} . Actuellement, les volumes traités sont de $100 \text{ m}^3/\text{mois}$. L'activité moyenne varie entre 10^{-3} et $10^{-2} \text{ Ci/m}^3 \beta \gamma$. L'activité maximale traitée est de $10^{-1} \text{ Ci/m}^3 \beta \gamma$.

Cette installation est conçue de façon à permettre :

- un investissement aussi faible que possible,
- un prix de revient d'exploitation peu élevé.

Elle est située dans une zone contenant :

- un bâtiment de décontamination,
- un incinérateur,
- le stockage et le conditionnement des déchets solides.

La conception de l'ensemble fait ressortir le souci de rendre aussi logique que possible la circulation des effluents solides et liquides.

Les concentrats sont solidifiés par mélange de vermiculite et de ciment dans des pots en fer. Ces pots sont ensuite enrobés de béton, dans la station de bétonnage des déchets solides.

Les améliorations apportées au cours des opérations concernent :

- le filtre à laine de verre :

choix d'une laine de granulométrie la plus efficace,
disposition des cartouches

- les dispositifs anti-mousse

casse-mousse par rampes d'arrosage à la vapeur

- les circuits de décontamination

- les solutions utilisées pour la décontamination.

Des essais ont été effectués :

- à l'acide nitrique,

- avec des acides organiques faibles et à pouvoir complexant.

Des études sont en cours, en vue d'évaluer les problèmes de corrosion qui pourraient apparaître à long terme. Le démontage du faisceau tubulaire, après un an de fonctionnement, ne laisse apparaître aucune amorce de corrosion, bien que l'évaporateur ait traité quelques solutions aqueuses chlorées.

Le prix de revient de l'installation (évaporation, traitement des boues et bâtiment) est de 1 400 000 F.

B - La coprécipitation.

Le traitement des effluents radioactifs par coprécipitation a été largement employé par le C.E.A. depuis une dizaine d'années.

Les premières décontaminations d'effluents par ce procédé utilisèrent la précipitation de phosphate de calcium pour l'entraînement des radioéléments. Par la suite, les études de laboratoires et les remarques d'exploitants permirent l'amélioration du traitement : remplacement du phosphate de calcium par le phosphate de strontium, puis par le carbonate de calcium, emploi de la précipitation du ferrocyanure de nickel pour la décontamination en césium.

Un exemple marquant de l'amélioration progressive du traitement des effluents radioactifs dans une installation de coprécipitation est celui du Centre de Production de Plutonium de Marcoule.

a) L'expérience "Marcoule"

- Généralités.

L'évolution des traitements des effluents de ce Centre est d'autant plus intéressante qu'elle se rapporte à des opérations d'ordre industriel, qui sont, dans ce domaine, les plus importantes du C.E.A.

Malgré les difficultés d'application d'un traitement par coprécipitation, la grande stabilité des opérations effectuées dans les ateliers de production et la collaboration étroite entre ces ensembles et la Station de traitement, ont permis d'obtenir des résultats constants dans la décontamination des effluents liquides. Compte tenu de la nocivité différente des diverses familles de radioéléments en présence, les traitements retenus doivent être d'une application facile, avoir une bonne efficacité, ceci surtout vis-à-vis des éléments les plus nocifs, et être d'un prix de revient acceptable.

- Améliorations réalisées et résultats obtenus.

Les effluents sont séparés à Marcoule en fonction de leur niveau spécifique de radioactivité ; c'est ainsi qu'il existe les "moyenne activité" et "haute activité". [1] Pour chacune de ces catégories, des traitements différents sont appliqués.

Avant 1960, si les résultats de décontamination permettaient de maintenir les rejets dans les limites des normes admissibles pour la population, ils limitaient l'évolution des activités du Centre. D'autre part, il était intéressant d'avoir, pour les rejets en question, une marge de sécurité la plus grande possible.

La décontamination en strontium 90 était très mauvaise ; ce radioélément était très nocif, il entraînait pour une très large proportion dans la nuisance des rejets et il importait d'en retenir la plus grande partie.

La décontamination en ruthénium n'était pas meilleure, il était souhaitable d'en retenir le maximum.

Le tableau comparatif (N°I) donne les résultats obtenus avant et après la mise en place des améliorations de traitement.

Les traitements correspondant aux résultats ci-dessus sont indiqués dans le tableau N°II.

Il est intéressant de noter les progrès réalisés dans l'élimination des éléments suivants :

- pour le strontium 90 dans les 2 catégories, à l'aide du traitement carbonate de calcium,
- pour le ruthénium en "Haute Activité" par le traitement hydroxyde ferreux,
- pour le césium en "Haute Activité" en fixant tout simplement mieux le pH.

Par contre, on constate peu d'amélioration pour le césium et le ruthénium "Moyenne Activité" ; pour ces éléments, le FD est toujours faible, alors que pour le zirconium et le cérium, l'élimination est importante dans tous les cas. Le césium ne se rencontrant qu'à l'état de traces en catégorie "Moyenne Activité", sa nuisance reste faible.

Le ruthénium représente 95 % environ de la radioactivité résiduaire dans les effluents rejetés, et pour cette raison, fait l'objet de nombreuses études.

Le facteur de concentration ($\frac{\text{volume effluent}}{\text{volume boue}}$) reste toujours égal à 60 environ.

- Améliorations projetées.

Le laboratoire de recherche appliquée de la Station de Traitement d'Effluents, qui est à la base de l'évolution déjà enregistrée, poursuit ses travaux avec les objectifs suivants :

- mise au point d'un traitement de coprécipitation efficace vis-à-vis du ruthénium sous toutes ses formes ioniques (l'hydroxyde ferreux n'est efficace que vis-à-vis du ruthénium cationique).

- Augmentation du facteur de concentration, c'est-à-dire diminution du volume relatif des boues produites :

soit dans le seul domaine de la coprécipitation,

soit dans l'association de la coprécipitation et d'un traitement à l'aide de résines échangeuses d'ions.

D'autre part, nous citerons les réalisations en cours au stade industriel, dont les objectifs immédiats sont les suivants :

- traitement des boues par enrobage dans du bitume. Ce sujet fait l'objet d'un chapitre spécial dans cette communication.

- aménagements des traitements de l'atelier de production, qui auront pour effet de détourner des effluents une partie importante du ruthénium.

Le profit que ces aménagements apporteront aux rejets du Centre de Marcoule est évalué à une augmentation d'environ 7 du facteur de décontamination, si l'on considère les activités actuelles des effluents avant traitement.

Il s'agit des modifications suivantes :

- la mise en service de la dissolution continue, qui éliminera les effluents relatifs en pelage chimique des barreaux et en rinçage des paniers.
- le recyclage dans le premier cycle des pieds de colonne du deuxième cycle, ce qui aura pour effet de supprimer cet effluent,
- transformation de la décontamination solvant, qui permettra de concentrer, sous forme de nitrates neutres les solutions alcalines obtenues, de pouvoir stocker temporairement ces solutions obtenues représentant un faible volume.

En mettant à profit la courte période du 103 Ru (40 j) et celle, pas trop élevée du 106 Ru (1 an), on obtiendra un facteur d'atténuation suffisant pour les traiter alors à la Station de Traitement des Effluents du Centre.

b) Autres études de coprécipitation

Les perfectionnements apportés aux concentrations par coprécipitation ont été le fruit d'une collaboration constante entre les Services chargés de l'exploitation des stations de traitement d'effluents qui ont à coeur d'améliorer sans cesse leurs résultats et les Services d'études qui, sur des effluents synthétiques, mettent au point de nouveaux procédés d'épuration.

Les études sur effluents synthétiques sont effectuées dans deux directions principales :

- essais de décontamination d'effluents particuliers, difficiles à épurer,
- traitements nouveaux réalisés afin d'obtenir soit de meilleures décontaminations, soit des volumes de boues plus restreints..

Pour illustrer le premier groupe de ces études, nous citerons un exemple : un Centre Nucléaire a prévu la possibilité d'avoir à traiter un effluent complexe, très chargé en sels et en particulier en fluor, ammonium, aluminium, et pollué par des produits de fission et des produits dus à la corrosion d'acier inoxydable (fer, chrome, cobalt).

La précipitation de carbonate de calcium, dans ce cas particulier, ne permet pas une décontamination suffisante du cobalt, du chrome et bien entendu du césium.

Des essais de laboratoire sur un effluent reconstitué ont permis de mettre au point un traitement en deux phases d'une efficacité suffisante, à savoir :

- précipitation de carbonate de calcium et d'hydroxyde ferreux (pour la décontamination en chrome) dans une première phase,
- précipitation de ferrocyanure ferrique (à pH = 4 à 6) pour la décontamination simultanée en césium et en cobalt (complexé en milieu basique).

Les expériences de laboratoire ont été complétées par des essais sur un pilote (débit 400 l/h) qui ont permis en particulier de se rendre compte de la nécessité de faire une précipitation simultanée de ferrocyanure ferrique et de nickel pour obtenir (après addition de séparan), une bonne coagulation et un précipité de ferrocyanure facile à filtrer.

Parmi les autres études effectuées sur des effluents reconstitués, nous citerons la mise au point de traitements simplifiés pour certains liquides; ainsi une simple précipitation de chaux et de sel ferreux permet une bonne décontamination d'effluents très chargés en sels et pollués uniquement par du plutonium et de l'uranium.

Dans des effluents où la nocivité principale est due à du ^{90}Sr , la précipitation de carbonate de strontium est d'une efficacité supérieure à la précipitation de carbonate de calcium (100 ppm de Sr précipité sous forme de carbonate, par addition de 3 000 ppm de CO_3Na_2 avec addition de 50 ppm de Ca, conduit à une décontamination équivalente à celle obtenue par précipitation de 2 500 ppm de calcium - le volume de résidu étant réduit d'un facteur 6).

Dans certains effluents, la décontamination en césium, qui nécessite un traitement spécial (ferrocyanure de nickel ou de fer) a pu être obtenue avec des doses d'adjuvant réduites (≤ 100 ppm) donnant naissance à des volumes de boues plus faibles, grâce à l'addition de certains adjuvants de floculation.

2° Traitement des boues par enrobage dans du bitume

Les traitements chimiques par coprécipitation que subissent les effluents aqueux radioactifs, donnent naissance à des boues radioactives minérales dont la teneur en eau est élevée (50 à 80 %). Ces boues correspondent à une suspension de micelles colloïdales ou de cristaux salins sur lesquels sont absorbés des radioéléments. Leur fluidité relative exige un conditionnement donnant toutes garanties de sécurité au stockage.

L'idée de bloquer les radioéléments par un liant et de passer directement d'une suspension aqueuse à un solide dont la structure est homogène et inerte vis-à-vis des milieux de stockage (sol, mer, etc.), a conduit à l'enrobage des boues radioactives par le bitume.

Le choix du matériau d'enrobage s'est porté sur le bitume en raison de ses qualités physico-chimiques : grand pouvoir d'adhérence, excellent isolant, plasticité, inertie vis-à-vis de la plupart des agents chimiques, insolubilité dans l'eau. Il faut cependant noter que tous les types de bitume ne sont pas satisfaisants ; l'étude nous a conduits à n'utiliser que des bitumes de distillation directe.

A - Principe de la méthode.

La méthode d'enrobage des boues par le bitume est basée sur la technique du procédé par effluence. Ce procédé consiste à éliminer, dans un premier stade de préenrobage, la majorité de l'eau de constitution des boues (82 à 89 %), en réalisant un mastic bitumineux composé des éléments solides de la boue et d'un type de bitume donné. Le préenrobage consiste à verser le bitume chaud (125°C) dans les boues chauffées à 60°C et additionnées d'agents tensioactifs qui provoquent la mise en émulsion du bitume dans la suspension aqueuse formée par les boues. Cette émulsion, rendue volontairement instable, est presque instantanément rompue. Après rupture de l'émulsion, l'eau de constitution des boues exsudant du mastic formé est relarguée et éliminée.

Les agents tensioactifs incorporés augmentent la qualité de l'enrobage bitume-sels minéraux des boues, en favorisant la dispersion rapide des particules pigmentaires ou colloïdales hydrophobes au sein du bitume également hydrophobe.

Au stade préenrobage, la majorité de la contamination que représentent les radioéléments adsorbés sur les sels minéraux des boues est bloquée. Mais le mastic obtenu contient encore de 7 à 20 % d'eau et la dispersion des particules minérales dans le bitume n'est pas parfaite.

Il faut alors, dans un deuxième stade d'enrobage, diminuer la viscosité du mastic bitumineux pour faciliter la dispersion, en portant le mélange à une température de 130°C à 140°C. Cette température minimum déterminée expérimentalement correspond à une viscosité du produit suffisante pour permettre son écoulement et à une teneur en eau de "l'enrobé" inférieure à 0,2 %.

B - Avantages et inconvénients

L'élimination d'une grande partie de l'eau de constitution des boues par un processus physico-chimique favorise la réduction de volume et de poids du déchet enrobé final.

Le résidu global coulé constitue, après refroidissement, un bloc plastique homogène, imperméable et peu sensible à l'érosion : quoique monolithique, il résiste bien aux chocs. Du fait de sa plasticité, l'enveloppe ne peut subir de rupture et ainsi sont augmentées les garanties de sécurité en ce qui concerne la dispersion de l'activité.

La tenue à l'irradiation du bitume est satisfaisante au-dessous d'une dose de 1.10^9 rads, ce qui offre toute garantie de bonne conservation de l'enveloppe bitumineuse pour des boues radioactives de l'ordre de 10 Ci/t. De même, du fait de l'inertie chimique et biologique du bitume, le déchet enrobé ne subit ni développement de micro-organismes, ni attaque superficielle. Les boues enrobées ont une parfaite tenue à l'enfouissement dans le sol et à l'immersion.

Une étude de diffusion de l'activité effectuée en laboratoire sur des boues radioactives enrobées, immergées dans l'eau ordinaire à différents pH et dans l'eau de mer, a permis de constater la faible dispersion des radioéléments dans ces milieux. A titre d'exemple, le rapport de diffusion au bout de 454 jours d'immersion est de l'ordre de 5.10^{-5} dans l'eau ordinaire et de 7.10^{-4} dans l'eau de mer pour des boues ayant, au départ, une activité spécifique de 1,2 Ci/t.

Le prix des matières premières mises en oeuvre pour l'enrobage reste peu élevé. Dans l'installation en cours de construction, qui permettra de traiter 600 litres de boues à l'heure, il sera dépensé 55 F de matière par tonne de boues à enrober.

Les inconvénients concernent surtout la technologie de l'enrobage ; ils sont liés aux caractéristiques physiques mêmes du bitume qui conduisent à des opérations s'effectuant à chaud, avec un très mauvais coefficient de transfert thermique.

C - Traitement des déchets par incinération.

En plus des boues provenant de la concentration des liquides radioactifs et pour lesquels nous venons d'exposer un procédé de traitement, il existe, dans

les Centres, une grande variété de déchets dont le volume peut être réduit par incinération; deux incinérateurs existent actuellement au C.E.A., un au Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, l'autre au Centre de Production de Marcoule. Nous allons les décrire brièvement.

a) Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble.

L'incinérateur du CEN-G fonctionne depuis 1961. C'est un pilote de faible capacité (8 kg/h). Il est destiné :

- au traitement des effluents biologiques (animaux et végétaux),
- à l'incinération des produits organiques combustibles contaminés.

Il est alimenté par un brûleur au propane, et un brûleur auxiliaire destiné aux produits organiques.

Le dispositif d'épuration comporte un cyclone, un scrubber avec recirculation des jus d'arrosage et une cheminée.

Le facteur de décontamination de l'ensemble d'épuration varie entre 50 et 10^2 , ce qui est suffisant, étant donné les faibles activités présentes à l'origine (de l'ordre de 10^{-9} Ci/g). Le débit d'air au travers de la cheminée est de l'ordre de $1\ 500\ m^3/h$, ce qui conduit du reste à penser que cette dilution serait presque suffisante pour assurer l'efficacité du système.

Aucune corrosion grave n'a été encore observée, malgré le peu de précautions prises dans ce domaine au moment de la construction.

Le prix de l'installation a été de 30 000 F.

Le débit annuel est de l'ordre de 400 kg.

b) Centre de Production de Marcoule

Au Centre de Marcoule, l'installation a été conçue en éliminant un certain nombre de difficultés et en s'intégrant dans un cadre financier assez étroit. L'utilisation d'aciers spéciaux, très onéreux, a été écartée mais un soin particulier a été apporté à la sécurité de fonctionnement.

Il est apparu en premier lieu que pour assurer un bon fonctionnement de l'installation, le triage préalable des déchets était indispensable ; ceci pour éviter l'introduction de pièces métalliques altérant les grilles et de flacons de solvants ou de fines poussières risquant de provoquer une explosion.

- Principe de l'installation.

Dans l'installation choisie, la combustion se fait dans un four en briques réfractaires suivi d'une chambre de détente à post-combustion. Après refroidissement, les gaz sont épurés par voie sèche.

Mis à part le sas de chargement étanche avec opercules à joints gonflables, l'incinérateur est composé d'une chambre de combustion et d'une chambre de post-combustion séparées par un empilement de réfractaires en nid d'abeille. Une porte pare-feu en réfractaire protège le sas de chargement et une cheminée d'explosion avec clapet de sécurité taré est installée sur la voûte du four.

Deux plans de grilles inclinées et horizontales séparent le foyer du cendrier ; ils sont tous les deux basculants. La mise à feu et l'entretien de la combustion sont assurés par des brûleurs à propane, au nombre de deux en chambre de combustion et de quatre en chambre de post-combustion. Le système d'évacuation des cendres est prévu, soit par la face avant du cendrier pour les grosses cendres et les scories, soit par gravité sous forme de boues qui seront conditionnées avec du bitume.

L'ensemble refroidisseur des fumées est composé d'un échangeur à air frais à double étage ; le premier abaisse la température de 1 000°C à 400°C, le second de 400°C à 150°C. Le nettoyage des tubes est assuré par un dispositif de ramonage automatique à air comprimé.

L'ensemble de filtration des fumées est composé de trois éléments :

- a) un préséparateur cyclonique qui permet de capter les poussières dont le diamètre est égal ou supérieur à 10 μ ,
- b) un caisson de filtres à manches à décolmatages automatiques captant les suies d'un diamètre égal ou supérieur à 1 μ ,
- c) un caisson de filtration avec des filtres absolus dont le pouvoir d'arrêt est de 99,97 % pour les particules d'un diamètre moyen de 0,3 μ .

En dernier lieu, les gaz refroidis dans un caisson de pulvérisation circulent dans une colonne de lavage ébonitée où ils sont définitivement neutralisés par ruissellement à contre-courant d'eau sodée à pH = 9 .

- Résultats obtenus.

L'installation a une capacité horaire d'incinération de 100 kg. Les essais ont montré que le rapport de réduction de volume obtenu pour les cendres sèches est de 1,2 % et le rapport de réduction de poids de 4,0 %. Les températures de fonctionnement normal sont de 1 000°C dans les chambres de combustion et de post-combustion, et de 130°C à l'entrée des dispositifs de filtration. Les résultats de l'épuration des gaz sont satisfaisants. Le pouvoir d'arrêt de l'ensemble cyclone et préfiltres est de 95 % ; celui du caisson de filtration absolue est de 99,9 % .

Les inconvénients majeurs de l'installation sont liés aux risques d'explosion, d'incendie et de corrosion rapide. Les premiers sont en grande partie éliminés par le triage préalable qui exclut de la combustion les solvants, et les fines poussières. Le risque de corrosion galopante doit pouvoir être réduit en limitant l'introduction de produits chlorés ou fluorés.

III - ETUDES ORIGINALES de CONCENTRATION d'EFFLUENTS RADIOACTIFS

En plus des expériences déjà citées et qui ont pour but l'amélioration du traitement des effluents dans des installations d'épuration en fonctionnement ou en construction, le C.E.A. a effectué des recherches pour la mise au point de nouvelles méthodes de traitement.

A - Etudes à l'aide de résines échangeuses d'ions.

C'est ainsi que des essais ont été faits en vue d'utiliser des résines échangeuses d'ions pour la concentration des effluents faiblement radioactifs.¹⁾

Les échangeurs organiques sont d'un emploi courant pour la décontamination et la purification des liquides peu chargés en sels dissous (eau de refroidissement de réacteur, ou de piscine de stockage d'éléments irradiés); nous avons cherché à étendre cette utilisation à la décontamination d'effluents radioactifs chargés en sels.

- a) Principe de la méthode : une colonne de résine cationique est utilisée pour la concentration des cations radioactifs et inactifs (autres que le sodium) contenus dans le liquide traité. Lorsqu'une fuite de radioactivité

1) Ces essais ont été effectués au Service de Contrôle des Radiations et de Génie Radioactif, par MM. Bourdrez, Girault et Wormser.

commence à se manifester, les résines sont régénérées par une solution concentrée de sel de sodium. Le régénérant, de volume restreint, est soumis alors à un traitement d'épuration par coprécipitation et peut, après décontamination, être rejeté ou réutilisé ultérieurement. Le schéma 1 précise les diverses phases de l'opération.

- b) Résultats obtenus : les essais de laboratoire ont été effectués sur des colonnes contenant 40 cm^3 de résines cationiques (polystyrène sulfoné). L'effluent, avant passage sur résine, est neutralisé, filtré, réacidifié à pH 3,5; Il contient alors 7 g/l de sel de chlorure de sodium et environ 400 mg/l d'ion calcium. Le début de la fuite d'activité (due au césium) a lieu après percolation de $3\ 600 \text{ cm}^3$ de liquide, soit 90 fois le volume du lit. Le volume de régénérant utilisé est de 110 cm^3 (sel de sodium 4,5 N). Le volume de boues récupéré lors du traitement chimique du régénérant est d'environ 5 cc, ce qui correspond à une réduction de volume total de $\frac{3\ 600}{5} = 720$. Un des intérêts de cette méthode est d'obtenir de bons facteurs de décontamination et une excellente réduction de volume; d'autre part, par ajustement adéquat du pH, ce procédé permet de décontaminer des effluents qui ne peuvent être épurés par voie chimique par suite de l'existence de chélates en milieu alcalin.

B - Evaporation naturelle.

Pour terminer cet exposé des recherches effectuées sur les procédés de traitement des effluents radioactifs, nous citerons les expériences de concentration par évaporation naturelle de liquides faiblement pollués que nous avons réalisées.

- a) Principe de traitement : Les effluents sont dispersés dans une chambre. De l'air est insufflé, on aspire à contre-courant du liquide. Cet air s'humidifie sans toutefois attendre la saturation ; il est ensuite dévésiculé dans une chambre de détente et est rejeté dans l'atmosphère. La liqueur concentrée est recueillie à la base de la chambre de dispersion et recyclée jusqu'à l'obtention de la concentration maximum.

Le schéma 2 montre le processus de concentration.

Ce mode de concentration des effluents utilise l'atmosphère comme milieu de dilution des effluents décontaminés, l'eau y étant rejetée sous forme d'air

humide, dans des conditions cependant telles qu'il n'y ait pas, par la suite, de risque de recondensation et de retombées ultérieures. Ce procédé peut donc offrir un grand intérêt dans les régions sèches où le rendement de l'appareil est accru et où il n'existe guère de possibilités de rejet des liquides décontaminés dans un milieu de dilution aqueux.

Ce traitement, par ailleurs, est économique ; il fonctionne sans chauffage dans un appareil simple, et qui, étant donné la température de fonctionnement, peut être aisément réalisé ou revêtu de matière plastique anti-corrosive.

b) Résultats des essais : nous avons utilisé un appareil pilote pendant 130 jours pour la concentration d'effluents contenant une radioactivité de l'ordre de 10 mCi/m^3 sans jamais attendre, avant dilution dans l'atmosphère, une activité dans l'air humide supérieure à la CMA.

-:-

CONCLUSION

Nous n'avons pas voulu, dans cet exposé, dresser un bilan complet et détaillé des études effectuées sur le traitement des effluents radioactifs en France. Nous avons simplement cherché à résumer l'orientation de ces études et des résultats obtenus, qui mettent à notre disposition un arsenal important de moyens pour combattre la pollution que pourrait créer le rejet inconsidéré de déchets radioactifs.

Références bibliographiques

- [1] Définition des activités tirée de "Energie Nucléaire", vol. 5, N° 4, Juin 1963 :
Moyenne activité : $4 \text{ mCi/m}^3 < \beta < 500 \text{ mCi/m}^3$ (β moyen 100 mCi/m^3)
Haute activité : $0,5 \text{ Ci/m}^3 < \beta < 25 \text{ Ci/m}^3$ (β moyen 2-5 Ci/m^3)
-

Tableau I :

FACTEURS DE DECONTAMINATION DE LA STATION de TRAITEMENT, des
EFFLUENTS de MARCOULE

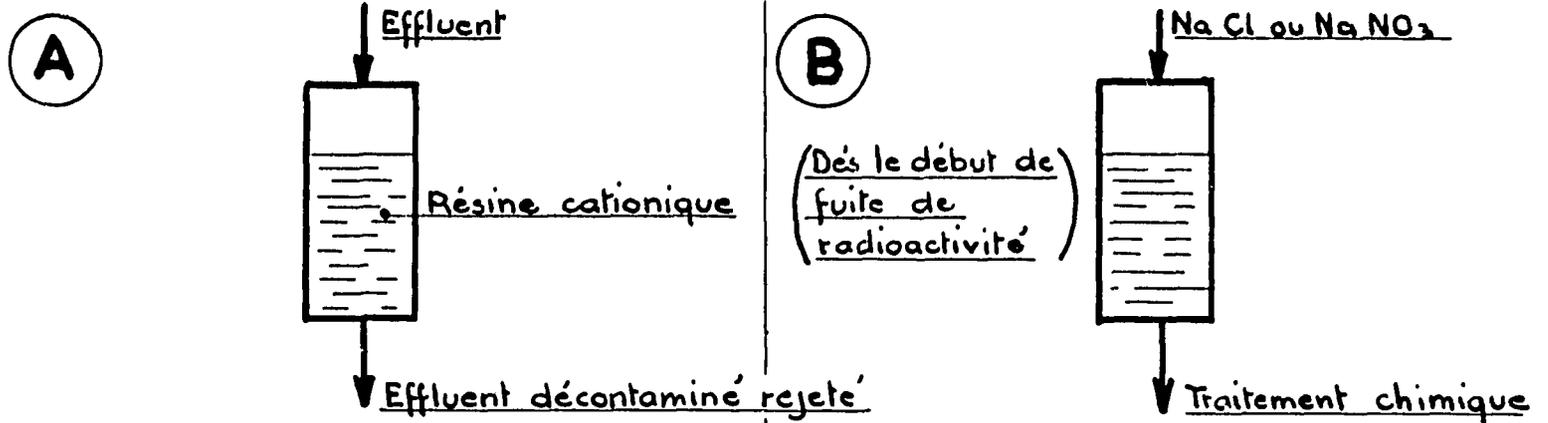
Familles radio-chimiques	Catégorie "Moyenne Activité"		Catégorie "Haute Activité"	
	FD obtenus avant 1960	FD obtenus après 1960	FD obtenus avant 1960	FD obtenus après 1960
Emetteurs β totaux	10	12	12	100
Strontium.....	1	75	2	150
Césium.....	3	1,5	5	100
Cérium.....	100	>500	>1000	>5000
Ruthénium.....	2	2	2	5
Zirconium.....	100	250	>1000	>4000

Tableau II :

DIFFERENTS TRAITEMENTS UTILISES à la STATION de TRAITEMENT des
EFFLUENTS de MARCOULE

Catégorie "Moyenne Activité"		Catégorie "Haute Activité"	
Avant 1960	Après 1960	Avant 1960	Après 1960
A base de phosphate de calcium, avec excès de chaux	A base de carbonate de calcium, avec excès d'ion carbonate	Successivement : - phosphate de strontium - ferrocyanure de nickel	Successivement : - hydroxyde ferreux - ferrocyanure de nickel - carbonate de calcium

Schéma de traitement des effluents radioactifs par emploi des résines cationiques



Régénérateur pollué neutralisé à pH 9

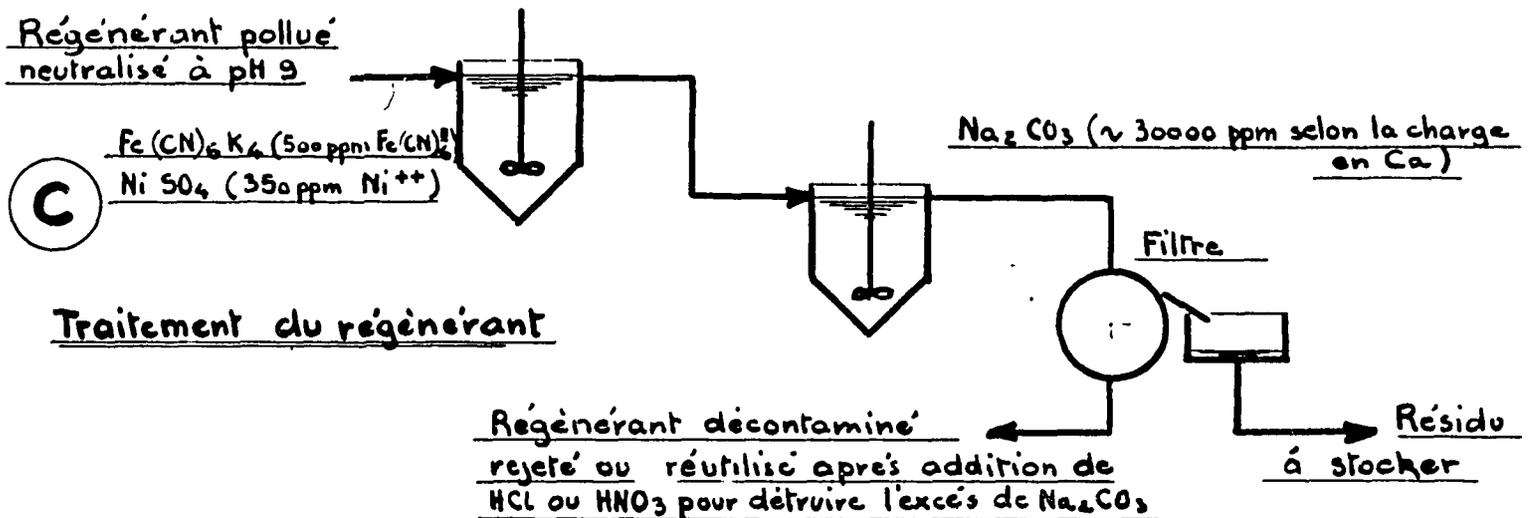
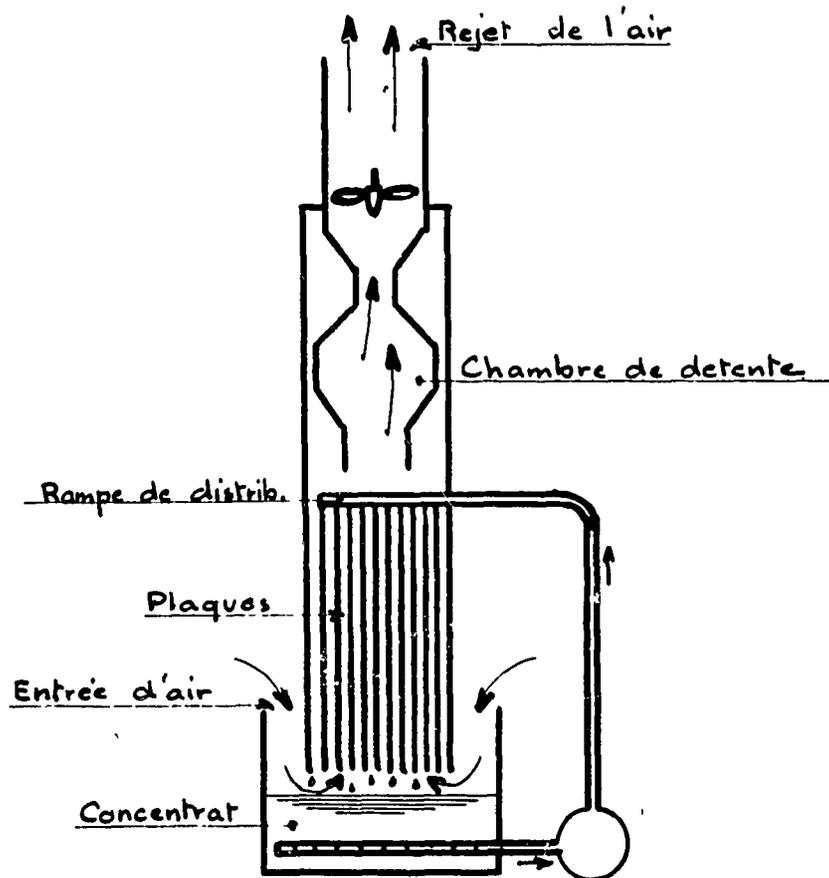


Schéma de concentration des effluents radioactifs par évaporation naturelle



FIN