

ROLE ESSENTIEL DU LABORATOIRE DE RADIOCHIMIE  
DANS LA CONDUITE DES TRAITEMENTS D'EFFLUENTS RADIOACTIFS LIQUIDES

CLUCHET J. - KOENIG R. - LECONNETABLE J. - REISS J.

CENTRE D'ETUDES NUCLEAIRES DE SACLAY (CEN-S)  
SERVICE DE PROTECTION CONTRE LES RAYONNEMENTS (SPR)  
SECTION INTERVENTION, DECONTAMINATION, STOCKAGE (S. IDS)

## 1 - INTRODUCTION

La grande variété des effluents liquides produits par le Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, la dispersion des Unités productrices ainsi que les sévères restrictions de rejet dans l'environnement ont conduit à l'étude et à la réalisation d'une installation de traitement par évaporation. Les performances obtenues sont nettement supérieures à celles du traitement chimique précédemment utilisé. Enfin, l'enrobage par le bitume est plus satisfaisant que l'enrobage par le béton pratiqué jusqu'alors. L'installation a commencé à fonctionner en 1975. Nous allons la décrire brièvement et montrer ensuite le rôle primordial joué par le laboratoire qui lui est associé.

## 2 - DESCRIPTION DE L'INSTALLATION DE TRAITEMENT

2.1. Unité de traitement par évaporation : Cette unité amène l'effluent de faible activité (activité volumique inférieure à  $10^{-1}$  Ci/m<sup>3</sup>) d'une charge en sels de 1 g/l environ à un concentrat titrant 250 à 300 g/l. Son débit nominal est de 2 m<sup>3</sup>/h. Elle comprend deux faisceaux d'évaporation, une colonne de distillation à quatre plateaux et des équipements de récupération de chaleur (préchauffage de l'effluent par le distillat et récupération de la chaleur latente de condensation de la vapeur grâce à une compression de celle-ci).

2.2. Unité d'enrobage par le bitume des concentrats d'évaporation : A la fin d'une campagne d'évaporation, on transfère 2,5 m<sup>3</sup> de concentrat dans une cuve spéciale où l'on procède à un traitement d'insolubilisation. La solution traitée est ensuite envoyée dans un évaporateur à couche mince(1) où elle est mélangée à du bitume chaud (110 °C). Par effet centrifuge, le mélange est projeté sur une paroi chauffée à 210 °C. Le concentrat perd ainsi la quasi-totalité de son eau. L'enrobé bitumeux coule dans un fût métallique de 200 litres qui est fermé, après refroidissement, par un couvercle serti. Le déchet solide obtenu est dirigé vers le Centre National de Stockage (La Hague).

## 3 - TRAITEMENT DES EFFLUENTS - GENERALITES

3.1. Définitions : Le procédé peut être caractérisé par les deux quantités suivantes :

3.1.1. Facteur de décontamination (F.D.) : Pour un radionucléide donné, le facteur de décontamination est :

$$F.D. = \text{Activité totale initiale} / \frac{\text{Activité totale rejetée}}{\text{par le distillat}}$$

3.1.2. Facteur de concentration (F.C.)\* : Le facteur de concentration du procédé est défini par le rapport :

$$F.C. = \text{Volume d'effluent traité} / \frac{\text{Volume de déchets solides}}{\text{conditionnés}}$$

3.2. Objectifs à atteindre : Ils sont de deux ordres :

- Optimisation du facteur de décontamination, afin de diminuer le potentiel de pollution à rejeter
- stabilité du résidu solide obtenu

#### 4 - ROLE DU LABORATOIRE DANS LE TRAITEMENT DES EFFLUENTS

4.1. Analyses et essais préalables à l'évaporation : Avant le transport par camions-citernes, on procède à des mesures de débit de dose dans la cuve de stockage (choix du véhicule : blindage), puis à des mesures de pH et d'activités volumiques totales  $\alpha$  et  $\beta$  (sur résidu sec). Eventuellement, on procède à une spectrométrie  $\gamma$ . Ces mesures permettent de grouper les effluents par catégories (activité volumique et nature des radionucléides) en vue d'un traitement rationnel.

Puis, le laboratoire détermine les conditions de neutralisation de l'effluent à traiter (soude 12N ou acide nitrique 11N) qui doit avoir un pH voisin de 6,5.

Ensuite, on procède à un essai de distillation en vue d'observer la formation éventuelle de mousses et les variations de pH.

Enfin, on effectue des analyses chimiques et radiochimiques complètes, pour caractériser l'effluent à traiter :

Recherche et dosage de  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_2^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{--}$ ,  $\text{PO}_4^{---}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Ca}^{++}$ , Fe, mesure de la dureté, mesures de radioactivités  $\alpha$  et  $\beta$ , spectrométrie  $\gamma$ , dosage du tritium et du carbone 14 par scintillation liquide, enfin dosage du strontium 90 (2).

4.2. Contrôles du procédé : Au cours de l'évaporation, on prélève périodiquement des échantillons de distillat sur lesquels on procède à des analyses chimiques et radiochimiques pour contrôler la qualité de l'effluent à rejeter. En cas d'apparition d'activités anormales, des mesures sont prises immédiatement (stockage du distillat en vue d'un deuxième traitement, traitement chimique de l'effluent primaire, arrêt de l'installation, etc..)

Enfin, une analyse complète est effectuée sur la totalité du distillat qui est proposé au rejet. Le potentiel de pollution est exprimé en CMA.m<sup>3</sup>.

4.3. Analyses et contrôles préalables à l'enrobage : Le concentrat obtenu est amené à pH 8,5 puis, éventuellement, mélangé à des précipités de traitement chimique d'effluents de moyenne activité (activité volumique inférieure à 100 Ci/m<sup>3</sup>). On procède au traitement d'insolubilisation (sulfate de baryum et ferrocyanure de nickel) (3).

Avant d'entreprendre l'enrobage, on détermine la composition chimique et radiochimique du concentrat insolubilisé, sa charge en sels et sa densité (pour régler les débits de concentrat et de bitume dans l'enrobeur). Enfin, pour s'assurer qu'il n'y a pas de risque d'inflammation ou d'explosion, on procède à un essai de chauffage jusqu'à 400 °C d'un mélange bitume-concentrat. Eventuellement, cet essai est complété par une analyse thermique différentielle (4).

4.4. Contrôle de l'enrobé : Sur divers prélèvements d'enrobé, effectués au cours d'une campagne, on procède à des mesures de teneur en eau, de densité et de teneur en sels.

4.5. Analyses particulières : Ces analyses ont pour but de vérifier le bon fonctionnement de l'installation. Elles portent essentiellement sur les têtes de distillation, sur les distillats provenant de l'enrobeur, systématiquement renvoyés en tête du procédé, ainsi que sur le contrôle du bain acide utilisé pour éliminer les incrustations calcaires, entre les campagnes de distillation.

#### 5 - RESULTATS ESSENTIELS

5.1. Facteur de décontamination : Le facteur de décontamination varie avec les radionucléides présents dans les effluents. Les analyses effectuées tout au long des opérations permettent de suivre son évolution pour un cer-

tain nombre de polluants régulièrement rencontrés sur le Centre de Saclay (fig.1). On constate que ce facteur croît avec l'activité volumique initiale de l'effluent, elle-même sensiblement proportionnelle à la concentration pondérale des composés. D'un radionucléide à l'autre, on peut penser que les différences constatées dépendent pour une large part, de la forme chimique sous laquelle ils se trouvent au moment de la distillation.

De ce point de vue, il est intéressant de noter que le sélénium 75 et le carbone 14, généralement présents sous forme de molécules organiques, conduisent à des facteurs de décontamination nettement inférieurs à ceux des composés minéraux.

On est ainsi conduit à parfaire l'épuration par des traitements spécifiques, à différents stades du procédé. Par exemple, en ce qui concerne le sélénium 75, sous forme de sélénométhionine et divers composés organiques, on a mis au point une méthode d'oxydation par l'eau oxygénée, à pH 2 qui permet d'améliorer le facteur de décontamination. On peut également envisager une épuration au niveau des distillats (osmose inverse).

5.2. Evolution de l'activité volumique du distillat : On trouvera figure 2, deux exemples de courbes d'évolution de l'activité volumique  $C_1$  du distillat, en fonction de la charge en sels Q du concentrat. On constate que le palier observé dépend relativement peu de l'activité volumique initiale, ce qui explique l'allure des courbes de la figure 1.

Au début de l'opération (tête de distillation), l'activité volumique est voisine de celle de l'effluent primaire, mais décroît rapidement. En fin de traitement, on constate une légère augmentation de  $C_1$ , peut-être due à un entraînement mécanique, mais l'incidence de ce phénomène est faible sur le distillat à rejeter.

5.3. Caractéristiques de l'enrobé : L'ensemble des analyses effectuées sur le concentrat permet d'établir des fiches de caractéristiques de chaque fût d'enrobé, fiches communiquées à l'organisme de stockage. Lorsque l'appareil fonctionne correctement, la teneur en eau de l'enrobé est inférieure à 1%, ce qui lui confère d'excellentes qualités vis-à-vis de la lixiviation (5).

## 5 - CONCLUSIONS

A la lumière du bref exposé qui vient d'être fait, il apparaît que la mise en oeuvre du procédé et sa conduite dépendent étroitement des analyses de tous ordres effectuées par le laboratoire. Ceci est d'autant plus nécessaire que les effluents d'un Centre d'Etudes Nucléaires sont variés et peuvent poser des problèmes spécifiques. Le travail du laboratoire contribue très efficacement à la sûreté de l'exploitation, à la réduction du potentiel de contamination rejeté dans le milieu et à la qualité du déchet solide produit.

## BIBLIOGRAPHIE

- (1) LEFILLATRE G., RODIER J., HULLO R., CUDEL Y., RODI L. : Utilisation d'un évaporateur à couche mince pour l'enrobage par le bitume de concentrats radioactifs - Rapport CEA-R-3742, 1969.
- (2) CETAMA : Méthode n° 197 - 1966 - Comptage  $\beta$  sur le précipité d'oxalate de strontium après séparation de l'yttrium.
- (3) RODIER J., LEFILLATRE G., RODI L., CUDEL Y. : Enrobage des concentrats d'évaporation par le bitume - Rapport CEA-R-3632, 1968.
- (4) ROLLET A.P., BOUAZIZ R. : L'analyse thermique - Gauthier Villars Paris, 1972.
- (5) LEFILLATRE G. : Conditionnement dans le bitume des déchets radioactifs de faible et moyenne activité.  
Séminaire sur la bitumisation des effluents de faible et moyenne activité - Anvers (Belgique) 18-19 mai 1976.

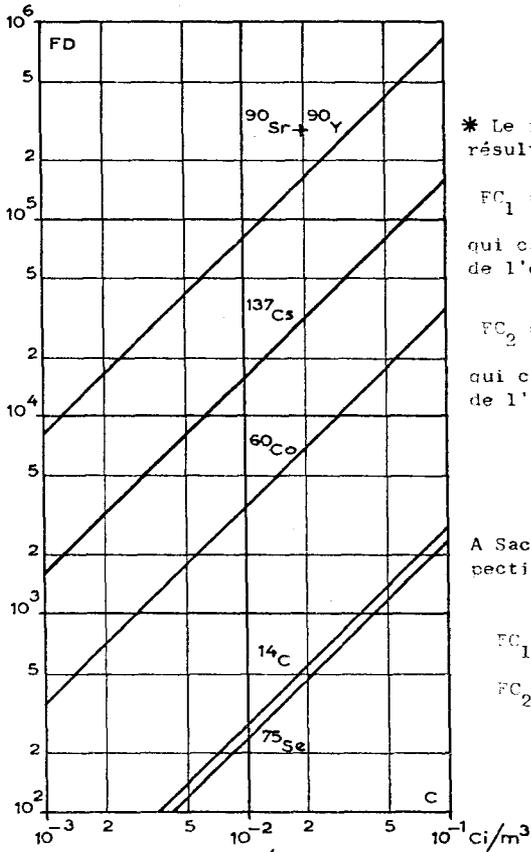


Fig. 1 - Facteur de décontamination FD en fonction de l'activité volumique  $C_0$

\* Le facteur de concentration F.C. résulte de deux facteurs partiels :

$$FC_1 = \frac{\text{Volume d'effluent traité}}{\text{Volume du concentrat}}$$

qui caractérise le fonctionnement de l'évaporateur.

$$FC_2 = \frac{\text{Volume du concentrat}}{\text{Volume du déchet solide final}}$$

qui caractérise le fonctionnement de l'enrobeur.

$$FC = FC_1 \cdot FC_2$$

A Saclay, les valeurs moyennes respectives de ces facteurs sont :

$$\left. \begin{array}{l} FC_1 \approx 60 \\ FC_2 \approx 1,7 \end{array} \right\} FC \approx 100$$

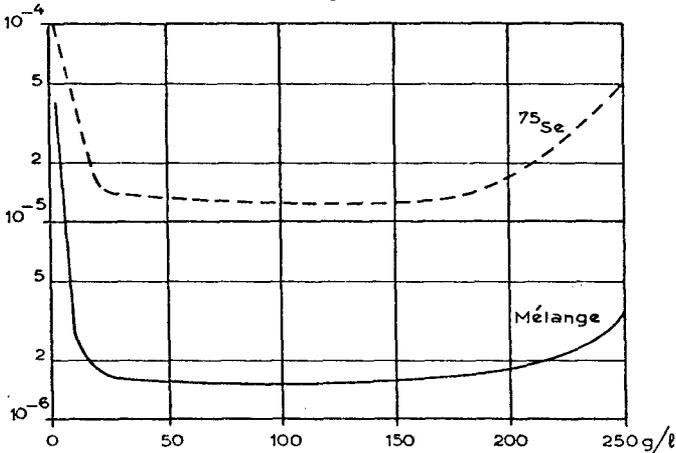


Fig. 2 - Evolution de l'activité volumique  $C_1$  du distillat en fonction de la charge en sels  $Q$  du concentrat