

12 **DEMANDE DE BREVET EUROPEEN**

21 Numéro de dépôt: **83402466.3**

51 Int. Cl.³: **G 21 F 9/34**

22 Date de dépôt: **19.12.83**

30 Priorité: **23.12.82 FR 8221665**

71 Demandeur: **COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE**
Etablissement de Caractère Scientifique Technique et
Industriel, 31/33, rue de la Fédération, F-75015 Paris (FR)

43 Date de publication de la demande: **04.07.84**
Bulletin 84/27

72 Inventeur: **Bonnaud, Roger, Les Aubertes,**
F-30630 Goudargues (FR)
 Inventeur: **Jouan, Antoine, 1, Allée du Romarin,**
F-30200 Bagnols sur Ceze (FR)
 Inventeur: **Hery, Yves, Résidence Antony Réal,**
F-84100 Orange (FR)

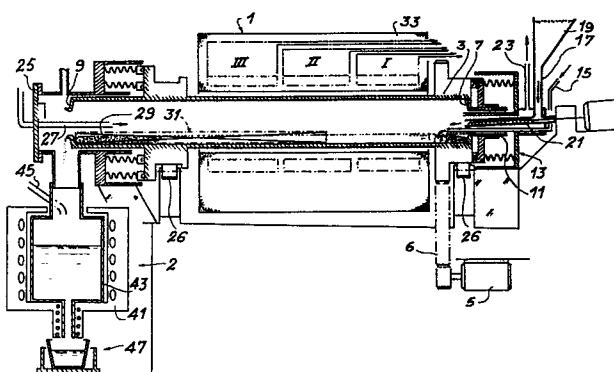
84 Etats contractants désignés: **BE DE GB IT**

74 Mandataire: **Mongrédien, André et al, c/o**
BREVATOME 25, rue de Ponthieu, F-75008 Paris (FR)

54 **Procédé de conditionnement de déchets constitués par des particules métalliques radioactives telles que les fines de dissolution des éléments combustibles irradiés.**

57 L'invention a pour objet un procédé de conditionnement de déchets constitués par des particules métalliques radioactives telles que les fines de dissolution des éléments combustibles irradiés.

On met les particules radioactives en suspension dans un liquide, puis on soumet la suspension à un traitement thermique d'évaporation réalisé en injectant cette suspension dans un tube (3) sensiblement horizontal chauffé et entraîné en rotation autour de son axe, qui contient un lit (29) d'une poudre de métal ou d'alliage, par exemple de cuivre ou d'acier inoxydable; on soumet ensuite le mélange sec de poudre et de particules métalliques radioactives obtenu après ce traitement thermique à une fusion dans l'installation (2) à une température suffisante pour fondre la poudre de métal ou d'alliage et former des composés définis entre le métal de la poudre et les constituants métalliques des particules radioactives.



Procédé de conditionnement de déchets constitués
par des particules métalliques radioactives telles
que les fines de dissolution des éléments combustibles
irradiés.

La présente invention a pour objet un procédé de conditionnement de déchets constitués par des particules métalliques radioactives telles que les fines obtenues lors de la dissolution des éléments combustibles irradiés et les poussières obtenues lors des opérations de tronçonnage et/ou de dégainage mécanique des éléments combustibles irradiés.

Dans les installations de retraitement d'éléments combustibles nucléaires irradiés, la pratique habituelle consiste à soumettre tout d'abord les éléments combustibles à un traitement mécanique préparatoire effectué, par exemple, par tronçonnage ou cisailage en vue de faciliter la dissolution ultérieure du combustible dans une solution d'acide nitrique. Lors de cette opération, il est difficile d'éviter la formation de poussières et ces poussières métalliques radioactives qui sont en majeure partie insolubles dans les solutions utilisées pour le retraitement devront être récupérées et soumises à un conditionnement. De même, lors de la dissolution des éléments combustibles, certaines particules métalliques ne sont pas attaquées car elles sont insolubles dans la solution nitrique et elles constituent ce que l'on appelle généralement les "fines de dissolution" ; celles-ci sont constituées essentiellement par du ruthénium, du rhodium, du palladium, du molybdène et à un moindre niveau par du zirconium, du niobium, du technétium, de l'uranium et du plutonium. A titre d'exemple, on donne dans le tableau ci-joint, la nature et la composition de fines de dissolution et de cisailage provenant de réacteurs à eau légère et de réacteurs à neutrons rapides.

Ces particules métalliques constituent des déchets fortement radioactifs et difficilement valorisables à court terme malgré la présence en quantité importante de métaux de la famille du platine.

Aussi, il est nécessaire de traiter ces déchets afin d'assurer leur stockage à long terme dans de bonnes conditions de sûreté.

5 Etant donné que la quantité et les dimensions de ces particules radioactives insolubles croissent avec le taux d'irradiation, le problème du traitement de ces déchets devient de plus en plus important avec le développement des réacteurs à eau légère et des réacteurs à neutrons rapides dont les éléments combustibles sont soumis à des taux de combustion élevés.

10 Ainsi, on estime que le traitement d'une tonne d'uranium provenant de combustibles de réacteurs à eau légère donne environ 3,5 kg de "fines" de dissolution et qu'une tonne d'oxyde provenant d'éléments combustibles de réacteurs à neutrons rapides donne de 8 kg à 13 kg de "fines" de dissolution.

Aussi, si l'on prend comme ordre de grandeur une usine de retraitement ayant une capacité de 800 t/an pour des combustibles de la filière à eau légère, on aurait à traiter 2800 kg de ces fines par an, et dans le cas d'une usine de retraitement à 150 t/an pour les combustibles de la filière à neutrons rapides, on obtiendrait 1200 kg de fines par an. Par ailleurs, on doit ajouter à ces chiffres, les poussières obtenues lors du cisailage ou du tronçonnage des combustibles. Dans le cas des combustibles des réacteurs à eau légère, la gaine est en Zircalloy et les quantités de fines de cisailage produites sont généralement de l'ordre de 3 kg/t ; dans le cas des éléments combustibles de réacteurs à neutrons rapides pour lesquels la gaine est généralement en acier inoxydable, ces fines de cisailage représentent environ 1 kg/t d'uranium.

35 Or le traitement des fines de dissolution et de cisailage pose certains problèmes en raison de leur forte puissance thermique liée à leur forte radioactivité, et aussi dans certains cas en raison de leur caractère pyrophorique dû à la présence de fines particu-

les de zirconium provenant du cisailage des gaines d'éléments combustibles de réacteurs à eau légère.

5 Par ailleurs, il est préférable de traiter ces fines de dissolution et de cisailage dans les premiers stades du processus de retraitement des combustibles afin de prévenir les bouchages de tuyauteries, car ces particules qui ont de fortes masses spécifiques ont tendance à se déposer dans les zones calmes de l'installation. Il en est de même pour éviter les surchauf-
10 fes locales, causes d'attaques prématurées des récipients, et de la dégradation des solvants organiques par radiolyse.

Aussi, on envisage de séparer et de récupérer ces fines à la sortie de l'installation de dissolution et de les traiter ensuite en vue de leur conditionnement.
15

Jusqu'à présent, pour le conditionnement de produits radioactifs, on a utilisé différents procédés dont les principaux consistent à enrober les déchets dans du ciment ou à les vitrifier. Cependant, ces procédés connus sont limités lorsqu'il s'agit de conditionner des déchets radioactifs constitués par des fines de dissolution ou de cisailage. En effet, dans le
20 cas des ciments, la puissance spécifique élevée des fines est préjudiciable à la tenue mécanique du matériau d'enrobage. De plus, il existe des risques de radiolyse de l'eau de constitution du ciment.
25

L'incorporation de ces particules dans un verre n'est possible qu'après une période suffisante de refroidissement du combustible irradié ; ceci dans le
30 but d'éviter de constituer dans le matériau, des points chauds favorables à un développement hétérogène de cristallisation et à des amorces de rupture. C'est pourquoi le procédé, utilisable pour le conditionnement des fines provenant de combustibles PWR, qui est en
35 général retraité après plusieurs années de refroidissement, n'est plus adapté pour le conditionnement des fi-

nes provenant du combustible rapide, qui, en général, est retraité assez rapidement après déchargement du réacteur.

On a aussi envisagé de conditionner des déchets radioactifs constitués par des particules d'oxydes ou de verres obtenues à partir de solutions, en utilisant des matrices métalliques comme cela est décrit dans les brevets FR-A-2 387 093 et GB-A-1 446 016. Cependant, les produits obtenus par ces procédés ont une structure hétérogène, les particules d'oxydes ou de verres radioactifs étant dispersées dans la matrice métallique. De plus, le procédé décrit dans le brevet FR-A-2 387 093 implique la préparation d'une poudre finement divisée à partir d'une solution de déchets radioactifs contenant un sel du métal formant la matrice, puis la réalisation d'une étape de compression à chaud.

Ainsi, ce procédé ne peut être utilisé pour le traitement des fines de dissolution car il conduit à la formation d'une céramique-métal, présentant du point de vue thermique les mêmes inconvénients que le verre. En outre, le mélange de fines très énergétiques dans un oxyde, mauvais conducteur de la chaleur, conduit à des élévations importantes de température dans le mélange, à une agglomération du mélange et à une impossibilité d'obtenir une poudre fine pour frittage.

De même, le procédé du brevet GB-A-1 446 016 ne peut convenir pour le traitement des fines de dissolution car, compte tenu des dimensions très petites de fines de dissolution, il sera impossible d'obtenir une dispersion homogène des fines dans la matrice métallique par coulée de celle-ci dans un récipient contenant les fines de dissolution. De ce fait, les produits obtenus ne présenteront pas des caractéristiques satisfaisantes pour un stockage à long terme.

La présente invention a précisément pour objet un procédé de conditionnement de déchets radioac-

tifs constitués par des fines de dissolution et/ou des fines de tronçonnage et/ou de dégainage mécanique, qui pallie les inconvénients des procédés connus actuellement.

5 Le procédé, selon l'invention, de conditionnement de déchets constitués par des particules métalliques radioactives insolubles dans les solutions nitriques, se caractérise en ce que l'on met lesdites
10 particules en suspension dans un liquide, en ce qu'on l'on soumet la suspension à un traitement thermique d'évaporation par injection de ladite suspension sur un lit chaud d'une poudre d'un métal ou d'un alliage choisi dans le groupe comprenant le cuivre, le nickel, le zinc, les alliages de cuivre, les alliages de nickel,
15 les alliages de zinc et l'acier inoxydable, et en ce que l'on soumet le mélange sec de poudre et de particules métalliques obtenu après ce traitement thermique à une fusion effectuée à une température suffisante pour fondre la poudre de métal ou d'alliage et former des
20 composés définis entre le métal de la poudre et au moins une partie des constituants métalliques des particules radioactives.

 Selon l'invention, on utilise ainsi la poudre de métal ou d'alliage pour fixer par liaison chimique,
25 sous la forme de composés définis, les constituants métalliques des particules radioactives, ce qui présente de nombreux avantages.

 En effet, le choix d'un métal ou d'un alliage comme matériau de fixation des déchets radioactifs permet de résoudre les problèmes posés par l'élimination
30 de la chaleur des particules radioactives car les métaux ont une bonne conductibilité thermique, ce qui n'est pas le cas du ciment, du verre et des cermets dans lesquels se développent des gradients de températures importants pouvant provoquer l'apparition de fis-
35 sures.

sures et une augmentation du taux de lixiviation car celle-ci croît avec la température. Par ailleurs, grâce à la bonne conductibilité thermique des métaux, on peut augmenter le taux de particules radioactives fixées et
5 diminuer de ce fait le volume du conditionnement.

Toutefois, on limite généralement à 10% en poids le taux de particules radioactives fixées dans les blocs obtenus après solidification du mélange.

De plus, le choix selon l'invention, d'une
10 poudre de cuivre, de nickel, de zinc, d'alliage de cuivre, d'alliage de nickel, d'alliage de zinc ou d'acier inoxydable pour constituer le milieu de fixation des déchets radioactifs permet l'obtention de produits retenant mieux ces déchets et présentant par ailleurs des
15 caractéristiques satisfaisantes de tenue dans le temps. En effet, ces matériaux peuvent former des composés définis avec la plupart des constituants métalliques radioactifs des particules de déchets. Ainsi, lorsqu'on utilise une poudre de cuivre, le rhodium qui est le
20 plus radioactif du mélange de fines à traiter forme un composé défini avec le cuivre, qui se solubilise dans la matrice en donnant un alliage constitué d'une solution solide Cu-Rh. Il en est de même pour le palladium et le zirconium. L'utilisation de cupronickel permet
25 d'obtenir une solution solide également avec le molybdène de fission.

En ce qui concerne la tenue dans le temps, on sait que le cuivre, le nickel, le zinc et leurs alliages ainsi que l'acier inoxydable ont une tenue dans le
30 temps meilleure que le ciment ou les verres, ce qui permet d'assurer un meilleur confinement des déchets radioactifs, de limiter la surface d'échange avec le milieu environnant et d'éviter les risques de fracturation qui sont importants dans le cas de matrices en
35 ciment ou en verre. De plus, si l'on choisit de façon

appropriée la poudre de métal utilisée, on peut récupérer ultérieurement certains constituants, en particulier les platinoïdes, après désactivation ; ainsi, dans le cas du cuivre, ceci peut être réalisé en soumettant les déchets conditionnés dans le cuivre, après désactivation, à un traitement chimique de dissolution sélective du cuivre.

De préférence, selon l'invention, on utilise une poudre de cuivre ou d'alliage de cuivre, par exemple de bronze, de cupronickel ou d'alliage de cuivre et de zirconium.

Généralement, pour la mise en oeuvre du procédé de l'invention, les fines de dissolution des combustibles irradiés et les fines de cisailage sont véhiculées en suspension dans un liquide tel que de l'eau. En effet, pour récupérer ces fines après dissolution des combustibles irradiés, on soumet la solution de dissolution à une clarification en utilisant, soit un décanteur centrifuge, soit un filtre pulsé.

On lave ensuite les fines ainsi séparées et on les entraîne en suspension dans un courant d'eau, puis on stocke la suspension dans des récipients appropriés avant de la traiter par le procédé de l'invention.

Compte tenu de l'acidité de la solution de dissolution à partir de laquelle on a récupéré les fines, la suspension obtenue est généralement acide et peut présenter une acidité nitrique d'environ 0,8 N.

Pour la mise en oeuvre du procédé de l'invention, on soumet la suspension de particules radioactives à un traitement thermique d'évaporation réalisé en injectant cette suspension sur un lit chaud de la poudre de métal ou d'alliage qui constituera le milieu de fixation. Ainsi, on obtient simultanément une évaporation du liquide de la suspension et un mélange homogène

de particules radioactives avec la poudre de métal ou d'alliage du lit qui est de préférence en mouvement pendant ce traitement thermique.

5 Avantageusement, on réalise ce traitement dans un tube sensiblement horizontal chauffé et entraîné en rotation autour de son axe, qui contient le lit de poudre de métal ou d'alliage. De préférence, ce tube comprend de plus des moyens tels qu'un racleur pour éviter le collage des particules de poudre sur la paroi
10 du tube. Ce racleur peut être constitué par une barre folle de section étoilée, qui est en appui sur le tube dans le lit de poudre de métal ou d'alliage.

 Lorsqu'on utilise un tube tournant contenant le lit de poudre de métal ou d'alliage, on introduit
15 avantageusement la suspension de particules radioactives et la poudre de métal ou d'alliage à l'une des extrémités du tube chauffé et entraîné en rotation autour de son axe, et on récupère à l'autre extrémité du tube le mélange sec obtenu, puis on le transfère dans
20 un four de fusion.

 Ainsi, on peut opérer en continu en formant dans le tube rotatif un lit de matériau sec sur lequel on introduit à des débits contrôlés la suspension de
25 particules radioactives et la poudre de métal ou d'alliage.

 Afin d'obtenir lors du traitement thermique d'évaporation un mélange homogène des particules radioactives avec la poudre de métal ou d'alliage du lit, on utilise avantageusement une poudre de métal ou d'allia-
30 ge ayant une granulométrie de 100 à 500 μm et, de préférence, une surface tourmentée pour faciliter l'accrochage mécanique des particules radioactives sur la poudre, car compte tenu de leurs dimensions faibles (de 0,3 à 15 μm) les particules risqueraient d'être entraî-
35 nées par les gaz circulant dans l'appareil utilisé pour le traitement thermique d'évaporation.

Par ailleurs, pour obtenir un mélange homogène fixant bien les particules radioactives, on choisit les volumes de poudre de métal ou d'alliage par rapport au volume de particules radioactives à traiter, de façon à obtenir, après solidification, un bloc présentant des qualités satisfaisantes. Généralement, le rapport en volume entre la poudre de métal et d'alliage et les particules radioactives est de 10, mais des conditions thermiques (dégagement de chaleur du lingot fabriqué, conditions de refroidissement, etc...) peuvent amener à modifier ce rapport, par exemple à le doubler.

L'appareil utilisé pour réaliser le traitement thermique d'évaporation peut être constitué en particulier par un calcinateur tel que celui décrit dans le brevet français n° 2 262 854 déposé le 28/02/74 au nom du Commissariat à l'Energie Atomique.

De préférence, notamment lorsque la suspension aqueuse de départ présente une certaine acidité, et que la poudre de métal ou d'alliage utilisée peut être oxydée par cette solution acide, on soumet le mélange sec de poudre et de particules métalliques obtenu à la suite du traitement d'évaporation, à un traitement de réduction par l'hydrogène avant d'effectuer la fusion. On peut réaliser ce traitement de réduction dans le tube rotatif contenant le lit de poudre de métal ou d'alliage. Dans ce but, le tube rotatif comprend au moins deux zones chauffées à des températures différentes et on fait circuler dans le tube rotatif à contre-courant de la suspension et du lit de poudre de métal ou d'alliage un mélange gazeux réducteur constitué par exemple par de l'argon ou de l'azote additionné d'hydrogène. Ainsi, on réalise l'évaporation dans la première zone du tube et on complète le traitement d'évaporation par un traitement de réduction dans la seconde zone du tube afin de réduire les oxydes éventuellement

formés lors du traitement thermique d'évaporation.

On soumet ensuite le mélange sec obtenu à une fusion. Ceci peut être réalisé dans un four à induction sous vide ou sous atmosphère contrôlée, par exemple
5 sous atmosphère d'argon contenant de l'hydrogène.

Avantageusement, on transfère directement le mélange sec obtenu à la sortie du tube rotatif dans le four de fusion en le faisant s'écouler par gravité dans le creuset du four et on réalise la fusion à une température allant de 1100 à 1500°C. Dans le cas où on utilise une poudre de cuivre, on obtient généralement un bain liquide en chauffant le mélange à une température de 1300 à 1500°C. Après fusion, on coule le bain liquide dans une lingotière. On obtient ainsi un lingot métallique dans lequel les différents constituants radioactifs des fines sont alliés ou dispersés.
10
15

Dans certains cas, pour améliorer l'état de surface du lingot obtenu on peut ajouter sur le bain liquide un flux constitué par exemple par de la fritte de verre pour digérer les oxydes restants qui proviennent de l'oxydation superficielle de la poudre de métal ou d'alliage par la vapeur d'eau. Après séparation du verre, lors du refroidissement, on obtient un lingot ayant une surface nette.
20

Lors du traitement thermique d'évaporation réalisé dans le tube rotatif, les vapeurs et les gaz qui s'échappent de ce tube peuvent entraîner des particules radioactives qu'il est nécessaire de séparer. Avantageusement, on récupère les poussières entraînées par les vapeurs libérées lors du traitement thermique d'évaporation, par exemple par lavage des gaz et des vapeurs, et on recycle ces poussières dans la suspension de particules radioactives à traiter.
25
30

Pour la mise en oeuvre du procédé de l'invention, on réalise avantageusement le traitement thermi-
35

que d'évaporation en chauffant le tube rotatif à des températures de 250 à 450°C et en opérant sous pression inférieure à la pression atmosphérique.

5 D'autres caractéristiques et avantages de l'invention apparaîtront mieux à la lecture de la description qui suit, donnée bien entendu à titre illustratif et non limitatif en référence au dessin annexé qui représente, en coupe verticale, un dispositif pour la mise en oeuvre du procédé de l'invention.

10 Sur cette figure, on voit que le dispositif de conditionnement de déchets radioactifs à l'état de particules, comprend un ensemble d'évaporation 1 et un four de fusion 2. L'ensemble 1 comprend un tube 3 réalisé par exemple en alliage commercialisé sous la mar-
15 que URANUS, qui peut être entraîné en rotation autour de son axe au moyen d'un moto-réducteur électrique 5 par l'intermédiaire d'un ensemble 6 à chaîne et engrenages. Le tube rotatif 3 peut être disposé soit horizontalement, soit de façon que son axe soit légèrement
20 incliné, par exemple jusqu'à environ 3%, par rapport à l'horizontale. Il est muni à ses extrémités de colletterettes 7 et 9. Une virole 11 est fixée sur la colletterette 7 et un dispositif d'étanchéité 13 est emboîté autour de la virole 11 pour obturer de façon étanche le
25 tube à l'une de ses extrémités lors de sa rotation. Un conduit 15 relié à un réservoir de suspension (non représenté sur le dessin) traverse l'embout 13 pour déboucher à l'extrémité du tube 3 et il permet d'introduire dans le tube 3 la suspension de particules radio-
30 actives au débit voulu. Un conduit 17 relié à une trémie 19 remplie de poudre de métal ou d'alliage traverse également l'embout 13 pour déboucher dans le tube 3. Ce conduit 17 est muni d'une vis d'alimentation 21 et il permet d'introduire dans le tube 3 la poudre métallique
35 au débit voulu. L'embout 13 est encore traversé par un

conduit 23 d'évacuation des gaz. Ce conduit traverse ensuite une installation de dépoussiérage (non représentée sur le dessin), dans laquelle on récupère par lavage du gaz les particules radioactives entraînées.
5 Les particules ainsi récupérées sont ensuite recyclées dans le réservoir de suspension associé à la conduite 15.

A son autre extrémité, le tube 3 est obturé par un embout d'étanchéité fixe 25 comportant un ensemble de raccordement étanche au four de fusion 2.
10

A chacune de ses extrémités, le tube 3 est supporté par des galets 26 pour soutenir ce dernier lorsque celui-ci est en position fixe ou en rotation. Un conduit 27 traverse l'embout 25 afin de faire circuler dans le tube 3 un gaz tel que de l'argon contenant 5% d'hydrogène à contre-courant du lit de poudre 29 qui circule dans le tube 3. Un racleur 31 constitué d'une barre folle de section en étoile permet d'éviter le collage des particules de poudre sur les parois du tube
15 3 lors du traitement thermique. Pour réaliser ce traitement thermique, le tube est disposé à l'intérieur d'un four 33 qui comprend trois zones de chauffage I, II et III afin de pouvoir porter les zones correspondantes du tube 3 à des températures différentes.
20

L'installation de fusion 2 comprend un four à induction 41 à l'intérieur duquel est disposé un creuset 43 recevant le mélange sec de poudre et de particules métalliques, provenant du tube 3, qui est transféré par gravité par la lumière prévue à cet effet dans la
30 collerette 9. A l'intérieur du creuset de fusion débouche un conduit 45 pour introduire dans le creuset un gaz neutre ou réducteur comme de l'argon hydrogéné afin de protéger le lit dans le creuset et de pousser les vapeurs vers l'embout 13. Après fusion, le bain fondu
35 s'écoule dans une lingotière 47.

On décrit ci-après, un exemple de mise en oeuvre du procédé de l'invention utilisant le dispositif décrit ci-dessus avec un tube rotatif de 30 cm de diamètre et de 80 cm de longueur.

5 On maintient sous agitation dans le réservoir de stockage associé à la conduite 15 une suspension contenant 50 g/l de fines de dissolution ayant une granulométrie de l'ordre de quelques microns, et on introduit la suspension dans le tube rotatif 3 par la con-
10 duite 15 à un débit de 5 l/h, ce qui correspond à l'introduction de 250 g/h de fines. On introduit également dans le tube 3 par la vis de transfert 21, 2,5 kg/h de poudre de cuivre ayant une granulométrie comprise entre 500 et 100µm, et on introduit par le tube 27 un gaz
15 neutre contenant de l'hydrogène pour réaliser l'évaporation sous atmosphère neutre d'argon ou d'azote. On règle la rotation du tube 3 à une vitesse d'environ 5 tours/min. et on chauffe les zones I et II à une température de 425°C et la zone III à une température
20 de 350°C environ.

 Dans ces conditions, on forme à l'intérieur du tube 3 un lit de poudres 29 ayant une épaisseur d'environ 3 cm et pesant environ 13 kg qui séjourne dans le tube pendant une durée d'environ 5 heures. La
25 température du lit s'élève à 80, 195 et 250°C dans les zones qui correspondent respectivement aux zones de chauffage I, II et III, et la vapeur d'eau est évacuée avec le gaz de balayage par le conduit 23 tandis que le produit sec s'écoule par gravité dans le creuset 43 de
30 l'installation de fusion 2.

 Lorsque le creuset contient 20 à 40 kg de produit, on interrompt l'alimentation du tube 3 pour passer à la phase de fusion. Celle-ci peut être réalisée en environ 1h30 lorsqu'on opère sous 23 KW. Après
35 fusion, on coule le bain liquide dans la lingotière 47.

On obtient ainsi des lingots de 20 à 40 kg, qui présentent des propriétés satisfaisantes.

5 Dans d'autres essais, on a utilisé une poudre d'acier inoxydable ayant une granulométrie de 150 à 300 μ m, et on a réalisé l'introduction de cette poudre dans le tube 3 à un débit de 2 kg/h. Avec les mêmes conditions de fonctionnement, on obtient un mélange satisfaisant des fines avec la poudre d'acier inoxydable et par fusion vers 1500°C, on obtient des lingots ayant
10 des propriétés satisfaisantes.

Pour optimiser la solubilisation du molybdène des fines, on a utilisé une poudre de cupronickel contenant pour certains essais : 80% de cuivre et 20% de nickel, pour d'autres essais : 60% de cuivre et 40%
15 de nickel. Après fusion, on a obtenu des lingots dont l'analyse confirme la formation d'une solution solide avec Mo.

Bien que sur cette figure on ait représenté une installation de fusion fonctionnant de façon dis-
20 continue, on pourrait aussi utiliser une installation de fusion continue, l'écoulement du métal étant assuré par une busette de coulée continue.

Des essais effectués avec d'autres déchets constitués par des particules métalliques radioactives, ont montré qu'on pouvait obtenir des résultats satisfaisants en partant de poudres de cuivre ou de poudres d'acier inoxydable ayant des granulométries de
25 40 μ m à 1,25 mm, la plage la mieux adaptée étant 100 à 500 μ m, en faisant circuler dans le tube 3 de l'argon contenant 5% d'hydrogène à un débit de 800 l/h et en chauffant les zones I, II et III du tube 3 à des températures de 300 à 500°C avec une vitesse de rotation du
30 tube 3 de 5 à 15 t/min. et un temps de séjour des produits dans le tube 3 d'environ 5 heures.

35 Lorsqu'on utilise comme poudre métallique de la poudre de cuivre, il est nécessaire d'éviter au ma-

ximum l'oxydation du cuivre et d'opérer en présence d'hydrogène pour réduire dans la dernière zone du tube 3 les oxydes éventuellement formés.

TABLEAU

	Filière eau légère 33 000 MW j/T	Filière rapide
<u>Fines de cisailage</u>	Zr 3,5 kg/T (sans doute par excès) dépend de la cisaille	Inox I kg/T d'U id
<u>Fines de dissolution</u>	Ru 42 % Rh 15,5 % Mo 11 % Tc 3 % Pd 20 % U 3 % Pu 0,5 % 3,1 kg/T	Ru 30 % Rh 9 % Mo 12 % Tc 3 % Pd 20 % Zr.Nb 5 % 8 kg/T U pour 60 000 MW j/T 9,7 kg/T U " 70 000 " 13,1 kg/T U " 100 000 "

TABLEAU (suite)

Fines de dissolution	Filière eau légère	Filière rapide
Granulométrie	0,3 à 0,4 μ (moyenne) 90 % < 0,6 μ (taille colloïdale)	60 à 80 % entre 0,8 et 15 μ 10 à 20 % > 1,5 μ = 20 % < 0,6 μ
Densité	$d \sim 5,6 \pm 0,3$ à 30°C	$d = 6,1$ à 6,7
Volume apparent		0,2 litre /kg après sédimentation
Activité (Ci/Tonne) et Puissance spécifique Watts/Tonne	0,5 . 51 680 (Ci/T) 2 353 W/T 1 " 282 949 1 367 2 " 139 186 675 3 " 70 915 341 5 " 18 053 87 7 " 4 657 22 10 " 650 3	Coeur moyen 70 000 MW j/t 0,5 an 1,69 . 10 ⁶ Ci/T 7 645 W/T 1 991 650 4 795 2 489 428 2 377 3 246 462 1 197 5 63 833 305 7 16 181 79 10 2 169 10,3

REVENDEICATIONS

1. Procédé de conditionnement de déchets constitués par des particules métalliques radioactives insolubles dans les solutions nitriques, caractérisé en
5 ce que l'on met lesdites particules en suspension dans un liquide, en ce que l'on soumet la suspension à un traitement thermique d'évaporation par injection de la-dite suspension sur un lit chaud d'une poudre d'un métal ou d'un alliage choisi dans le groupe comprenant le
10 cuivre, le nickel, le zinc, les alliages de cuivre, les alliages de nickel, les alliages de zinc et l'acier inoxydable, et en ce que l'on soumet le mélange sec de poudre et de particules métalliques obtenu après ce traitement thermique à une fusion effectuée à une tem-
15 pérature suffisante pour fondre la poudre de métal ou d'alliage et former des composés définis entre le métal de la poudre et au moins une partie des constituants métalliques des particules radioactives.

2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on soumet le mélange sec de poudre
20 et de particules métalliques obtenu après le traitement thermique d'évaporation à un traitement de réduction par l'hydrogène avant d'effectuer la fusion.

3. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 et 2, caractérisé en ce que ledit lit de
25 poudre de métal ou d'alliage est en mouvement, pendant le traitement thermique d'évaporation.

4. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que l'on effectue le
30 traitement thermique d'évaporation de la suspension dans un tube sensiblement horizontal chauffé et entraîné en rotation autour de son axe, contenant ledit lit de poudre de métal ou d'alliage.

5. Procédé selon la revendication 4, caractérisé en ce que l'on introduit la suspension de particu-
35

les métalliques radioactives et la poudre de métal ou d'alliage à l'une des extrémités dudit tube, en ce que l'on récupère à l'autre extrémité dudit tube le mélange sec obtenu et en ce qu'on le transfère dans un four de fusion.

6. Procédé selon l'une quelconque des revendications 2 à 5, caractérisé en ce que l'on réalise le traitement de réduction dans le tube rotatif en établissant dans ce tube au moins deux zones chauffées à des températures différentes et en faisant circuler à contre-courant de la suspension et du lit un mélange gazeux réducteur.

7. Procédé selon la revendication 6, caractérisé en ce que ledit mélange gazeux est de l'argon ou de l'azote additionné d'hydrogène.

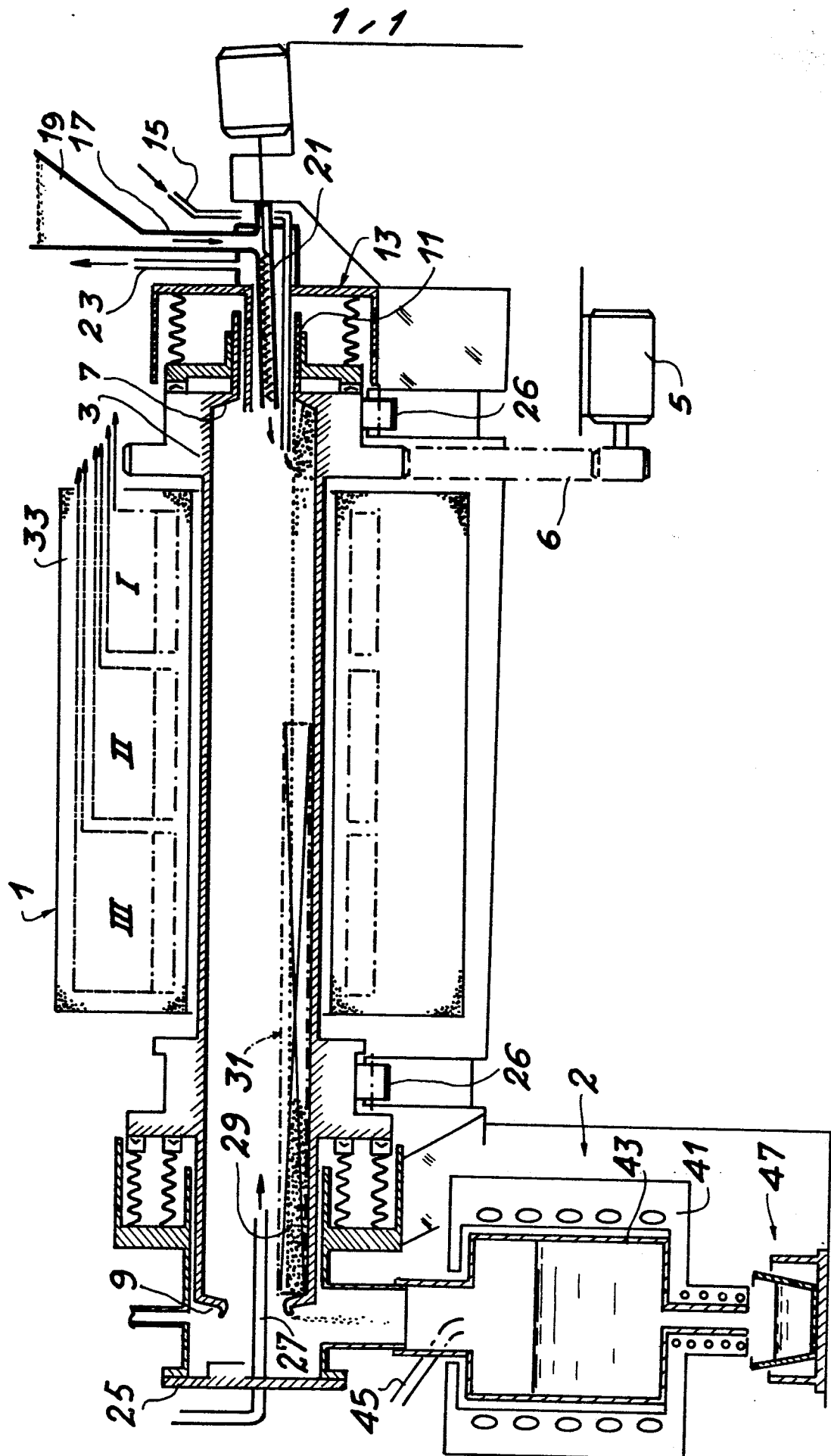
8. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 7, caractérisé en ce que l'on récupère les poussières entraînées par les vapeurs libérées lors du traitement thermique d'évaporation et en ce que l'on recycle lesdites poussières dans la suspension de particules radioactives à traiter.

9. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, caractérisé en ce que la poudre de métal ou d'alliage a une granulométrie de 40 μm à 1,25 mm.

10. Procédé selon la revendication 9, caractérisé en ce que la poudre de métal ou d'alliage a une granulométrie de 100 à 500 μm .

11. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 10, caractérisé en ce que ladite poudre est de la poudre de cuivre ou d'alliage de cuivre.

12. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 10, caractérisé en ce que ladite poudre est une poudre d'acier inoxydable.





Office européen
des brevets

RAPPORT DE RECHERCHE EUROPEENNE

Numéro de la demande

EP 83 40 2466

0112771

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS			
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl. 3)
X	FR-A-2 143 929 (USAEC) * revendications 1,4,5; exemple 1 *	1,2,7,9	G 21 F 9/34
A	--- US-A-4 209 421 (HEIMERL) * revendication 1 *	1,2	
A	--- FR-A-2 175 154 (USAEC)		
A	--- FR-A-2 445 594 (KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE) -----		
Le présent rapport de recherche a été établi pour toutes les revendications			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl. 3)
			G 21 F
Lieu de la recherche LA HAYE		Date d'achèvement de la recherche 13-02-1984	Examineur NICOLAS H.J.F.
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES			
X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire		T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant	

