

(19)



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets

(11) Numéro de publication:

**0 204 634
A1**

(12)

DEMANDE DE BREVET EUROPEEN

(21) Numéro de dépôt: **86401184.6**

(51) Int. Cl.4: **G21F 9/30**

(22) Date de dépôt: **03.06.86**

(30) Priorité: **07.06.85 FR 8508666**

(43) Date de publication de la demande:
10.12.86 Bulletin 86/50

(84) Etats contractants désignés:
BE CH DE GB IT LI LU NL SE

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

(72) Inventeur: **Giroux, Pierre
36, rue de Tivoli
F-21000 Dijon(FR)
Inventeur: Maj, Michel
Marsannay Le Bois
F-21380 Messigny(FR)
Inventeur: Theis, Gilbert
9, rue Strauss
F-67450 Mundolsheim(FR)**

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

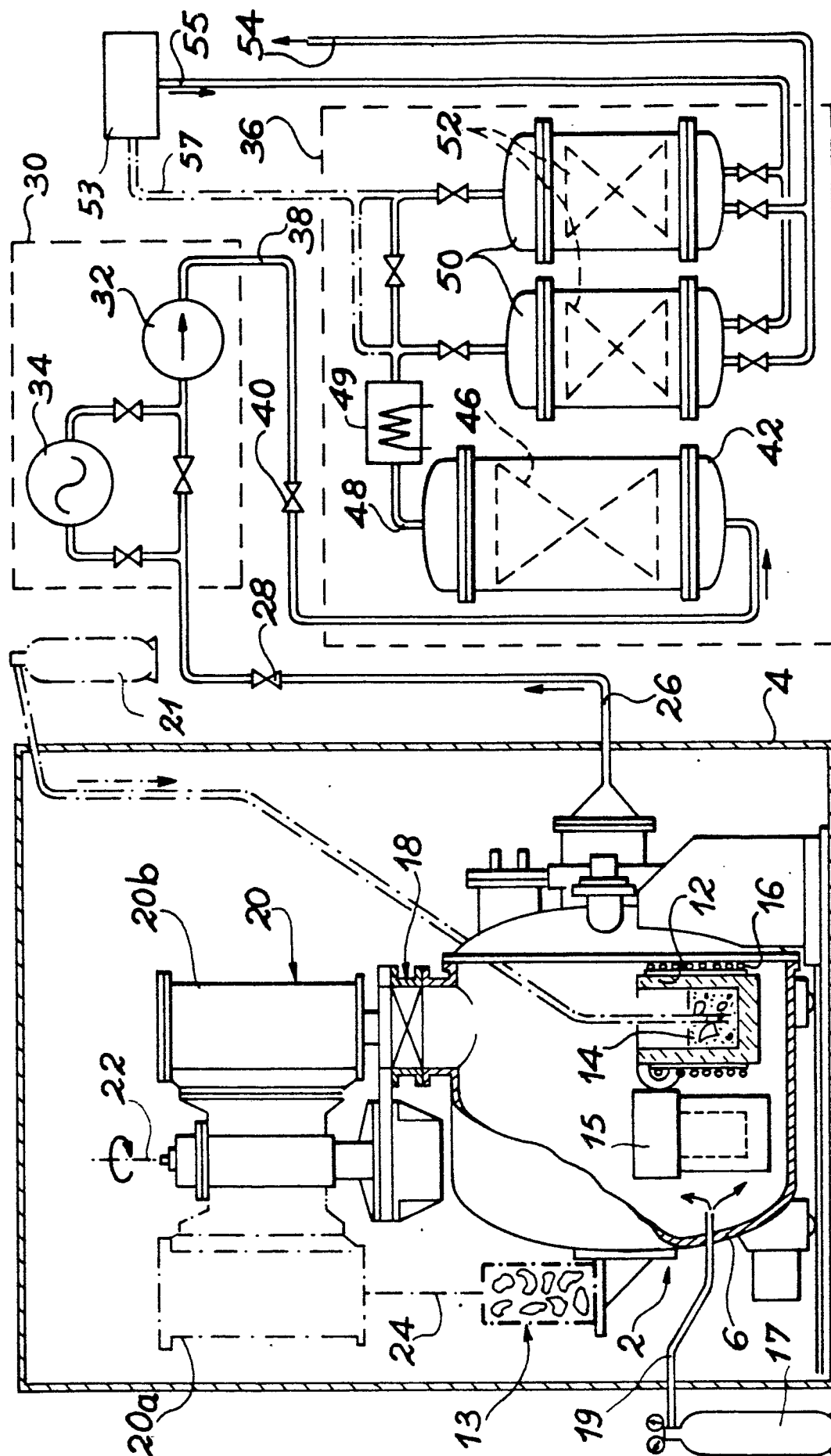
(54) **Procédé et dispositif pour le traitement de déchets tritiés solides non organiques.**

(57) La présente invention a pour objet un procédé et un dispositif pour le traitement de déchets tritiés solides et fusibles.

Ces déchets (14) sont fondus dans un four (2) et on extrait les gaz absorbés dans la masse de déchets (14); ces gaz sont envoyés par un ensemble de pompage (30) dans un ensemble de détritiation (36) où ils passent à travers un catalyseur d'oxydation (46) puis à travers un tamis moléculaire (52) qui arrête l'eau formée au contact du catalyseur d'oxydation (46).

Application au démantèlement ou à la modification d'installations usagées ayant contenu des produits tritiés.

EP 0 204 634 A1



Procédé et dispositif pour le traitement de déchets tritiés solides non organiques

La présente invention a pour objet un procédé et un dispositif pour le traitement de déchets solides non organiques ayant été en contact avec du tritium ou ayant contenu des produits tritiés.

Lors du démantèlement ou de la modification d'installations qui ont contenu du tritium ou ont été en contact avec des produits tritiés, il est nécessaire de faire subir à ces différentes pièces un traitement spécial afin de diminuer leur teneur en tritium et leur taux de dégazage. En effet, le tritium est fortement radioactif et il est difficile de stocker ou d'entreposer ces pièces en l'état. Or, les méthodes de décontamination de pièces tritiées connues à l'heure actuelle ne permettent pas de libérer le tritium contenu dans la masse du matériau.

La présente invention a précisément pour objet un procédé de traitement de déchets tritiés simple et facile à mettre en oeuvre et qui permet de diminuer considérablement la teneur en tritium des pièces traitées. Elle permet également d'homogénéiser la teneur résiduelle, ce qui facilite la mesure de cette teneur.

Selon la principale caractéristique du procédé objet de l'invention, celui-ci comprend les étapes suivantes consistant à :

-faire fondre les déchets,

-extraire les gaz absorbés dans la masse de déchets, et

-soumettre les gaz ainsi libérés à un traitement de détritiation.

L'extraction des gaz peut se faire de plusieurs manières. On peut par exemple opérer la fusion à l'intérieur d'une enceinte dans laquelle on fait le vide ou extraire constamment l'atmosphère contenue dans l'enceinte, celle-ci étant balayée par un courant gazeux. Une autre méthode consiste à insuffler de l'hydrogène dans la masse de déchets en fusion, tout en extrayant constamment l'atmosphère contenue dans l'enceinte.

Selon un autre aspect de l'invention, le traitement de détritiation des gaz comprend les étapes suivantes consistant à :

-amener le courant gazeux au contact d'un catalyseur d'oxydation afin de transformer l'hydrogène en vapeur d'eau, et

-piéger cette vapeur d'eau sur un tamis moléculaire.

Le mot "hydrogène" utilisé dans la présente description désigne tous les isotopes de cet élément, c'est-à-dire aussi bien l'hydrogène que le deutérium ou le tritium. L'oxydation de ces éléments permet donc d'obtenir soit de l'eau, soit de l'eau lourde, soit de l'eau tritiée, soit un mélange des différentes espèces moléculaires. Le rôle du tamis moléculaire est de retenir les molécules d'eau formées lors du contact avec le catalyseur d'oxydation, ce qui permet de piéger, entre autres, l'eau tritiée. Celle-ci est ensuite soumise à un traitement ultérieur.

L'invention a également pour objet un dispositif pour la mise en oeuvre de ce procédé. Selon la principale caractéristique de ce dispositif, celui-ci comprend :

-un four pour la fusion des déchets,

-un ensemble de détritiation des gaz libérés au cours de la fusion, et

-des moyens pour amener les gaz libérés au cours de la fusion à l'ensemble de détritiation.

Selon un mode préféré de réalisation de ce dispositif, le four comprend :

-une cuve apte à recevoir un creuset contenant les déchets,

-des moyens de chauffage,

-une vanne à vide servant à fermer ladite cuve, et

-un sas d'introduction des déchets, ce sas étant mobile entre une position d'ouverture et une position de fermeture et étant séparé de la cuve par la vanne à vide lorsqu'il est en position de fermeture.

Dans le mode de réalisation préféré, le sas se présente sous la forme d'une cloche pouvant pivoter par rapport à la cuve.

Le dispositif peut comporter également des moyens pour réaliser un barbotage d'hydrogène dans la masse de déchets en fusion.

Selon une autre caractéristique du dispositif objet de l'invention, l'ensemble de détritiation comprend :

-au moins un récipient contenant un catalyseur d'oxydation, et

-au moins un récipient contenant un tamis moléculaire.

Enfin, selon une dernière caractéristique de ce dispositif, les moyens pour faire le vide dans le four et amener les gaz libérés au cours de la fusion à l'ensemble de détritiation comprennent au moins un groupe de pompage relié à la cuve du four par une première canalisation et à l'ensemble de détritiation par une deuxième canalisation. Ce groupe de pompage peut être une combinaison de pompes primaires et/ou de pompes secondaires. Il doit être particulièrement étanche vis-à-vis de l'extérieur et comporter le minimum de matériaux caractère organique, notamment le minimum d'huile ou de graisse de lubrification dans les parties en contact avec le fluide. Ceci concerne plus particulièrement le tritium gazeux, la vapeur d'eau tritiée et éventuellement les hydrocarbures tritiés.

L'invention apparaîtra mieux à la lecture de la description qui va suivre, donnée à titre d'exemple purement illustratif et nullement limitatif, en référence au dessin annexé, lequel comporte une figure unique représentant de manière schématique l'ensemble du dispositif objet de l'invention.

Si l'on se reporte au dessin, on voit que le dispositif objet de l'invention comporte d'abord un four, portant la référence générale 2, placé à l'intérieur d'une boîte à gants 4. Ce four est essentiellement constitué d'une cuve 6 disposée horizontalement et ouverte à sa partie supérieure. Dans le mode de réalisation préféré, cette cuve est réalisée en acier inoxydable à double paroi et elle est refroidie par une circulation d'eau. A l'intérieur de cette cuve peut être placé un creuset 12 en matériau réfractaire qui contient les déchets tritiés 14. Ceux-ci sont chauffés par induction grâce à une bobine 16 lorsque leur nature le permet. S'il s'agit de déchets en aluminium, on peut utiliser un creuset en graphite afin de réaliser un couplage électromagnétique. Dans ce cas, la température de la masse liquide est de l'ordre de 900°C. On peut encore ajouter un fondant pour faciliter la fusion ou ajouter un autre métal afin de réaliser un eutectique et abaisser ainsi la température de fusion. S'il s'agit de déchets en acier inoxydable, la masse liquide est à une température de l'ordre de 1600°C. Dans ce cas, on peut ajouter du graphite aux déchets afin de faciliter la réalisation du couplage électromagnétique. Eventuellement, le carbone peut se combiner avec le fer pour donner un carbure dont le point de fusion est inférieur à celui de l'acier inoxydable. A sa partie supérieure, la cuve 6 est fermée par une vanne à vide 18, laquelle est surmontée d'un sas 20 servant à l'introduction des produits à traiter. Dans le mode de réalisation préféré illustré ici, le sas 20 se présente sous la forme d'une cloche ouverte vers le bas et pouvant pivoter autour d'un axe 22. Le sas est ainsi mobile entre une position d'ouverture 20a représentée en traits mixtes sur la figure et une

position de fermeture 20b représentée en traits pleins. Une nacelle 13 contenant les déchets est introduite à l'intérieur du sas par le bas, lorsque celui-ci est en position d'ouverture, grâce à un câble 24. On voit encore, à l'intérieur de la cuve 6, une lingotière 15 dans laquelle on coule le liquide contenu dans le creuset 12 une fois que celui-ci est rempli. Ceci facilite le démoulage du lingot une fois solidifié. Dans le cas particulier décrit ici, le remplissage de la lingotière se fait par pivotement du creuset 12.

Une canalisation 26 équipée d'une vanne 28 met la cuve 6 du four en communication avec un ensemble de pompage 30 qui, dans l'exemple représenté ici, comporte une pompe primaire 32 et une pompe secondaire 34. Ces pompes permettent d'une part de faire le vide à l'intérieur du four et, d'autre part, d'envoyer les gaz libérés au cours de la fusion des déchets 14 à l'ensemble de détritiation 36 qui sera décrit plus loin dans la suite du présent texte. Suivant les cas, on utilise soit la pompe primaire 32, soit la pompe secondaire 34, suivant que l'on désire obtenir un vide plus ou moins poussé. On peut aussi réaliser un balayage de la cuve 6 par un gaz approprié, par exemple l'argon, l'hydrogène, l'air sec ou l'hélium. Pour cela, on utilise par exemple une bouteille de gaz comprimé 17 placée à l'extérieur de la boîte à gants 4 et reliée à la cuve 6 par une canalisation 19 tandis que le groupe de pompage 30 reste en route afin d'extraire constamment les gaz contenus dans l'enceinte 6. Suivant les cas, on peut maintenir celle-ci sous une pression réduite de l'ordre de 300 millibars, ou sous un vide primaire, la pression étant inférieure à 1 millibar. On peut également, tout en réalisant un tel balayage, insuffler de l'hydrogène dans la masse de déchets en fusion 14, par exemple grâce à une bouteille d'hydrogène 21 placée à l'extérieur de la boîte à gants 4 et reliée au creuset 12 par une canalisation 23. On réalise ainsi une dilution isotopique : la teneur des déchets en isotopes de l'hydrogène restant constante, si on introduit de l'hydrogène par barbotage, on augmente la teneur en hydrogène et on diminue la teneur en tritium. Cette méthode a donc pour effet d'accélérer la détritiation, d'autant plus que l'hydrogène en excès entraîne le tritium qui s'est ainsi dégagé.

On voit encore sur la figure que l'ensemble de pompage 30 est relié à l'ensemble de détritiation 36 par une canalisation 38 équipée d'une vanne 40. La canalisation 38 débouche dans un récipient 42, qui contient un catalyseur d'oxydation 46. Celui-ci peut être, par exemple, un produit de la série Déoxo commercialisé par la Société ENGELHARD. Une canalisation 48 relie le récipient 42 à deux récipients 50 placés en parallèle et contenant chacun un tamis moléculaire 52. Les gaz ayant

traversé l'ensemble de détritiation 36 et sortant à la partie inférieure des récipients 50 sont extraits à travers une canalisation 54 reliée à un dispositif d'extraction. Dans le cas particulier décrit ici, il y a deux tamis moléculaires placés en parallèle, mais un seul est utilisé à la fois. En effet, lorsque l'un de ces tamis est saturé, on envoie le gaz à traiter sur l'autre et le premier est désorbé au moyen d'un dispositif de régénération 53. Ce dispositif comprend un piège froid et une pompe de circulation. Il permet de réaliser une circulation d'air sec à contre-courant dans les tamis moléculaires. C'est ainsi que l'air sec va du régénérateur 53 à la partie inférieure des récipients 50, traverse les tamis moléculaires 52 de bas en haut et retourne au régénérateur 53 par une canalisation 57. Enfin, on voit encore sur la figure que la canalisation 48 est équipée d'un échangeur de chaleur 49 afin de refroidir les gaz qui sortent du récipient 42 contenant le catalyseur d'oxydation 46.

Une opération de détritiation se déroule de la manière suivante :

On place une première nacelle de déchets dans le creuset. On ferme la cuve du four. On met alors en route les moyens de chauffage 16 afin d'obtenir la fusion des déchets 14. Le sas 20 est alors pivoté afin de l'amener en position d'ouverture 20a, puis une nacelle 13 contenant une masse de déchets métalliques est introduite à l'intérieur du sas au moyen du câble 24. On fait ensuite pivoter le sas afin de l'amener en position de fermeture.

On vide alors le sas au moyen du groupe de pompage. On retire la vanne à vide et le sas est en communication directe avec la cuve 6. On descend alors la nacelle 13 à l'intérieur du creuset 12.

Le principal avantage du sas est qu'il permet d'introduire successivement plusieurs charges sans arrêter les moyens de chauffage et sans casser le vide. En effet, les déchets à traiter, lorsqu'ils sont placés en vrac, occupent un volume important puisqu'il s'agit essentiellement de récipients, tuyaux, robinets, vannes, etc... Lorsqu'ils sont fondus, la masse en fusion (et donc la masse solide qui en résultera après solidification) est beaucoup plus compacte et n'occupe qu'une partie du volume du creuset. C'est pourquoi on peut procéder à plusieurs chargements au cours d'une même opération afin de remplir complètement le creuset 12. Lorsque le sas est en position d'ouverture, la cuve 6 du four est fermée de manière étanche par la vanne à vide 18 et le vide règne toujours à l'intérieur de la cuve. Il est à remarquer que la nacelle elle-même fond avec les déchets et qu'il est donc préférable de la réaliser en un matériau léger et peu coûteux et dont le point de fusion soit compatible avec celui des déchets à traiter.

Comme les gaz contenus dans l'enceinte 6 sont extraits en permanence, les gaz contenus dans les produits 14 se dégagent en permanence au cours de la fusion et sont évacués grâce au groupe de pompage 30. Comme le tritium est un gaz et que l'eau tritiée se vaporise, ceci a pour effet d'éliminer la plus grande partie du tritium ou de l'eau tritiée absorbé dans les déchets. Les gaz sont envoyés, à travers la canalisation 38, jusqu'au récipient 42. Au cours de leur passage à travers ce récipient, ils sont en contact avec le catalyseur d'oxydation 46, ce qui a pour effet d'oxyder les isotopes de l'hydrogène et en particulier de transformer le tritium en eau tritiée. Cette eau tritiée, qui est sous forme de vapeur, passe ensuite le long de la canalisation 48 et traverse les récipients 50 qui contiennent les tamis moléculaires 52. Lors du passage des gaz à travers ces tamis moléculaires, ceux-ci retiennent toute la vapeur d'eau, et donc l'eau tritiée qui subira ensuite un traitement particulier.

Le procédé et le dispositif objets de l'invention présentent des avantages particulièrement intéressants dont le principal est qu'ils permettent d'obtenir une masse métallique dans laquelle le taux de tritium (et donc l'activité) a été considérablement diminué. Ceci est d'abord dû au fait que la plus grande partie du tritium a été évacuée avec les gaz pendant la fusion. D'autre part, les déchets qui initialement occupaient un grand volume et présentaient une surface de contact importante avec l'air, se retrouvent, après fusion et solidification, sous la forme d'une masse compacte de faible volume et présentant une surface de contact avec l'air peu importante. Comme le taux de dégazage des composés tritiés est proportionnel à la surface, ce taux est considérablement diminué par la transformation d'une masse de déchets en une masse compacte et homogène. De plus, alors que dans les tuyaux, vannes, récipients provenant du démantèlement de l'usine, la contamination est extrêmement variable, cette dernière est homogène dans la masse solide obtenue après la fusion. On peut donc connaître le taux de contamination en faisant une seule mesure.

A titre d'essai, on a réalisé une installation capable de traiter 60 kg de déchets au cours d'un cycle, c'est-à-dire en plusieurs chargements du creuset jusqu'à remplissage de celui-ci. Certains essais ont permis de ramener l'activité des déchets de 0,57 millicurie par kilogramme à 2.10^{-3} millicurie par kilogramme, c'est-à-dire de diminuer la concentration en tritium d'un facteur de 250. D'autres essais ont permis d'obtenir des lingots manipulables sans protection particulière contre le dégazage.

Enfin, il est bien entendu que l'invention ne se limite pas au seul mode de réalisation qui vient d'être décrit ici, mais qu'on peut envisager des variantes sans sortir pour autant du cadre de l'invention. C'est ainsi que l'homme de l'art pourra utiliser d'autres types de fours ou choisir le type de pompe qui convient le mieux pour l'installation de pompage, ou modifier le nombre et la disposition des récipients de l'ensemble de détritiation, et les placer en parallèle ou en série.

Revendications

1. Procédé de traitement de déchets tritiés solides et fusibles, caractérisé en ce qu'il comprend les étapes suivantes consistant à : -faire fondre les déchets (14),

-extraire les gaz absorbés dans la masse de déchets (14), et

-soumettre les gaz ainsi libérés à un traitement de détritiation.

2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'extraction des gaz se fait en opérant la fusion à l'intérieur d'une enceinte (6) dans laquelle on fait le vide.

3. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'extraction des gaz se fait en opérant la fusion à l'intérieur d'une enceinte (6) dont on extrait constamment l'atmosphère, l'enceinte (6) étant balayée par un courant gazeux.

4. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'extraction des gaz se fait en opérant la fusion à l'intérieur d'une enceinte dont on extrait constamment l'atmosphère, un courant d'hydrogène étant envoyé à l'intérieur de la masse de déchets en fusion (14), réalisant ainsi un barbotage d'hydrogène dans la masse de déchets en fusion.

5. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que le traitement de détritiation des gaz comprend les étapes suivantes consistant à :

-amener le courant gazeux au contact d'un catalyseur d'oxydation afin de transformer l'hydrogène en vapeur d'eau, et

-piéger cette vapeur d'eau sur un tamis moléculaire.

6. Dispositif pour le traitement de déchets tritiés solides et fusibles, caractérisé en ce qu'il comprend :

-un four (2) pour la fusion des déchets (14),

-un ensemble de détritiation (36) des gaz libérés au cours de la fusion et

5 -des moyens (32, 34) pour amener les gaz libérés au cours de la fusion à l'ensemble de détritiation - (36).

7. Dispositif selon la revendication 6, caractérisé en ce que le four comprend :

10 -une cuve (6) apte à recevoir un creuset (12) contenant les déchets (14),

-des moyens de chauffage (16),

15 -une vanne à vide (18) fermant ladite cuve (6), et

-un sas (20) d'introduction des déchets, ce sas - (20) étant mobile entre une position d'ouverture - (20a) et une position de fermeture (20b) et étant séparé de la cuve (6) par la vanne à vide (18) lorsqu'il est en position de fermeture.

8. Dispositif selon la revendication 7, caractérisé en ce que le sas (20) se présente sous la forme d'une cloche pouvant pivoter par rapport à ladite cuve (6).

9. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 6 à 8, caractérisé en ce qu'il comporte en outre des moyens pour réaliser un barbotage d'hydrogène dans la masse de déchets en fusion.

30 10. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 6 à 9, caractérisé en ce que l'ensemble de détritiation (36) comprend :

35 -au moins un récipient (42) contenant un catalyseur d'oxydation (46), et

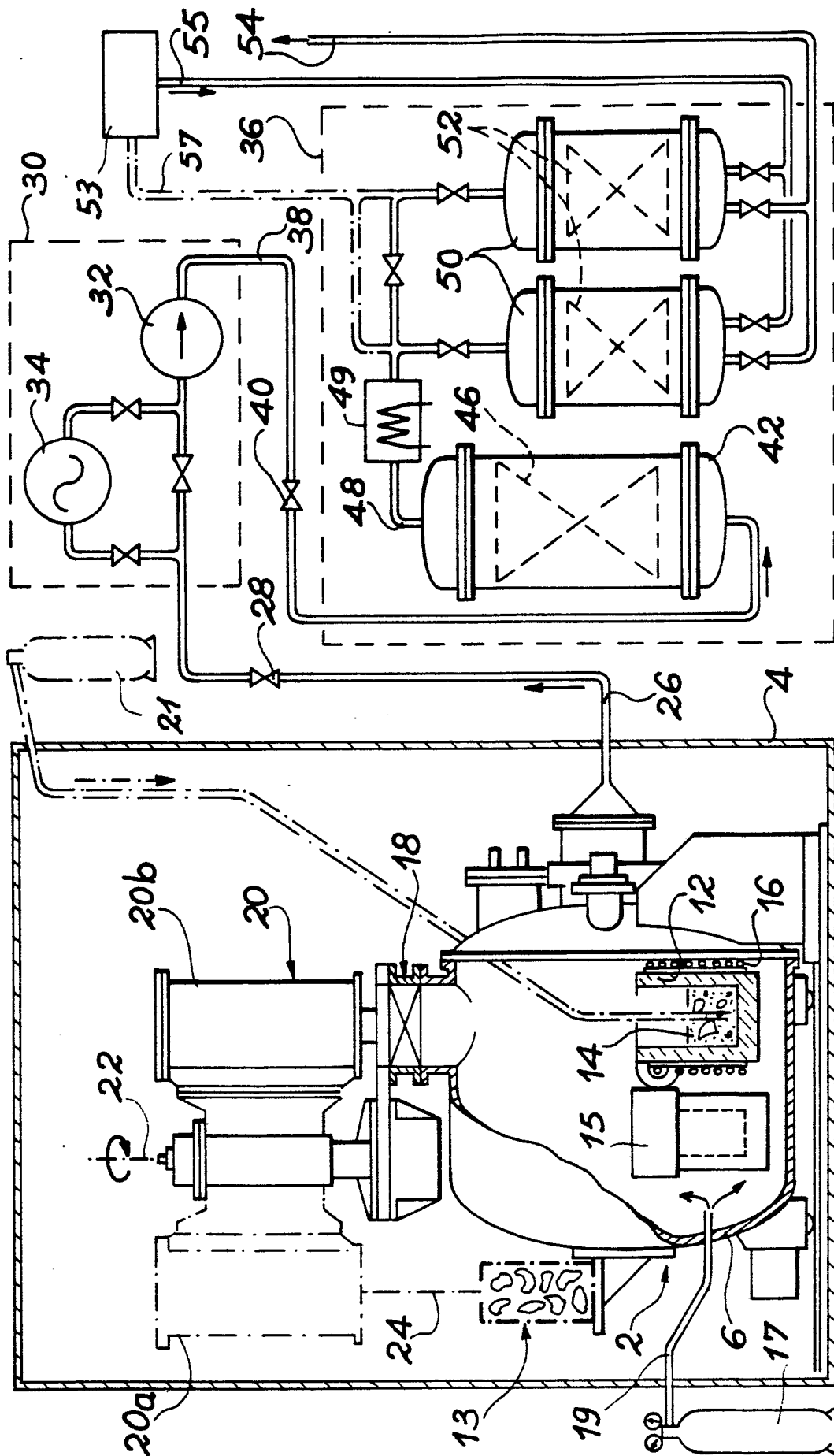
-au moins un récipient (50) contenant un tamis moléculaire (52).

40 11. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 6 à 10, caractérisé en ce que les moyens pour amener les gaz libérés au cours de la fusion à l'ensemble de détritiation (36) comprennent au moins une pompe (32) reliée à la cuve (6) du four (2) par une première canalisation (26) et à l'ensemble de détritiation (36) par une deuxième canalisation (38).

12. Dispositif selon la revendication 11, caractérisé en ce que ladite pompe est une pompe primaire (32).

13. Dispositif selon la revendication 12, caractérisé en ce que les moyens pour amener les gaz libérés au cours de la fusion à l'ensemble de détritiation (36) comprennent en outre une pompe secondaire (34) associée à la pompe primaire (32).

55





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. 4)
Y	US-A-4 285 891 (BRAY) * Revendications 1,2,6 *	1,3-5, 9	G 21 F 9/30
Y	DE-A-2 434 876 (ENGELHARD) * Revendications 1,2; page 9, lignes 7-10 *	1,3-5, 9	
A	GB-A-1 096 072 (UKAEA) * Revendications 1,2 *	1,7	
A	EP-A-0 036 961 (JÜLICH) * Revendications 1,2 *	1,5	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl. 4)
			G 21 F C 01 D
Le présent rapport de recherche a été établi pour toutes les revendications			
Lieu de la recherche LA HAYE		Date d'achèvement de la recherche 18-07-1986	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	