

# Procédés industriels de vitrification des solutions de déchets liquides de haute activité

*Aperçu des diverses techniques couramment utilisées pour traiter les déchets liquides et les stabiliser dans du verre*

par W. Baehr

Dans les pays qui pratiquent le retraitement du combustible nucléaire, la gestion des déchets de haute activité consiste essentiellement à stabiliser les solutions dans des masses monolithiques. L'étude de procédé de solidification des solutions concentrées de produits de fission a commencé il y a plus de 30 ans dans quelques pays. Il s'agissait d'abord de définir un support matériel approprié, appelé matrice, pour ensuite mettre au point des procédés industriels de solidification.

Pour encapsuler les produits de fission, divers matériaux ont été proposés — calcins dénitratés, verres, céramiques cristallines, ou formes plus complexes, telles que pastilles enrobées de matériaux durables et de verre, ou perles de céramique noyées dans des matrices inertes. Plus récemment, le verre n'a cessé de recueillir des suffrages car il offre le meilleur compromis quant à ses propriétés, à la facilité de fabrication et à l'expérience qu'on en a. Plusieurs sortes de verres ont été étudiées, mais seuls les verres de silicate et de borosilicate ont été retenus.

Dans le monde, nombre de procédés de solidification ont été mis au point et présentés, mais, pour diverses raisons, il ne sont pas encore utilisés. L'expérience acquise est néanmoins très valable et a été largement exploitée pour réaliser les installations industrielles actuellement en service, lesquelles n'utilisent d'ailleurs que le procédé de vitrification.

L'opération comporte plusieurs phases: concentration des solutions de déchets par évaporation de l'eau et de l'acide nitrique; dessiccation et calcination, avec transformation des nitrates en oxydes; réaction des oxydes avec les additifs vitrifiables, puis fusion et solidification du mélange.

Selon le procédé utilisé, ces différentes opérations se font en une seule fois ou séparément. Dans les procédés les plus courants, la dessiccation et la calcination se font en une seule et même opération dans un four rotatif.

Pour la fusion du verre, on utilise essentiellement deux sortes de fours, l'un en métal, l'autre en céramique. Avec le four métallique, la cuve est chauffée par

induction et transmet la chaleur à son contenu. Ses principaux avantages sont un maniement facile et un faible prix de revient. L'inconvénient est que la production se limite à 30 à 40 litres/heure. En revanche, dans les fours céramiques, dont le chauffage est assuré par des électrodes plongées dans la masse, la production peut dépasser les 100 litres/heure, mais la manœuvre est compliquée et l'opération coûte encore fort cher.

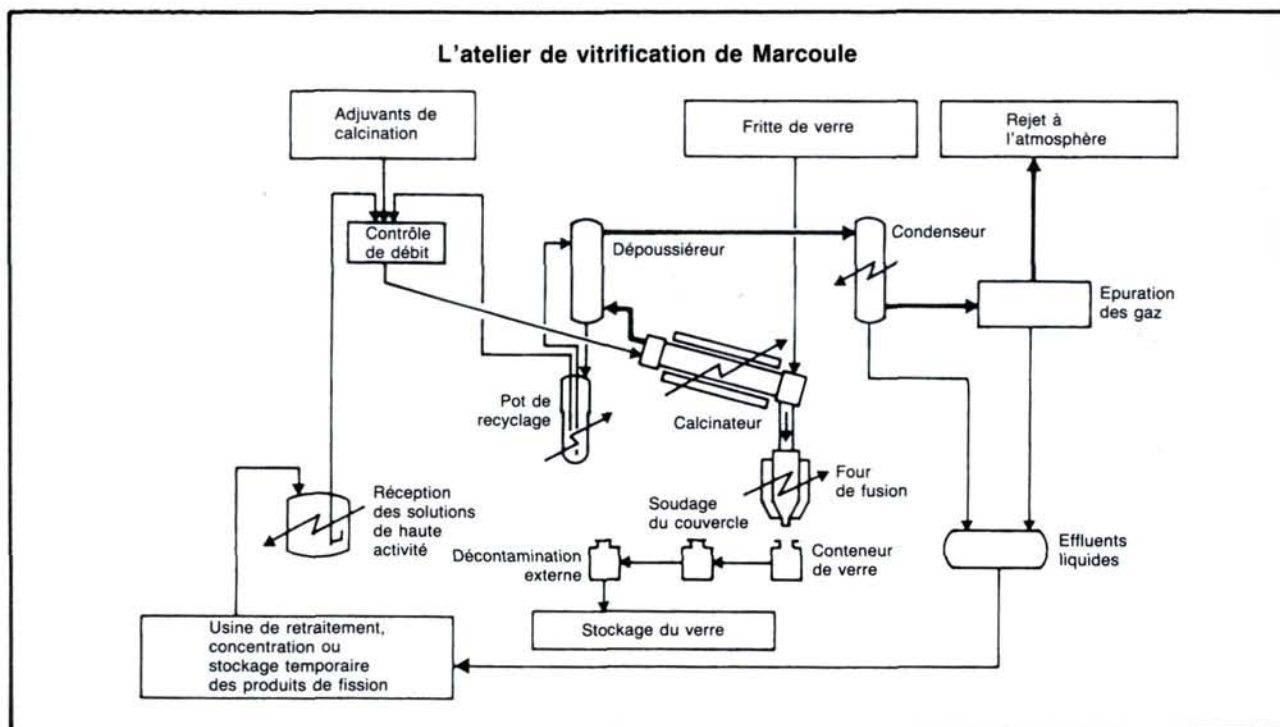
Il existe en gros deux procédés de vitrification pour incorporer les solutions de déchets liquides de haute activité à du verre au borosilicate. Le premier est le procédé français bien connu dit AVM (Atelier de Vitrification de Marcoule), qui est une opération en continu à deux étages dont l'application industrielle au traitement des déchets de haute activité a commencé en 1978. L'autre procédé est aussi en continu mais à un seul étage et utilise un four céramique; la démonstration en actif en a été faite en 1985 par l'installation Pamela que la République fédérale d'Allemagne a réalisée à Mol, en Belgique.

## Le procédé AVM

Ce procédé combine un calcinateur rotatif et un four de fusion chauffé par induction (*voir la figure*). La solution de produits de fission de haute activité mélangée à des additifs de calcination est introduite à la partie supérieure du calcinateur qui tourne à 30 tours/minute sur son axe légèrement incliné. Celui-ci repose à chaque extrémité sur des roulements à rouleaux. Des obturateurs spéciaux ferment les deux extrémités du tube et permettent une expansion longitudinale tout en assurant l'étanchéité. Un racleur est monté à l'intérieur pour éviter la formation d'un gâteau. Le four ainsi constitué est chauffé de l'extérieur par une batterie de quatre résistances électriques. Les deux premières, qui assurent l'évaporation, ont une puissance de 20 kilowatts chacune, tandis que les deux autres sont de 10 kilowatts chacune. La température passe de 225°C au niveau de l'alimentation à un maximum de 600°C. Le débit de la solution de déchets est normalement de 40 litres par heure environ. La sortie du four communique avec le four de fusion dans lequel tombent les produits calcinés. Celui-ci est chauffé à 1150°C par induction en moyenne fréquence. La fritte est introduite simultanément; le pot

M. Baehr est membre de la Division du cycle du combustible nucléaire et de la gestion des déchets (AIEA).





est vidé toutes les huit heures par un orifice de coulée situé à sa partie inférieure, après fusion d'un bouchon de verre normalement solidifié. La capacité du pot est de quelque 15 kg/h.

Les gaz produits dans le four et dans le calcinateur sont évacués à la sortie de ce dernier et traités d'abord dans un épurateur à chaud. Les particules entraînées par les gaz sont piégées et dissoutes par un courant d'acide nitrique à température d'ébullition, qui est constamment recyclé dans le calcinateur. Les gaz passent ensuite successivement dans une colonne de recombinaison qui retient les nitrates, deux colonnes d'absorption et des filtres. Ils sont ensuite évacués dans l'atmosphère. L'acide recombiné est recyclé.

Le verre est coulé dans un conteneur en acier inoxydable ensuite fermé par un couvercle automatiquement soudé à l'arc, puis décontaminé par lavage à l'eau sous une pression de 250 bars, et enfin transféré dans un puits de stockage provisoire ventilé.

A la fin d'octobre 1988, l'atelier de vitrification de Marcoule avait traité quelque 1225 m<sup>3</sup> de solution de produits de fission, représentant une activité totale de 250 mégacuries\*. Cette quantité représente 1547 conteneurs et environ 540 tonnes de verre.

Le même procédé sera utilisé dans deux installations de vitrification conçues et réalisées par la Société générale des techniques nouvelles, sur le site de l'usine de retraitement de La Hague. Les deux ateliers seront pratiquement identiques et comporteront chacun trois chaînes de vitrification, chacune ayant une capacité d'évaporation de 60 l/h et une production de verre nominale de 25 kg/h.

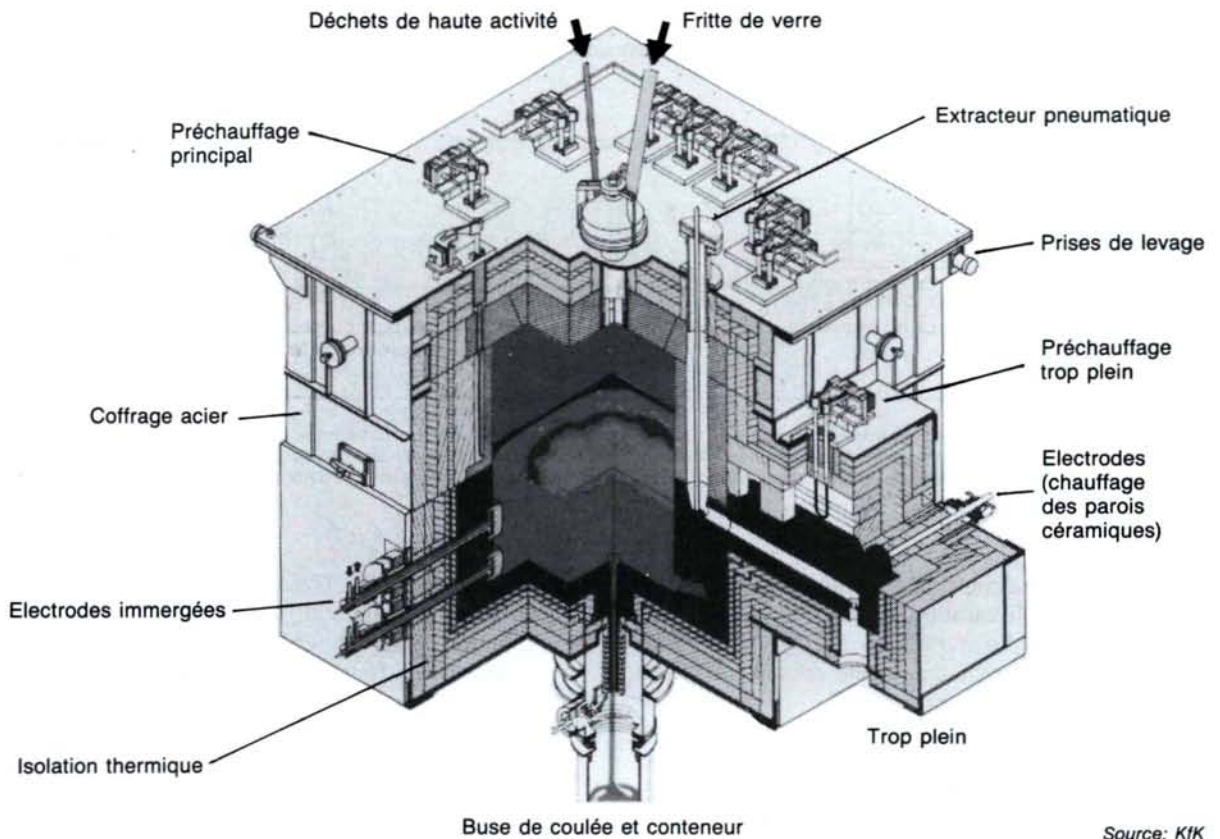
Le procédé AVM a été adopté pour l'usine de vitrification de Windscale, à Sellafield (Royaume-Uni), qui comportera deux chaînes de fabrication.

### Le procédé Pamela

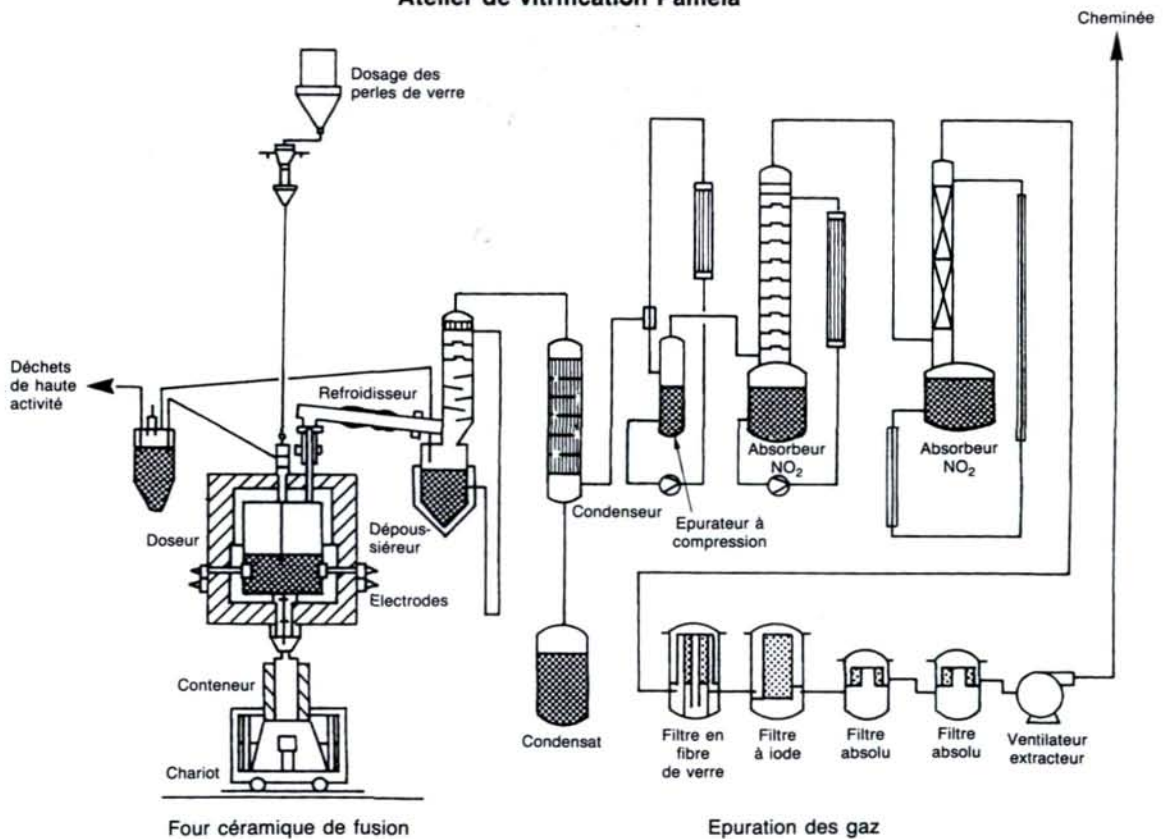
C'est un procédé qui assure toutes les opérations dans le même appareil. La solution de produits de fission de haute activité est introduite directement dans le four de fusion en même temps que les composants du verre, ou séparément, et l'évaporation, la calcination et la fusion ont lieu simultanément. La formule céramique a été choisie parce qu'il est possible d'assurer le chauffage par effet Joule, étant donné que le verre est bon conducteur à haute température. Les électrodes, alimentées en courant alternatif, sont directement immergées dans la masse de verre. La chaleur diffusée dans cette masse la maintient à l'état de fusion et fait fondre toutes les matières qui viennent s'y ajouter. Les fours de ce type sont construits en matériaux réfractaires d'une grande résistance à la corrosion. La puissance thermique est obtenue par deux paires d'électrodes plates en Inconel-690, montées à deux niveaux dans le four, correspondant à 1150-1200°C (voir la figure). La coulée du verre se fait soit par une buse de fond soit par un extracteur pneumatique. Deux circuits de chauffage sont utilisés pour élever la température du verre dans le conduit de la bonde pour amorcer la coulée. Pour interrompre celle-ci, il suffit de couper l'un des circuits. Un dispositif de chauffage analogue est utilisé pour le remplissage des conteneurs par l'extracteur. Les gaz produits dans le four passent par un épurateur à plusieurs étages avant d'être rejetés dans l'environnement. Les épurateurs utilisés dans les divers procédés de vitrification sont fondamentalement analogues (voir le schéma simplifié du procédé Pamela).

\* 1 MCi (mégacurie) = 37 × 10<sup>6</sup> GBq (gigabecquerels).

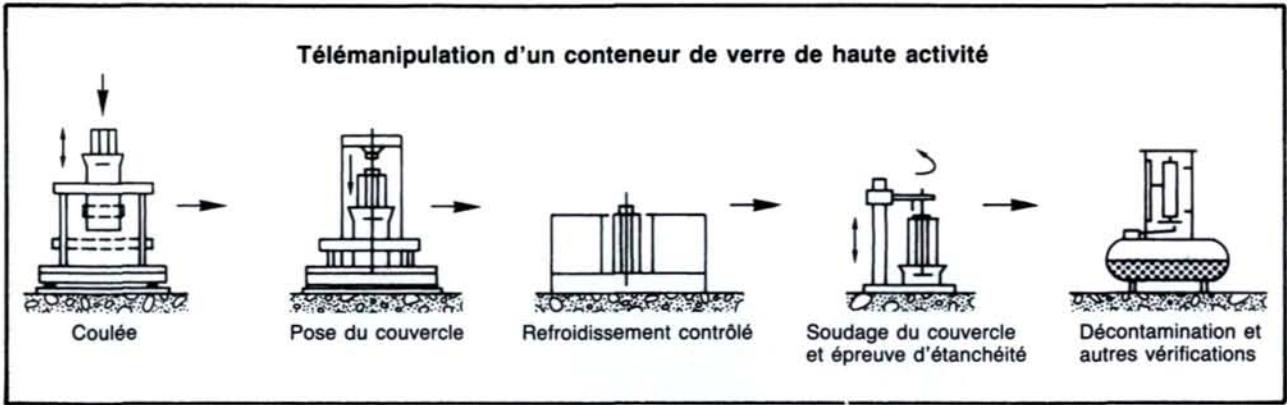
### Four céramique à électrodes (procédé Pamela)



### Atelier de vitrification Pamela







Cette séquence de manipulation est généralement pratiquée dans les ateliers de vitrification qui utilisent le procédé AVM ou le procédé Pamela. Après la coulée du verre, le conteneur fait l'objet d'un certain nombre d'opérations en vue de son stockage. Les principales opérations sont le refroidissement contrôlé du conteneur après remplissage, le soudage du couvercle, l'épreuve d'étanchéité et, enfin, la décontamination.

Le refroidissement contrôlé des conteneurs est nécessaire pour éviter la fissuration du verre et la détérioration de sa qualité. La surveillance et la décontamination des fuites assurent qu'aucune contamination ne s'échappe de l'atelier de vitrification.

Depuis sa mise en service en octobre 1985, jusqu'en mai 1988, l'installation de Pamela a vitrifié environ 265 m<sup>3</sup> de solution de déchets de haute activité, ce qui représente 1381 conteneurs totalisant environ 265 tonnes de verre, et 9 mégacuries.

### Conclusion

Les techniques de vitrification des déchets liquides de haute activité ont fait de grands progrès au cours des dix dernières années.

Le procédé AVM français a fait ses preuves et fonctionne en toute sûreté depuis des années à Marcoule. Deux nouveaux ateliers ont été construits à La Hague et équipés du même type de matériel: calcinateur rotatif et four métallique. Le premier de ces nouveaux ateliers a démarré en actif en 1989 et le deuxième doit être mis

en service en 1990. Une installation analogue est en construction à Sellafield, au Royaume-Uni, et devrait aussi entrer en service en 1990.

Le procédé à four céramique, mis au point pendant les années 70, a été choisi par plusieurs pays et en est à divers stades de mise en œuvre. La République fédérale d'Allemagne exploite avec succès la variante Pamela du procédé, à l'usine de retraitement d'Eurochemic, en Belgique. L'URSS exploite aussi un atelier de vitrification depuis 1986-1988, également équipé d'un four céramique. Des installations de ce type sont actuellement en construction à Savannah River et à West Valley (Etats-Unis), et sur le site de Tokai (Japon). D'autres installations sont à l'étude pour Hanford (Etats-Unis) et pour le Japon. Elles sont prévues pour des productions industrielles et répondent à tous les critères normalisés industriels et nucléaires.

Au cours des prochaines années, le procédé à four céramique doit faire la preuve de sa sûreté et de son efficacité en parallèle avec le procédé AVM. Les verres de haute activité produits par ces deux moyens doivent répondre aux normes exigées par les autorités responsables des dépôts de déchets de haute activité.

