

Solidification des déchets de haute activité

par John R. Grover

Depuis l'apparition de l'énergie nucléaire, la gestion des déchets radioactifs est une préoccupation majeure, tant dans le public que dans les milieux industriels, notamment pour ce qui est du rejet des matières radioactives dans le milieu et des risques de contamination. Or, c'est le combustible nucléaire irradié qui contient les plus grandes quantités de radioactivité. Si l'on arrive à lever les doutes qui pèsent actuellement sur l'application de garanties au retraitement du combustible et que l'on traite le combustible irradié de façon à recycler les matières fissiles, la gestion et l'évacuation des déchets de haute activité prendront une importance considérable au cours des prochaines décennies au fur et à mesure qu'augmentera la capacité de production nucléaire mondiale.

Pour retraiter le combustible nucléaire irradié, on le dissout, habituellement dans une solution d'acide nitrique, puis on extrait par solvant le plutonium et l'uranium inemployé. La solution restante, qui contient plus de 99,9% des produits de fission non volatils, ainsi que certains autres constituants provenant des matières formant la gaine, des traces de plutonium et d'uranium non séparés et la plupart des éléments transuraniens, constitue le déchet fortement radioactif.

Ce déchet liquide est habituellement concentré par évaporation et stocké sous forme de solution aqueuse d'acide nitrique dans des cuves d'acier inoxydable de haute intégrité. Le stockage dans des cuves s'est révélé à l'expérience satisfaisant, mais la poursuite d'une telle pratique impliquerait une surveillance technique constante et le remplacement périodique des bacs au cours des siècles. Le stockage liquide pourra être considéré comme satisfaisant pendant quelques dizaines d'années mais, avec le développement de l'énergie d'origine nucléaire, on admet généralement qu'il sera préférable à long terme de remplacer ce mode de stockage par un autre système basé sur la solidification des déchets.

La conversion des déchets de haute activité en masses solides est à l'étude depuis vingt ans. Des opérations pilotes à l'échelle industrielle pour la démonstration de procédés de calcination et de vitrification ont été menées avec succès et la mise au point se poursuit de procédés plus perfectionnés.

Dans le cadre des activités de l'AIEA relatives à la gestion des déchets, le Secrétariat de l'Agence a établi un document qui fait le bilan des techniques actuelles. Ce document, revu et corrigé par un groupe consultatif qui s'est réuni à Karlsruhe, en République fédérale d'Allemagne, en 1977, vient d'être publié dans la collection Rapports techniques sous le n° 176 "Techniques for the Solidification of High-Level Radioactive Wastes".

Le présent article expose les grandes lignes de ce rapport, principalement les aspects fondamentaux des nombreux procédés qui ont été mis au point, afin de donner une idée de la grande variété des solutions possibles. Il se termine par un tour d'horizon de la situation actuelle et des perspectives ouvertes à la solidification des déchets dans le cadre plus général

M. Grover fait partie de la Section de la gestion des déchets, à la Division de la sûreté nucléaire et de la protection de l'environnement.

de la gestion des déchets du cycle du combustible nucléaire. Les lecteurs qui souhaiteraient une description plus détaillée des procédés ou de la conception, de l'exploitation, de l'entretien, des possibilités d'expansion et d'adaptation ainsi que de la sûreté des installations sont invités à se reporter aux chapitres correspondants du Rapport technique n° 176.

Principales caractéristiques des procédés de solidification

Tout procédé de solidification vise essentiellement à convertir une solution de déchets de haute activité en un produit moins mobile, nécessitant moins de surveillance et se prêtant mieux à une évacuation définitive. Ce produit doit répondre à certains critères: il doit, par exemple, conserver son intégrité mécanique, bien résister à l'irradiation, avoir la conductivité thermique voulue et, si possible, un taux de lixiviation très faible. En l'état actuel des connaissances, les verres et les céramiques sont considérés comme se prêtant bien à l'évacuation définitive.

La figure 1 montre quels sont les procédés fondamentaux de solidification. La méthode la plus simple consiste tout d'abord en une évaporation suivie d'une dénitration (ou «calcination») de la solution de déchets qui donne un produit calciné se présentant soit sous forme de granulés soit sous forme solide. (Ces produits calcinés sont considérés seulement comme provisoires car ils ne répondent pas suffisamment à tous les critères précités.) Cependant, les produits calcinés en granulés peuvent être mélangés à des additifs puis transformés par fusion en verre ou en céramique. Une autre solution consiste à mélanger les additifs à la solution de déchets, puis, par évaporation, dénitration et fusion, à former en une seule opération un produit vitrifié ou céramique. On peut aussi recourir à un procédé d'adsorption suivi d'un traitement à haute température pour obtenir un produit céramique. Ces dernières années, on a essayé d'améliorer les propriétés des produits en leur faisant subir des traitements supplémentaires tels que l'incorporation des produits calcinés ou vitrifiés dans des particules enrobées ou dans une matrice de métal de façon à améliorer la résistance à la lixiviation et la conductivité thermique.

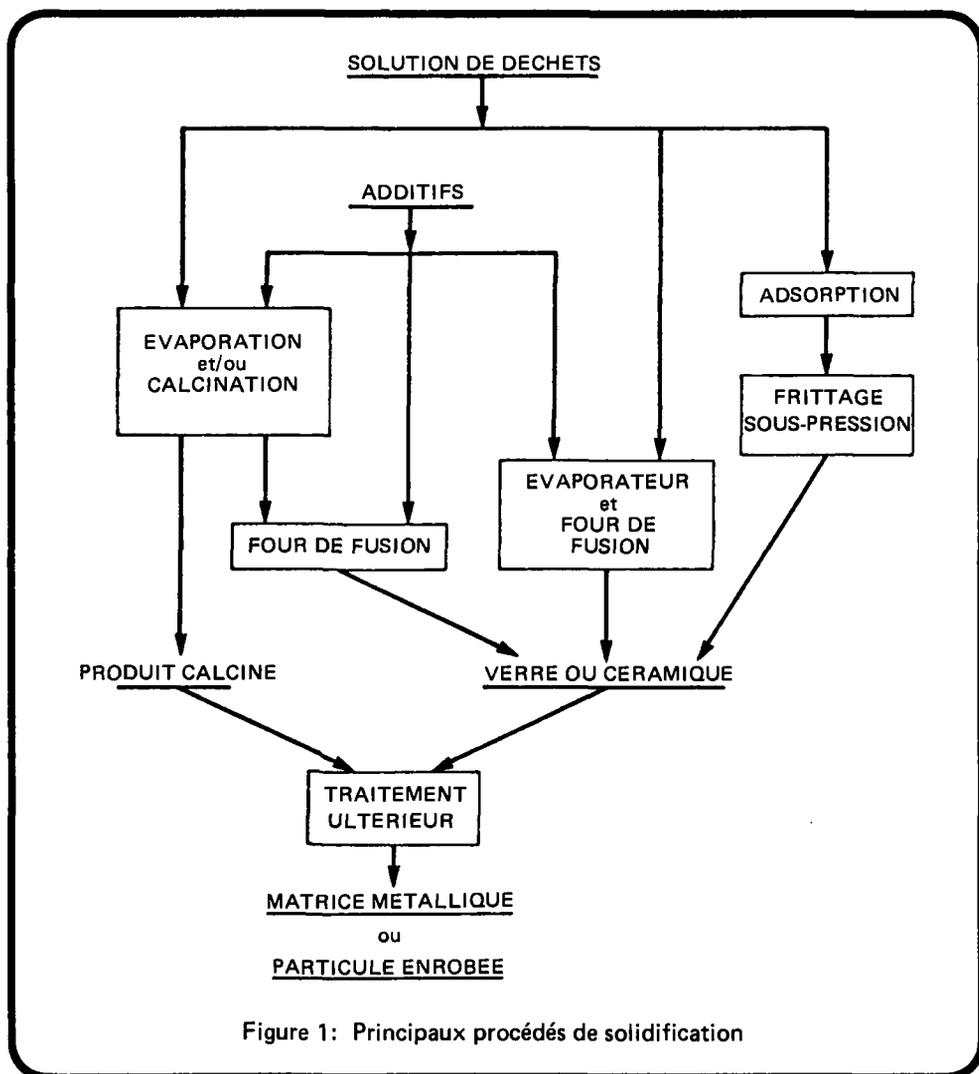
On a depuis vingt ans mis au point une trentaine de procédés différents qui peuvent être répartis, pour plus de commodité, en quatre groupes selon l'avancement des travaux de mise au point:

1. Les procédés dont on a fait la démonstration mais qui ne sont plus d'application courante.
2. Les procédés qui sont appliqués ou pour lesquels on construit et on met en service des usines de traitement des déchets provenant des installations industrielles de retraitement.
3. Les procédés à un stade avancé de mise au point.
4. Les procédés à un stade initial de mise au point.

Premier groupe

Le premier procédé comportant l'incorporation des déchets dans du verre a été mis au point à Chalk River, au Canada, où la solution de déchets a été associée à un mélange de néphéline, syénite et chaux, puis portée à une température de fusion de 1350°C. On a enterré des échantillons radioactifs de ce verre en 1960 et étudié depuis la lixiviation des nucléides. Très peu de temps après, a été mis au point à Harwell, au Royaume-Uni, le procédé FINGAL qui permet de produire à 1050°C un verre borosilicaté contenant 25 à 40% de son poids de déchets sous forme d'oxydes.

Au début des années soixante, on a étudié aux Etats-Unis plusieurs principes de solidification dont trois ont été mis à l'épreuve dans l'usine prototype de solidification de déchets WSEP (Waste Solidification Engineering Prototype) en service à Richland, dans l'Etat de Washington, de 1966 à 1971.



Les enseignements des expériences faites au Royaume-Uni et aux Etats-Unis à la fin des années soixante servent pour la recherche de nouveaux perfectionnements dans ces pays et dans d'autres.

Deuxième groupe

Les usines qui traitent déjà les déchets provenant d'installations industrielles de retraitement ou qui sont actuellement construites à cette fin ne sont qu'au nombre de quatre. Depuis 1963, des déchets contenant environ 70 mégacuries de radioactivité et provenant de l'Idaho Chemical Processing Plant de l'USAEC sont solidifiés par calcination sur lit fluidisé. Dans ce procédé, la solution de déchets est pulvérisée dans un lit fluidisé et calcinée à 400 ou 500°C de façon à produire des granulés secs que l'on stocke ensuite dans de grands réservoirs ventilés à l'intérieur de casemates souterraines. On construit actuellement une nouvelle usine qui entrera en service en 1980. Il s'agit actuellement de la seule usine fournissant un

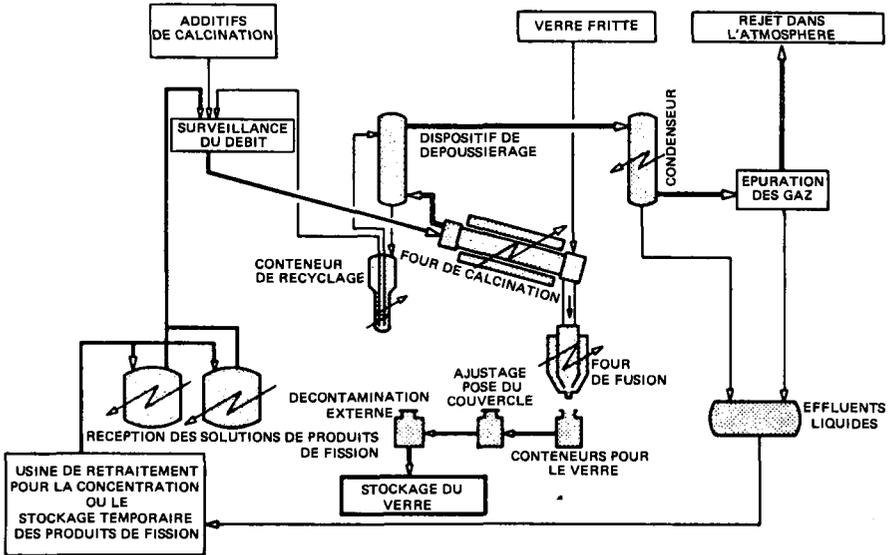
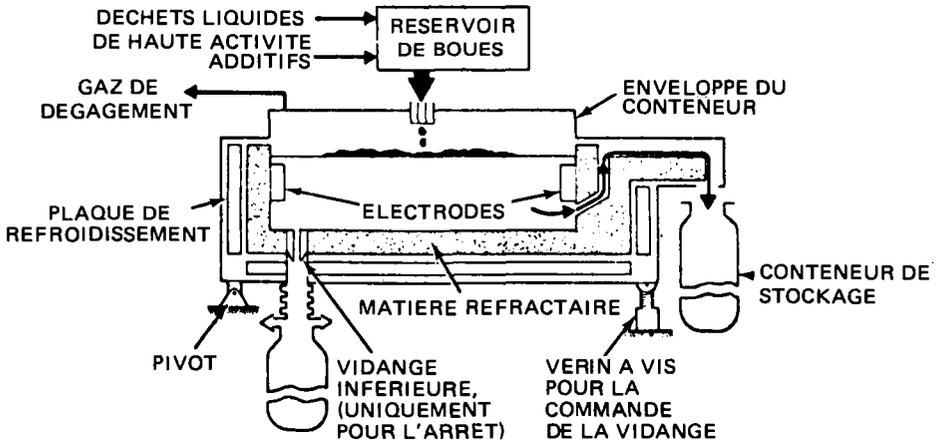


Figure 2: Diagramme d'opérations simplifié de l'usine de vitrification de Marcoule (AVM)



Dimensions de la cavité de fusion	largeur 0,86 m,	longueur 1,22 m,	hauteur 0,71 m
Dimensions extérieures	largeur 1,95 m,	longueur 2,13 m,	hauteur 1,62 m
Profondeur de verre	0,48 m		

Figure 3: Four à céramique, à alimentation liquide directe

produit calciné qui soit considérée comme adaptée aux conditions locales. Les déchets qu'elle reçoit résultent du retraitement d'éléments combustibles fortement enrichis qui n'ont que 0,1 à 1% de la radioactivité spécifique et du taux de production de chaleur des déchets provenant de réacteurs industriels de puissance.

En France, l'usine pilote PIVER a, de 1969 à 1973, converti en verre borosilicaté des déchets contenant 5 mégacuries de radioactivité et provenant de l'installation de retraitement de Marcoule. Dans cette usine, les déchets étaient mélangés à du verre fritté, calcinés à 300°C puis portés à une température de fusion. Le produit fondu était ensuite transvasé de la cuve de traitement dans un conteneur de stockage. Il est apparu que l'on pouvait répéter cette opération jusqu'à 30 fois avant d'avoir à remplacer la cuve de traitement. Ce procédé a maintenant fait place à un procédé continu en deux étapes (AVM) que l'on commence d'appliquer pour le traitement des déchets radioactifs. L'usine AVM comporte un four de calcination rotatif associé à un four de fusion. La figure 2 représente sous forme simplifiée le déroulement des opérations. Le four de calcination a une capacité théorique de 40 litres/heure et l'unité de vitrification une capacité maximale de 20 kg de produit vitrifié par heure. Il est prévu que tous les déchets provenant de Marcoule seront vitrifiés dans cette usine et une usine analogue est en construction à La Hague (AVH) pour les déchets de haute activité provenant de cette installation de retraitement.

Une usine qui applique un procédé semi-continu de vitrification en creuset comportant une calcination suivie d'une fusion dans la cuve de traitement puis le coulage du verre dans un conteneur de stockage est actuellement construite à Tarapur, en Inde. Elle entrera en service en 1980.

Troisième groupe

Un certain nombre de procédés sont actuellement à un stade avancé de mise au point au Royaume-Uni, aux Etats-Unis, en République fédérale d'Allemagne et en Union soviétique.

Le programme de mise au point HARVEST, au Royaume-Uni, qui correspond en plus grand au procédé FINGAL, aboutira à la construction, prévue pour la fin des années quatre-vingts, d'une usine à l'échelle industrielle à Windscale. Cette usine appliquera un procédé discontinu en une seule phase selon lequel la solution de déchets et les additifs de vitrification seront introduits dans une cuve cylindrique pouvant atteindre 61 cm de diamètre, où, après évaporation, dénitruration et fusion on obtiendra un verre borosilicaté.

Actuellement, on met au point aux Etats-Unis plusieurs procédés dont deux sont particulièrement prometteurs: le procédé utilisant un four de calcination à pulvérisation/fusion en bidon et le procédé avec four à alimentation liquide directe. Le procédé à four de calcination à pulvérisation est l'un de ceux qui ont fait l'objet d'une évaluation dans l'usine WSEP. Les déchets liquides sont pulvérisés dans la partie supérieure d'une cuve où ils sont chauffés à 750°C; en retombant, les gouttelettes sont séchées et calcinées à leur passage dans la zone chaude. Au bas de la cuve, elles sont ensuite mélangées à du verre fritté puis tombent directement dans le conteneur final situé dans le four de fusion. Le mélange est fondu puis le conteneur transféré pour être stocké.

Un deuxième procédé étudié aux Etats-Unis utilise un four de fusion dans lequel l'énergie de fusion est fournie par le passage d'un courant alternatif entre des électrodes noyées dans le verre. A l'origine, cet ensemble était associé à un four de calcination à lit fluidisé dans lequel la solution de déchets était calcinée. Le produit de calcination était ensuite mélangé à une poudre de verre fritté et le tout versé sur le verre fondu dans le four de fusion. Cette formule ayant donné d'excellents résultats et apporté la preuve de son efficacité à rendement élevé, il a été procédé à des essais consistant à introduire directement la solution de

déchets mélangée à du verre fritté dans le four de fusion. Les quantités traitées à chaque opération n'ont pas été aussi grandes mais l'application du procédé en une seule étape s'étant révélée satisfaisante, on fait actuellement l'essai d'une version à plus grande capacité. Le four de fusion est légèrement incliné de façon que le verre fondu se déverse dans le conteneur de stockage. Lorsque celui-ci est plein, on fait basculer le four de fusion pour le vider (voir figure 3).

Des fours de fusion analogues ont été mis au point à Karlsruhe, en République fédérale d'Allemagne, ainsi qu'en Union soviétique. A Karlsruhe, la solution de déchets est ajoutée au mélange fritté puis pulvérisée sur du verre fondu. L'évacuation se fait par un orifice situé à la partie inférieure du four et normalement bouché par une bonde munie d'une électrode; lorsqu'on veut vider le four, l'électrode est mise sous tension et la bonde partiellement retirée. L'appareil soviétique est alimenté directement en liquide (non pulvérisé) et applique l'un des rares procédés qui donne un verre phosphaté et non un verre borosilicaté.

Deux autres procédés sont à l'étude en République fédérale d'Allemagne. Gelsenberg, A.G., en collaboration avec l'Eurochemic Company, met actuellement au point le procédé PAMELA selon lequel la solution de déchets est tout d'abord concentrée et dénitree puis vitrifiée. Le produit fondu est converti en granulés ou en grains de verre qui sont ensuite incorporés dans une matrice de métal. Ce procédé diffère sur plusieurs points importants de ceux que nous avons décrits précédemment. La production de granulés se fait en continu, et il est facile au cours de l'opération de prélever des échantillons et de contrôler la qualité. Le produit final en matrice de métal a une conductivité thermique très supérieure, si bien qu'on peut fabriquer des blocs de plus grande taille et que, dans le même temps, la température du produit stocké peut être moins élevée.

Le procédé FIPS, qui est mis au point à Juliers, en République fédérale d'Allemagne, comporte deux phases au cours desquelles la solution de déchets mélangée à du verre fritté est séchée dans un séchoir à tambour, puis le produit, râclé, tombe dans un conteneur où se produit la fusion.

Quatrième groupe

Un certain nombre d'autres procédés sont actuellement à l'étude, dont quelques-uns sont très proches de ceux que nous avons déjà décrits. Nous ne citerons que ceux qui en diffèrent sensiblement.

Eurochemic étudie actuellement le procédé LOTES de traitement des déchets à forte teneur en aluminium. Ces déchets sont transformés en céramique de phosphate d'aluminium sous forme de granulés dans une colonne à agitation à 550°C puis incorporés dans une matrice de métal à 350°C, ce qui évite les températures élevées des procédés de vitrification.

Des chercheurs du Sandia Laboratory, aux Etats-Unis d'Amérique, ainsi que des chercheurs du Japon et de Suède, mettent au point des procédés fondés sur l'adsorption des déchets par des matières inorganiques échangeuses d'ions qui sont ensuite frittées.

Aux Etats-Unis, la technologie des combustibles à particules enrobées est actuellement adaptée de façon à produire des revêtements imperméables sur les particules de déchets calcinés analogues à celles qui sont produites dans un four à calcination à lit fluide. Les particules enrobées peuvent ensuite être incorporées dans une matrice de métal.

Systemes de traitement des gaz

La plupart des procédés de solidification comportent une évaporation et une dénitrification. En plus de la vapeur et des oxydes d'azote, les gaz résiduels contiennent habituellement des particules fines ainsi que des radionucléides volatiles qui ont été entraînés. Le système de traitement doit piéger toutes ces substances entraînées radioactives et faire en sorte que les rejets dans l'atmosphère soient maintenus dans des limites acceptables.

En général, les gaz résiduels qui proviennent d'une unité de solidification passent soit tout d'abord à travers un filtre, soit directement dans un condenseur ou un épurateur humide. Le condensat ou le liquide provenant de l'épurateur est ensuite dirigé vers un évaporateur-séparateur. Le concentré provenant de l'évaporateur est recyclé pour alimenter l'unité de solidification et les vapeurs provenant de l'évaporateur sont épurées de façon que l'eau et l'acide nitrique qui en sont extraits par distillation puissent resservir. Les gaz résiduels provenant du séparateur sont une nouvelle fois épurés et passent par un dernier filtre avant d'être rejetés. Dans certains cas, on emploie un filtre spécial au ruthénium.

Le système d'évacuation des gaz de l'installation de calcination des déchets d'Idaho est sensiblement plus complexe car les quantités introduites peuvent être cent fois plus grandes, essentiellement à cause du volume important d'air employé pour la fluidisation. Un système particulier a été employé à l'usine FINGAL où les gaz résiduels passaient à travers des filtres-adsorbants extrêmement efficaces avant qu'une condensation et une décontamination poussées soient réalisées par filtration à sec.

Situation actuelle et perspectives d'avenir

Les procédés de solidification des déchets doivent être appliqués dans des conditions de très forte radioactivité et impliquent des températures élevées. L'association de ces deux facteurs est l'une de celles qui soulève le plus de difficultés dans la gestion des déchets nucléaires. Bien que l'on ait maintenant une grande expérience des niveaux de radioactivité dans la dissolution, le retraitement du combustible, l'évaporation et le stockage en réservoirs des déchets de haute activité, la nécessité de manier en outre cette radioactivité à des températures élevées oblige à une grande rigueur en ce qui concerne la conception de l'usine et la formation du personnel.

Au cours des quinze dernières années, on a acquis une certaine expérience de l'exploitation de plusieurs installations pilotes, PIVER, FINGAL, WSEP ainsi que de l'usine WCF d'Idaho, et plus de 100 mégacuries de radioactivité ont été incorporées avec succès dans des produits solides. Une usine à l'échelle industrielle vient d'entrer en service en France (AVM) et plusieurs autres sont en construction, qui permettront de traiter les déchets provenant d'installations industrielles de retraitement.

Parallèlement à la mise au point des procédés, on a beaucoup étudié et évalué les propriétés durables des produits solidifiés. Après une première phase où les travaux ont porté surtout sur la calcination, on s'est essentiellement intéressé aux verres et aux céramiques, tant borosilicatés que phosphatés. A la fin des années soixante, les études expérimentales ont commencé à montrer nettement qu'on pouvait compter sur une stabilité beaucoup plus durable en employant des verres et des céramiques borosilicatés pour la plupart des compositions de déchets présentant en puissance un intérêt pour l'avenir. Une analyse détaillée des propriétés des nombreux produits possibles actuellement évalués sera publiée dans la Collection des Rapports techniques de l'AIEA sous le titre "Characteristics of Solidified High-Level Waste Products".

Il ressort de ce nouveau rapport technique et du rapport n° 176 que l'on dispose des techniques voulues pour concevoir et construire une installation de solidification de déchets de haute activité et que le produit obtenu devrait se prêter à un stockage et à une évacuation durables.

Il va de soi cependant que les programmes d'étude et de mise au point qui sont réalisés dans de nombreux pays préludent à des améliorations nouvelles. Ces programmes sont axés sur une meilleure technologie des procédés, la normalisation des critères appliqués aux produits et les aspects économiques. On acquerra une confiance grandissante dans l'aptitude des différents produits à résister aux effets qu'auront, avec le temps, les rayonnements, la chaleur et le lieu même de dépôt.

Ces travaux de recherche et de mise au point permettront de disposer de plus de renseignements. D'autres procédés, d'autres systèmes et d'autres types de produits seront mis au point au cours des dix prochaines années, et augmenteront par là même notre conviction que tous les futurs déchets de haute activité pourront être solidifiés de la façon voulue, ressort indispensable d'une gestion à l'épreuve du temps.