

A1

**DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION**

⑫

N° 80 20424

⑤④ Appareil pour réaction d'échange isotopique.

⑤① Classification internationale (Int. Cl.³). B 01 D 59/33; G 21 C 19/30; G 21 F 9/06.

②② Date de dépôt..... 23 septembre 1980.

③③ ③② ③① Priorité revendiquée : Japon, 25 septembre 1979, n° 122099/79.

④① Date de la mise à la disposition du
public de la demande..... B.O.P.I. — « Listes » n° 19 du 8-5-1981.

⑦① Déposant : HITACHI, LTD., résidant au Japon.

⑦② Invention de :

⑦③ Titulaire : *Idem* ⑦①

⑦④ Mandataire : Langner-Parry,
7, rue de la Paix, 75002 Paris.

Cette invention concerne un appareil pour une réaction d'échange isotopique, et particulièrement un appareil pour une réaction d'échange isotopique comportant une tour froide et une tour chaude.

5 Les réacteurs nucléaires à eau lourde utilisent l'eau lourde comme modérateur, et du tritium (T) peut être formé par l'action des neutrons [réaction (n, γ)]. Le tritium est un isotope radio-actif de l'hydrogène et son comportement est sensiblement similaire à celui de
10 l'hydrogène. Il existe à l'état d'oxyde de tritium (eau tritiée) dans l'eau lourde. Une augmentation de la proportion d'eau tritiée donne naissance au risque d'absorption du tritium dans l'organisme des opérateurs quand de l'eau lourde contenant de l'eau tritiée fuit du système du réacteur
15 nucléaire à eau lourde ou quand un réacteur nucléaire à eau lourde est soumis à un entretien et une inspection, particulièrement au moment du remplacement des tuyauteries du système. Pour empêcher un tel risque, il est nécessaire de prévoir un appareil permettant d'enlever le tritium du
20 réacteur nucléaire à eau lourde.

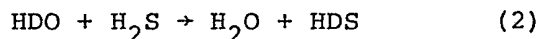
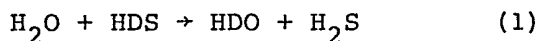
On utilise en général une réaction d'échange isotopique pour séparer et recueillir le deutérium (D) et le tritium (T) en tant qu'isotopes de l'hydrogène contenus dans de l'eau légère (H_2O). Un procédé pour ceci est un procédé
25 d'échange à double température basé sur une combinaison d'une tour froide et d'une tour chaude en cascade, qui permet de récupérer les isotopes de l'hydrogène avec une efficacité de séparation élevée des isotopes de l'hydrogène et à des concentrations élevées des isotopes de l'hydrogène.

30 Un procédé de production d'eau lourde basé sur un procédé d'échange à double température utilisant de l'eau légère et de l'hydrogène sulfuré gazeux (qui sera appelé ci-après "procédé GS") est connu ("Nuclear Chemical Engineering", p. 459-462, 1957).

35 Selon le procédé GS, la réaction d'échange isotopique est effectuée en disposant en série une tour froide et une tour chaude, des plateaux perforés étant prévus dans la tour froide et dans la tour chaude, et en faisant

passer de l'eau lourde contenant du deutérium de la tour froide à la tour chaude tout en faisant passer l'hydrogène sulfuré gazeux de la tour chaude à la tour froide, et en laissant l'eau légère et l'hydrogène sulfuré gazeux venir en contact à contre-courant dans les tours respectives. L'hydrogène sulfuré gazeux quittant la tour froide est à nouveau amené à la tour chaude.

La réaction d'échange isotopique se fait selon l'équation suivante (1) dans la tour froide et selon l'équation suivante (2) dans la tour chaude :



Comme décrit dans l'ouvrage susmentionné "Nuclear Chemical Engineering", page 460, Fig. 11.21, le deutérium dans l'eau lourde est enrichi dans la tour froide, et le deutérium dans l'eau légère est enlevé dans la tour chaude. Une portion d'eau légère ayant une teneur supérieure en eau lourde déchargée de la tour froide est soutirée à l'extérieur, et la portion restante de l'eau légère est fournie à la tour chaude. Les conditions de fonctionnement de l'appareil pour la réaction d'échange isotopique selon le procédé GS sont que la température de réaction est d'environ 30°C dans la tour froide et environ 130°C dans la tour chaude, et que la pression est d'environ 20 bars dans l'appareil. Le procédé d'échange isotopique entre l'eau liquide et l'hydrogène sulfuré gazeux, typique de ce qui est le procédé GS, présente l'avantage d'une vitesse de réaction supérieure de la réaction d'échange isotopique, mais présente l'inconvénient d'un facteur de séparation inférieur des isotopes de l'hydrogène, facteur qui dépend de l'équilibre chimique.

Par ailleurs, la réaction d'échange isotopique entre l'eau liquide et l'hydrogène gazeux est actuellement en cours d'étude. La réaction d'échange isotopique entre l'eau liquide et l'hydrogène gazeux présente les avantages importants d'une efficacité de séparation supérieure des isotopes de l'hydrogène et d'une possibilité d'enrichir les isotopes de l'hydrogène à des concentrations élevées, mais présente

l'inconvénient d'une vitesse de réaction inférieure de la réaction d'échange isotopique. L'inconvénient de la réaction d'échange isotopique entre l'eau liquide et l'hydrogène gazeux a été surmonté en partie par la mise au point de catalyseurs, mais il est encore souhaitable d'améliorer encore l'efficacité de la réaction d'échange isotopique entre l'eau liquide et l'hydrogène gazeux.

Un but de la présente invention est d'améliorer l'efficacité de la réaction d'échange isotopique entre l'eau liquide et l'hydrogène gazeux, et de fournir un appareil pour la réaction d'échange isotopique présentant une sécurité élevée.

La présente invention est caractérisée par une tour froide qui comprend une section de formation de brouillard destinée à former un brouillard à partir de l'eau d'alimentation contenant les isotopes de l'hydrogène, une première section de lit de catalyseur destinée à promouvoir la réaction d'échange isotopique dans laquelle sont introduits un gaz de réaction contenant au moins de l'hydrogène gazeux ou du deutérium gazeux et des brouillards d'eau d'alimentation quittant la section de formation de brouillard, et une section d'enlèvement de brouillard conçue pour enlever les brouillards du gaz réactionnel ; et par une tour chaude qui comprend une section de vaporisation conçue pour transformer l'eau d'alimentation en vapeur, une seconde section de lit de catalyseur conçue pour promouvoir la réaction d'échange isotopique dans laquelle sont introduits un gaz de réaction contenant au moins de l'hydrogène gazeux ou du deutérium gazeux et la vapeur quittant la section de vaporisation, et une section d'enlèvement de vapeur conçue pour enlever la vapeur du gaz de réaction.

La Figure 1 est un diagramme d'un appareil d'enlèvement du tritium dans un réacteur nucléaire à eau lourde, dans lequel on peut utiliser un appareil de réaction d'échange isotopique qui constitue un mode de réalisation préféré de la présente invention.

La Figure 2 est un diagramme détaillé d'une tour froide dans l'appareil d'enlèvement du tritium représenté

sur la Figure 1.

La Figure 3 est un diagramme détaillé d'une tour chaude dans l'appareil d'enlèvement du tritium de la Figure 1.

5 La Figure 4 est un diagramme caractéristique montrant la relation entre le débit d'eau d'alimentation (L, exprimé en g/h, en abscisses) et la vitesse de réaction de l'échange isotopique (R, exprimé en mole/cm³ de catalyseur.heure, en ordonnées) dans une tour froide.

10 La Figure 5 est un diagramme caractéristique montrant la relation entre le débit de l'alimentation et la vitesse de réaction d'échange isotopique (selon les mêmes unités que pour la Figure 4) dans une tour chaude.

La Figure 6 est un diagramme d'un appareil
15 d'enlèvement du tritium selon un autre mode de réalisation de la présente invention.

Selon la présente invention, on obtient simultanément un contact uniforme gaz-liquide et une augmentation de la capacité de traitement en mettant l'eau
20 sous fines particules à l'état de brouillard et en entraînant les fines particules d'eau dans de l'hydrogène gazeux dans une tour froide, et en vaporisant l'eau et en entraînant la vapeur d'eau résultante dans de l'hydrogène gazeux dans une tour chaude. Les brouillards sont constitués par un liquide
25 en suspension dans un gaz.

La Figure 1 décrit un appareil d'enlèvement du tritium dans un réacteur nucléaire à eau lourde, où le numéro 1 désigne un réacteur nucléaire à eau lourde, et l'appareil d'enlèvement du tritium comporte un appareil pour
30 la réaction d'échange isotopique 2, avec une tour froide 3 et une tour chaude 20, et un autre appareil pour la réaction d'échange isotopique 39, avec une tour froide 40 et une tour chaude 41.

L'appareil pour la réaction d'échange isotopique
35 2 est une section d'enrichissement en tritium, et l'appareil pour la réaction d'échange isotopique 39 est une section d'enlèvement du tritium.

Les conduites 42 et 43 dans lesquelles circule l'eau

lourde relie le réacteur nucléaire à eau lourde 1, la tour froide 3 et la tour chaude 20 les uns aux autres. Les conduites 45 et 46 dans lesquelles circule l'eau lourde relient la tour froide 40, la tour chaude 41 et le réacteur nucléaire à eau lourde 1 les uns aux autres. La conduite 44 relie la tour froide 20 à la conduite 45, et la conduite 52 relie la conduite 46 à la tour chaude 40. Les conduites 60 et 61 dans lesquelles circule de l'hydrogène gazeux constituent une boucle fermée reliant la tour froide 40 à la tour chaude 41. Les conduites 48, 49 et 50 dans lesquelles circule de l'hydrogène gazeux relient la conduite 45, la tour chaude 20, la tour froide 3 et la conduite 45 successivement l'une à l'autre, et le numéro 47 désigne une conduite de sortie d'eau lourde.

La structure détaillée de la tour froide 3 sera décrite ci-dessous en se référant à la Figure 2. La tour froide 3 comporte une partie de tour froide à 14 étages comprenant des paires de colonnes de réacteur 4 et de générateurs de brouillard 7. C'est-à-dire que la tour froide 3 comporte 14 colonnes 4A, 4B, ... et 4N et 14 générateurs de brouillard 7A, 7B, ... et 7N. Les générateurs de brouillard 7 sont prévus du côté amont des colonnes 4 par rapport à un courant de fluides mélangés d'hydrogène gazeux et de brouillards. Un lit de catalyseur hydrophobe 5 et un séparateur de brouillard 6 sont prévus dans chaque colonne 4. Le lit de catalyseur hydrophobe 5 est prévu en amont du séparateur de brouillard 6 par rapport à l'écoulement de fluides mélangés d'hydrogène gazeux et de brouillards. Un générateur d'ultra-sons 9 est prévu dans les récipients 8 des générateurs de brouillard 7. L'eau lourde 51 s'accumule dans les différentes colonnes 4 et les récipients 8. 11 générateurs de brouillard 7 et 11 colonnes de réacteur 4 sont disposés alternativement entre la colonne de réacteur 4B et le générateur de brouillard 7N dans l'ordre suivant :

générateur de brouillard 7C, colonne de réaction 4C,
générateur de brouillard 7D, colonne de réaction 4D, ...,
générateur de brouillard 7L, colonne de réaction 4L,
générateur de brouillard 7M et colonne de réaction 4M, bien

qu'ils ne soient pas représentés sur la Figure 2. Des espaces 14A, 14B, ..., 14N sont prévus individuellement au-dessus du niveau de liquide de l'eau lourde 51 dans les récipients 8 des générateurs de brouillard 7A, 7B, ..., 7N. Des 5 espaces 16A, 16B, ..., 16N sont prévus dans chacune des colonnes de réaction 4A, 4B, ..., 4N au-dessus des lits de catalyseur hydrophobe 5. Des espaces 17A, 17B, ..., 17N sont prévus dans chacune des colonnes de réaction 4A, 4B, ..., 4N entre le niveau de liquide 15 de l'eau lourde et le 10 séparateur de brouillard 6 dans les colonnes 4. La conduite 10A relie l'espace 14A à l'espace 16A, la conduite 10B relie l'espace 14B à l'espace 16B, ..., et la conduite 10N relie l'espace 14N à l'espace 16N. La conduite 11A relie la partie inférieure de la colonne 4A au récipient 8 du générateur de 15 brouillard 7B, la conduite 11B relie la partie inférieure de la colonne de réaction 4B au récipient 8 du générateur de brouillard 7C, ..., et la conduite 11M relie la partie inférieure de la colonne de réaction 4M au récipient 8 du générateur de brouillard 7N. En outre, la conduite 12B relie l'espace 17B 20 à l'espace 14A, la conduite 12C relie l'espace 17C à l'espace 14B, ..., et la conduite 12N relie l'espace 17N à l'espace 14M. La conduite 50 est reliée à l'espace 17A de la colonne de réaction 4A constituant la tour froide 3.

La structure détaillée de la tour chaude 20 sera 25 décrite ci-dessous en se référant à la Figure 3. La tour chaude 20 comprend une partie de tour chaude de 12 étages formée de paires de colonnes de réaction 21 et de sections de condensation de vapeur 25. Les sections de condensation de vapeur sont prévues du côté aval des colonnes de réaction 30 21 par rapport à un écoulement de fluides mélangés d'hydrogène gazeux et de vapeur d'eau. Des réfrigérants 26 sont prévus dans les récipients 30 des sections de condensation de vapeur 25, et de l'eau lourde 29 existe dans les récipients 30. Des sections de vaporisation 22 et des lits de 35 catalyseur hydrophile 24 sont prévus dans les colonnes de réaction 21. Les lits de catalyseur 24 sont prévus en aval des sections de vaporisation 22 par rapport à l'écoulement d'un fluide mélangé d'hydrogène gazeux et de vapeur d'eau.

Des réchauffeurs 23 sont prévus dans les sections de vaporisation 22. De l'eau lourde existe dans les sections de vaporisation 22 et dans les sections de condensation de vapeur 25. 9 sections de condensation de vapeur 25 et 5 colonnes de réaction 21 sont disposées alternativement entre la colonne de réaction 21B et la section de condensation de vapeur 25 dans l'ordre suivant : section de condensation de vapeur 25, colonne de réaction 21C, section de condensation de vapeur 25D, colonne de réaction 21D, ..., section de condensation de vapeur 25J, colonne de réaction 21J, section de condensation de vapeur 25K et colonne de réaction 21K. Des espaces 32A, 32B, ... et 32L sont formés au-dessus du lit de catalyseur hydrophile 24 dans les colonnes 21A, 21B, ... et 21L. Des espaces 33A, 33B, ... et 33L sont prévus 15 entre le niveau liquide de l'eau lourde 29 dans la colonne 21 et le lit de catalyseur hydrophile 24 dans les colonnes 21A, 21B, ... 21L. Des espaces 34A, 34B, ... et 34L sont prévus au-dessus du niveau liquide de l'eau lourde 29 dans les récipients des sections de condensation de vapeur 25A, 20 25B, ... et 25L. La conduite 27A relie la section de condensation de vapeur 25A à la section de vaporisation 22 de la colonne 21A, la conduite 27B relie la section de condensation de vapeur 25B de la section de vaporisation 22 de la colonne 21A, ..., et la conduite 27L relie la 25 section de condensation de vapeur 25L à la section de vaporisation 22 de la colonne 21L. La conduite 28A relie la section de vaporisation de la colonne 21A à la section de condensation de vapeur 25B, la conduite 28B relie la section de vaporisation 22 de la colonne 21B à la section de 30 condensation de vapeur 25C, ..., et la conduite 28K relie la section de vaporisation 22 de la colonne 21K à la section de condensation de vapeur 25L. Des conduites 29A, 29B, ... et 29K relient l'espace 33A à l'espace 34B, l'espace 33B à l'espace 34C, ... et l'espace 34K à l'espace 34L, 35 respectivement. La conduite 31A relie la section de condensation de vapeur 25A à l'espace 32B, la conduite 31B relie la section de condensation de vapeur 25B à l'espace 32B, ..., et la conduite 31L relie la section de condensation

de vapeur 25L à l'espace 32L. Une extrémité de chacune des conduites 31A, 31B, ... et 31L est placée dans l'eau lourde 29 dans les récipients 30 des sections de condensation de vapeur 25A, 25B, ... et 25L après avoir traversé les espaces

5 34A, 34B, ... et 34L. Ainsi, l'eau lourde 29 dans les récipients 30 ne s'écoule pas en retour dans les conduites 31A, 31B, ... et 31L. La conduite 43 reliée à la partie inférieure de la colonne 17N de la tour froide 3 est reliée à la section de condensation de vapeur 25A de la tour chaude

10 20. La conduite 49 reliée à l'espace 14N existant dans le générateur de brouillard 7N de la tour froide 3 est reliée à l'espace 34A de la section de condensation de vapeur 25A de la tour chaude 20. Les conduites 44 et 48 susmentionnées sont reliées à la section de vaporisation 22 et à l'espace

15 33L respectivement, dans la colonne 21L de la tour chaude 20.

Les structures de la tour froide 4 et de la tour chaude 41 sont identiques à celles des tours froide 3 et chaude 20 respectivement.

20 L'appareil susmentionné pour enlever le tritium permet de traiter l'eau lourde à un débit de 100 l/h et a des caractéristiques comme un degré de concentration de 10, et un coefficient de décontamination de 10, et le facteur de séparation de chaque colonne de la tour froide et de la tour

25 chaude est 10.

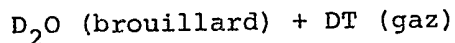
On décrira ci-dessous le fonctionnement de l'appareil d'enlèvement du tritium.

De l'eau lourde ayant une concentration en tritium de 1 ppm est soutirée du réacteur nucléaire à eau lourde 1

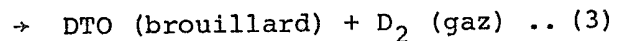
30 et introduite dans le générateur de brouillard 7A de la tour froide 3 par l'intermédiaire de la conduite 42. L'eau lourde 29 dans le générateur de brouillard 7A est transformée en brouillards par vibrations d'un générateur d'ultra-sons 9 (disque plat, 50 mm de diamètre) fait de titanate de baryum.

35 Les brouillards ont un diamètre d'environ 1 micron. La dimension des brouillards peut être réglée dans l'intervalle de 0,1 à 50 microns en faisant changer la fréquence du générateur d'ultra-sons 9. Les brouillards d'eau lourde

contenant du tritium, formés dans le générateur de brouillard 7A, passent dans la conduite 10A avec du deutérium gazeux contenant du tritium fourni au générateur de brouillard 7A par la conduite 12B, et sont introduits dans l'espace 16A de la colonne 4A. Le deutérium gazeux a pour rôle de transporter les brouillards. Le deutérium gazeux contenant les brouillards d'eau lourde arrive dans le lit de catalyseur hydrophobe 17 dans la colonne de réaction 4A, et la réaction d'échange isotopique a lieu selon l'équation suivante 3. La température de la colonne de réaction 4A est 30°C. La température des autres colonnes de réaction 4 de la tour froide 3 est également 30°C. La pression de la tour froide 3 est environ 1 bar (une atmosphère).



15



Les brouillards d'eau lourde dont la concentration en tritium est augmentée par la réaction d'échange isotopique traversent le lit de catalyseur hydrophobe puis sont séparés du deutérium gazeux par le séparateur de brouillard 6. Le deutérium gazeux dont la concentration en tritium a diminué passe dans la conduite 5. Les brouillards d'eau lourde enlevés par le séparateur de brouillard 16 tombent dans la couche liquide d'eau lourde 29 au fond de la colonne 4A. L'eau lourde 29, qui existe à la partie inférieure de la colonne 4A et dont la concentration en tritium a été augmentée, passe dans la conduite 11A. Puis on laisse l'eau lourde traverser le générateur de brouillard 7B, la colonne 4B, le générateur de brouillard 7C, la colonne 4C, ..., le générateur de brouillard 7N et la colonne de réaction 7N, dans cet ordre, ce qui permet de répéter de la même manière que précédemment la transformation de l'eau lourde en brouillards, le mélange des brouillards d'eau lourde dans le deutérium gazeux, la réaction d'échange isotopique selon l'équation (3), et la séparation des brouillards d'eau lourde et du deutérium gazeux, et de ce fait la concentration en tritium de l'eau lourde traversant la tour froide 3 augmente progressivement.

Le deutérium gazeux contenant 9 ppm de tritium, déchargé de la section de condensation de vapeur 25A de la tour chaude 20 dans la conduite 49, est introduit d'abord dans le générateur de brouillard 7N de la tour froide 3.
5 Puis on laisse le deutérium gazeux traverser la colonne de réaction 4N, le générateur de brouillard 7M, la colonne de réaction 4M, le générateur de brouillard 7L, le générateur de brouillard 7B, la colonne de réaction 4B, le générateur de brouillard 7A et la colonne de réaction 4A, dans cet
10 ordre, ce qui permet de répéter les trois opérations susmentionnées de mélange des brouillards avec l'eau lourde, réaction d'échange isotopique selon l'équation (3) et enlèvement des brouillards d'eau lourde, et ce qui permet d'augmenter progressivement la concentration en tritium du
15 deutérium gazeux traversant la tour froide. En effectuant la réaction d'échange isotopique dans chaque colonne de réaction de la tour froide, la concentration en tritium du deutérium gazeux déchargé de la tour froide 3, c'est-à-dire le deutérium gazeux déchargé de la colonne 4A dans la
20 conduite 50, est de 0,9 ppm. Par ailleurs, la concentration en tritium de l'eau lourde déchargée de la colonne froide 3, c'est-à-dire l'eau lourde déchargée de la colonne 7N dans la conduite 43, est de 10 ppm.

Une portion de l'eau lourde contenant 10 ppm de
25 tritium, qui traverse la conduite 43, est soutirée par la conduite 47 et conservée. La partie restante de l'eau lourde est introduite dans la section de condensation de vapeur 25A de la tour chaude 20 par l'intermédiaire de la conduite et mélangée dans l'eau lourde 29 dans la section de
30 condensation de vapeur 25A. La température de l'eau lourde 29 dans le récipient 30 de la section de condensation de vapeur 25 est maintenue à 80°C par le réfrigérant 26. L'eau lourde dans la section de condensation de vapeur 25A est amenée à la section de vaporisation 22 de la colonne de
35 réaction 21A par l'intermédiaire de la conduite 27A.

L'eau lourde se trouvant dans la section de vaporisation 22 est chauffée par l'appareil de chauffage 23 et transformée en vapeur d'eau à 100°C. La pression dans la

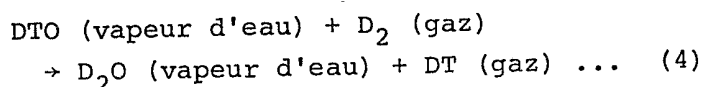
tour chaude 20 est de 1 bar. La vapeur d'eau est mélangée dans le deutérium gazeux contenant le tritium, amenée de la section de condensation de vapeur 25B dans l'espace 33A de la colonne de réaction 21A par l'intermédiaire de la conduite

5 29A. La vapeur d'eau lourde existant dans l'espace 33A est surchauffée à environ 250°C, c'est-à-dire la température de réaction du lit de catalyseur hydrophile 24, par un appareil de surchauffe (non représenté sur le dessin) placé dans l'espace 33A. Les appareils de surchauffe (bien que non

10 représentés sur les dessins) sont prévus dans l'espace 33B de la colonne de réaction 21B et l'espace 33L de la colonne de réaction 21L respectivement.

Un courant de fluides mélangés de deutérium gazeux et de vapeur d'eau lourde est introduit dans le lit de

15 catalyseur hydrophile 24 en provenance de l'espace 33A. Dans le lit de catalyseur hydrophile 24, la réaction d'échange isotopique a lieu selon l'équation (4) :



20 Le courant de fluides mélangés de deutérium gazeux dont la concentration en tritium a été augmentée et de vapeur d'eau lourde dont la concentration en tritium a diminué, passe ensuite dans l'espace 32A et la conduite 31A et est déchargé dans l'eau lourde 29 dans la section de condensation

25 de vapeur 25A. La vapeur d'eau lourde est totalement condensée par l'eau lourde 29 contenue dans la section de condensation de vapeur 25A, tandis que le deutérium gazeux arrive dans l'espace 34A et est déchargé dans la conduite 49.

L'eau lourde existant dans la section de vaporisa-

30 tion 22 de la colonne de réaction 21A passe dans la section de condensation de vapeur 25B, la colonne de réaction 21B, la section de condensation de vapeur 25C, la colonne de réaction 21C, ..., la section de condensation de vapeur 25K, la colonne de réaction 21K, la section de condensation de

35 vapeur 25L et la colonne de réaction 21K, dans cet ordre. L'eau lourde traverse cet ensemble en subissant de façon répétée une vaporisation dans les sections de vaporisation 22 des différentes colonnes de réaction 21, une réaction

d'échange isotopique avec le deutérium gazeux dans les lits de catalyseur hydrophile 24 et une condensation de la vapeur d'eau lourde dans les sections de condensation de vapeur 25. Au fur et à mesure que l'eau lourde se rapproche 5 de la colonne de réaction 21K, la concentration en tritium de l'eau lourde augmente progressivement. Le deutérium gazeux contenant 0,9 ppm de tritium circulant dans la conduite 48 est amené à la colonne de réaction 21L de la tour chaude 20. Le deutérium gazeux traverse la colonne de 10 réaction 21L, la section de condensation de vapeur 25L, la colonne de réaction 21K, la section de condensation de vapeur 25K, ..., la colonne de réaction 21B, la section de condensation de vapeur 25B, la colonne de réaction 21A et la section de condensation de vapeur 25A, dans cet ordre, ce qui 15 permet d'augmenter progressivement la concentration en tritium du deutérium gazeux tout en répétant le mélange des vapeurs d'eau lourde, la réaction d'échange isotopique et la séparation de la vapeur d'eau lourde. En introduisant du deutérium gazeux contenant 0,9 ppm de tritium dans la tour 20 chaude 20, la concentration en tritium de l'eau lourde déchargée de la tour chaude, c'est-à-dire l'eau lourde déchargée de la colonne de réaction 21L dans la conduite 44, est ramenée à 1 ppm.

L'eau lourde contenue dans la conduite 44 est 25 mélangée à l'eau lourde contenant 1 ppm de tritium déchargée de la tour froide 40 dans la conduite 45, et amenée à la tour chaude 41. Dans la tour chaude 41, on introduit en outre le deutérium gazeux contenant 0,09 ppm de tritium déchargé de la tour froide 40 dans la conduite 61. Une 30 réaction d'échange isotopique a lieu entre l'eau lourde et le deutérium gazeux de la même manière que dans la tour chaude 20 susmentionnée. La concentration en tritium de l'eau lourde déchargée de la tour chaude 41 dans la conduite 46 est ramenée à 0,1 ppm par la réaction d'échange 35 isotopique, tandis que la concentration en tritium du deutérium gazeux déchargé de la tour chaude 41 dans la conduite 60 est amenée à 0,9 ppm. L'eau lourde de concentration en tritium diminuée traversant la conduite 46 est

renvoyée au réacteur nucléaire à eau lourde 1. Une partie de l'eau lourde circulant dans la conduite 46 est amenée à la tour froide 40 par la conduite 52. Une partie du deutérium gazeux déchargé de la tour chaude 41 dans la
5 conduite 60 traverse la conduite 48. Dans la partie restante de deutérium gazeux circulant dans la conduite 60, on mélange le deutérium gazeux déchargé de la tour froide 3. Ces deutériums gazeux (concentration en tritium : 0,9 ppm) sont introduits dans la tour froide 40. Dans la tour froide
10 40, la réaction d'échange isotopique a lieu de la même façon que dans la tour froide 3. De l'eau lourde contenant 1 ppm de tritium est déchargée de la tour froide 40 dans la conduite 45 et de l'eau lourde contenant 0,09 ppm de tritium est déchargée dans la conduite 61.

15 Dans le présent mode de réalisation, on laisse la réaction d'échange isotopique se faire entre des brouillards d'eau lourde et du deutérium gazeux dans les lits de catalyseur hydrophobe de la tour froide, et on laisse en outre une réaction d'échange isotopique se faire entre la
20 vapeur d'eau lourde et le deutérium gazeux dans les lits de catalyseur hydrophile dans la tour chaude, et l'on peut donc obtenir une efficacité élevée de la réaction d'échange isotope, et l'on peut augmenter la capacité de traitement de l'eau lourde par unité de volume de catalyseur dans la
25 tour froide ainsi que dans la tour chaude.

Les Figures 4 et 5 montrent les résultats d'essai illustrant les relations entre la vitesse de réaction de l'échange isotopique et le débit d'eau d'alimentation dans la tour froide et dans la tour chaude du mode de
30 réalisation précédent. Selon l'essai, on introduit dans la tour froide de l'eau d'alimentation contenant 10 % d'eau tritiée et 90 % d'eau légère, et l'on introduit dans la tour chaude de l'hydrogène gazeux pur. L'eau quittant la tour froide est amenée à la tour chaude, tandis que l'hydrogène
35 gazeux quittant la tour chaude est amené à la tour froide. Comme catalyseur hydrophobe pour la tour froide, on utilise 0,5 % en poids de platine porté sur du polytétrafluoroéthylène (diamètre 5 mm, longueur 5 mm, épaisseur 1 mm,

porosité 50 %). Comme catalyseur hydrophile pour la tour chaude, on utilise 8 g/l de palladium plaqué sur une éponge métallique nickel-chrome. La température des lits de catalyseur hydrophobe dans la tour froide est de 30°C tandis que la température des lits de catalyseur hydrophile dans la tour chaude est de 250°C. Le débit d'hydrogène gazeux dans la tour froide et dans la tour chaude est réglé à 1,2 m³ normaux/h.

La vitesse de réaction d'échange isotopique R (mole/cm³ de catalyseur.h) est exprimée en moles de tritium transférées dans l'hydrogène gazeux par unité de volume de catalyseur par unité de temps selon l'équation suivante (5).

$$R = \frac{\{(y_{\text{sortie}} - y_{\text{entrée}})/y_{\text{eq}}\}(G/22,4)}{V} \quad (5)$$

15

où y_{sortie} est la concentration en tritium de l'hydrogène gazeux à la sortie du lit de catalyseur, $y_{\text{entrée}}$ est la concentration en tritium de l'hydrogène gazeux à l'entrée du lit de catalyseur, y_{eq} est la concentration en tritium de l'hydrogène gazeux quand l'eau d'alimentation et l'hydrogène gazeux sont amenés à l'équilibre, G est le débit de l'hydrogène gazeux et V est le volume du lit de catalyseur.

Comme il est évident sur la Figure 4, la vitesse de réaction d'échange isotopique dans la tour froide du présent mode de réalisation, représentée par la courbe I, est nettement accrue. La courbe II représente la vitesse de réaction quand de l'eau d'alimentation, qui n'est pas à l'état de brouillard, est soumise à la réaction d'échange isotopique avec l'hydrogène gazeux. La valeur de la courbe I est 10 fois celle de la courbe II. Ceci est dû au contact uniforme gaz-liquide que l'on obtient en mettant l'eau d'alimentation sous forme de brouillards. La vitesse de réaction d'échange isotopique dans la tour chaude a une valeur nettement élevée comme le montre la courbe III de la Figure 5, car l'eau d'alimentation est vaporisée en vapeur, bien que la vitesse linéaire soit deux fois aussi importante que celle de la réaction d'échange isotopique quand l'eau d'alimentation à l'état liquide est amenée en contact à

contre-courant avec l'hydrogène gazeux. La valeur de la courbe III est nettement supérieure à celle de la courbe I. L'efficacité de la réaction dans la tour chaude est supérieure à celle existant dans la tour froide. On voit d'après les résultats des essais précédents que l'efficacité de réaction dans la tour froide et la tour chaude selon le mode de réalisation présent est considérablement augmentée.

L'effet quantitatif de l'appareil pour la réaction d'échange isotopique 2 représentée sur la Figure 1 sera décrit en détail ci-dessous.

Les conditions de fonctionnement d'un appareil pour la réaction d'échange isotopique sont les suivantes : capacité de traitement de l'eau lourde contenant du tritium, 100 l/h ; débit du deutérium gazeux, 150 m³ normaux/h ; degré de concentration dans la tour froide, 10 ; coefficient de décontamination de la tour chaude, 10 ; température de la tour froide, 30°C ; et température de la tour chaude, 250°C. Quand le tritium est enlevé dans les conditions susmentionnées, les caractéristiques de la tour froide et de la tour chaude pour l'appareil de la réaction d'échange isotopique 2 sont données dans le tableau suivant.

TABLEAU

	Appareil pour échange isoto- pique 2, selon la présente invention, avec formation de brouillards et vaporisation		Appareil pour échange isoto- pique X, par contact à contre-courant de l'eau d'alimentation à l'état li- quide avec du gaz	
	Tour froide	Tour chaude	Tour froide	Tour chaude
Nombre d'étages	14	12	20	10
Epaisseur du lit de cata- lyseur par étage (m)	0,25	0,05	2	2
Diamètre du lit de cata- lyseur (m)	0,4	0,4	0,4	0,4
Epaisseur totale des lits de catalyseur (tour froide + tour chaude)	4		60	
Pression de fonctionnement (bars)	1		50	

Comme le montre le tableau, l'appareil pour la réaction d'échange isotopique 2 selon la présente invention permet de diminuer de façon importante la quantité de catalyseur, et permet d'augmenter considérablement la

5 capacité de traitement par unité de volume de catalyseur, par rapport à l'appareil de réaction d'échange isotopique X consistant à mettre simplement en contact à contre-courant l'eau lourde contenant du tritium avec du deutérium gazeux dans une tour froide et une tour chaude contenant des lits

10 de catalyseur, et permet également à l'appareil lui-même d'être plus compact, en raison de la plus faible quantité de catalyseur. Dans le dernier appareil pour la réaction d'échange isotopique X, la pression de fonctionnement doit être augmentée à 50 bars, et donc il y a un risque de fuite du

15 tritium sous forme de gaz radio-actif vers l'extérieur. Par ailleurs, la pression de fonctionnement selon la présente invention peut être de 1 bar, et la crainte de fuite de tritium vers l'extérieur peut donc être considérablement réduite. C'est en raison de l'efficacité de réaction

20 considérablement élevée de l'appareil pour la réaction d'échange isotopique 2 que la pression de fonctionnement peut être de 1 bar selon le présent mode de réalisation. Le fait que le nombre d'étages dans la tour froide dans l'appareil de réaction d'échange isotopique 2 puisse être plus faible que

25 celui dans l'appareil pour la réaction d'échange isotopique X est dû au fait que l'on peut augmenter un gradient du fonctionnement de la tour froide représenté sur la Figure 11.22 dans "Nuclear Chemical Engineering", page 460, 1957. L'appareil pour la réaction d'échange isotopique 39

30 représenté sur la Figure 1 a les mêmes caractéristiques que l'appareil pour la réaction d'échange isotopique 2 représenté sur le tableau. Même dans le cas où l'on utilise l'appareil pour la réaction d'échange isotopique X, il faut utiliser un appareil pour la réaction d'échange isotopique

35 Y ayant les mêmes caractéristiques que l'appareil pour la réaction d'échange isotopique X.

Dans le mode de réalisation précédent, on utilise comme catalyseur hydrophile un catalyseur de métal

spongieux, mais on peut également utiliser dans la présente invention des catalyseurs hydrophiles à base de supports poreux comme les matières céramiques, le charbon activé, etc., couramment utilisés. Dans ce cas, la vapeur d'eau se
5 condense et se coagule dans les pores du support de catalyseur pour amener un état mouillé par l'eau, quand la pression partielle de vapeur d'eau dans les colonnes de réaction est amenée à l'état sursaturé en raison d'un mauvais fonctionnement, et le catalyseur peut parfois se
10 désactiver. En outre, l'eau est fortement absorbée dans les pores une fois que les pores ont été mouillés par de l'eau, et ceci est un problème qui nécessite du temps pour la déshydratation et le séchage. Ainsi, quand on utilise un tel catalyseur, la pression de fonctionnement est plus faible
15 que la pression de vapeur de l'eau saturée dans la tour chaude, ce qui réduit les risques de sursaturer la pression partielle. Quand on utilise de la vapeur d'eau sèche comme vapeur d'eau dans la colonne chaude, on peut empêcher la diminution de l'activité du catalyseur due au mouillage
20 par condensation. Un catalyseur à base de métal spongieux a l'avantage qu'aucune coagulation importante de l'eau n'a lieu car le support n'est pas un matériau poreux.

Un autre mode de réalisation de la présente invention est représenté sur la Figure 6, où des numéros de
25 référence identiques désignent les éléments identiques par rapport à la Figure 1. Dans ce dernier mode de réalisation, des conduites de recyclage du deutérium en boucles fermées indépendantes sont prévues dans les appareils pour les réactions d'échange isotopique 2 et 39. C'est-à-dire que
30 l'appareil pour la réaction d'échange isotopique 39 a un circuit de recyclage du deutérium gazeux par les conduites 60 et 61. L'appareil pour la réaction d'échange isotopique a un circuit de recyclage du deutérium gazeux par les conduites 49 et 62. La conduite 62 relie l'espace 17A de la
35 colonne de réaction 4A de la tour froide 3 à l'espace 33L de la colonne de réaction 21L de la tour chaude 20. Dans le présent mode de réalisation, on peut également obtenir le même effet que dans le mode de réalisation susmentionné. En

outre, dans le présent mode de réalisation, on peut ajuster indépendamment les débits du deutérium gazeux dans les deux appareils 2 et 39 et l'on peut ainsi facilement régler le débit en deutérium gazeux.

5 La présente invention peut s'appliquer non seulement à l'enlèvement du tritium, mais également à la production d'eau lourde comme mentionné précédemment. C'est-à-dire que l'on effectue la réaction d'échange isotopique entre de l'eau légère naturelle ayant une faible teneur en
10 eau lourde et l'hydrogène gazeux selon le mode de réalisation précédent représenté sur l'une ou l'autre des Figures 1 et 6, pour augmenter la concentration en eau lourde.

 Selon la présente invention, la réaction d'échange isotopique est effectuée en transformant l'eau d'alimentation
15 en brouillards dans la tour froide et en vaporisant l'eau d'alimentation en vapeur d'eau dans la tour chaude, et l'on augmente ainsi considérablement l'efficacité de la réaction d'échange isotopique.

REVENDEICATIONS

1. Appareil pour réaction d'échange isotopique comportant une tour froide et une tour chaude, caractérisé en ce qu'il comprend une tour froide (3, 40) comportant :
5 une partie de formation de brouillards (7) transformant l'eau d'alimentation contenant des isotopes de l'hydrogène en brouillards, une première partie de lit de catalyseur (5) permettant de promouvoir la réaction d'échange isotopique, dans laquelle on introduit un gaz de réaction contenant au
10 moins de l'hydrogène gazeux ou du deutérium gazeux quittant la tour chaude et les brouillards d'eau d'alimentation quittant la partie de formation de brouillards, et une partie d'enlèvement de brouillards (6) destinée à enlever les brouillards du gaz de réaction ; et une tour chaude (20, 41)
15 comportant une partie de vaporisation (22) destinée à vaporiser l'eau d'alimentation quittant la tour froide, une seconde partie de lit de catalyseur (24) destinée à promouvoir la réaction d'échange isotopique, dans laquelle on introduit un gaz de réaction contenant au moins de l'hydrogène gazeux
20 ou du deutérium gazeux et la vapeur d'eau d'alimentation quittant la partie de vaporisation, et une partie d'enlèvement de vapeur (25) destinée à enlever la vapeur d'eau d'alimentation du gaz de réaction.

2. Appareil selon la revendication 1, caractérisé
25 en ce que la partie d'enlèvement des brouillards est prévue du côté aval de la première partie de lit de catalyseur par rapport à l'écoulement d'un fluide mélangé des brouillards d'eau d'alimentation et de gaz de réaction.

3. Appareil selon l'une ou l'autre des
30 revendications 1 et 2, caractérisé en ce que le catalyseur dans la première partie de lit de catalyseur est un catalyseur hydrophobe, et en ce que le catalyseur dans la seconde partie de lit de catalyseur est un catalyseur hydrophile.

35 4. Appareil selon l'une ou l'autre des revendications 1 et 2, caractérisé en ce que la partie d'enlèvement de vapeur (25) est prévue du côté aval de la seconde partie de lit de catalyseur par rapport à

l'écoulement d'un fluide mélangé contenant la vapeur d'eau d'alimentation et le gaz de réaction.

5. Appareil selon la revendication 4, caractérisé en ce que le catalyseur dans la première partie de lit de catalyseur est un catalyseur hydrophobe, et le catalyseur dans la seconde partie de lit de catalyseur est un catalyseur hydrophile.

6. Appareil selon la revendication 1, caractérisé en ce que un premier élément de réaction d'échange isotopique (2) comprend la tour froide (3) et la tour chaude (20), un second élément pour réaction d'échange isotopique (39) comprend la tour froide (40) et la tour chaude (41), il est prévu un premier passage (44) conduisant l'eau d'alimentation quittant la tour chaude (20) du premier élément pour réaction d'échange isotopique (2) à la tour chaude (41) du second élément pour réaction d'échange isotopique (39), et il est prévu un second passage (52) conduisant une partie de l'eau d'alimentation quittant la tour chaude (41) du second élément pour réaction d'échange isotopique (39) à la tour froide (40) du second élément pour réaction d'échange isotopique (39).

7. Appareil selon la revendication 6, caractérisé en ce qu'il est prévu une première boucle fermée (49, 62) de recyclage du gaz de réaction dans la tour froide (3) et la tour chaude (20) du premier élément pour réaction d'échange isotopique (2), il est prévu une seconde boucle fermée (60, 61) de recyclage du gaz de réaction dans la tour froide (40) et la tour chaude (41) du second élément pour réaction d'échange isotopique (39), et la première boucle fermée et la seconde boucle fermée sont séparées l'une de l'autre.

8. Appareil selon l'une ou l'autre des revendications 6 et 7, caractérisé en ce que le catalyseur dans la première partie de lit de catalyseur est un catalyseur hydrophobe et le catalyseur dans la seconde partie de lit de catalyseur est un catalyseur hydrophile.

FIG. 1

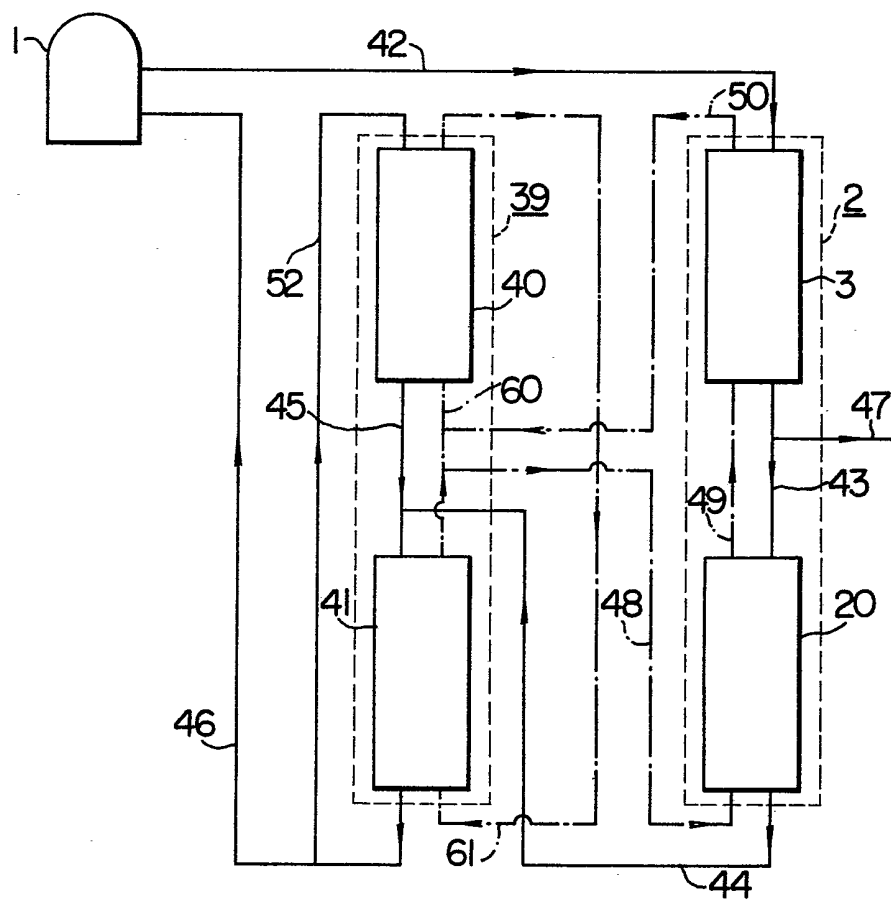


FIG. 2

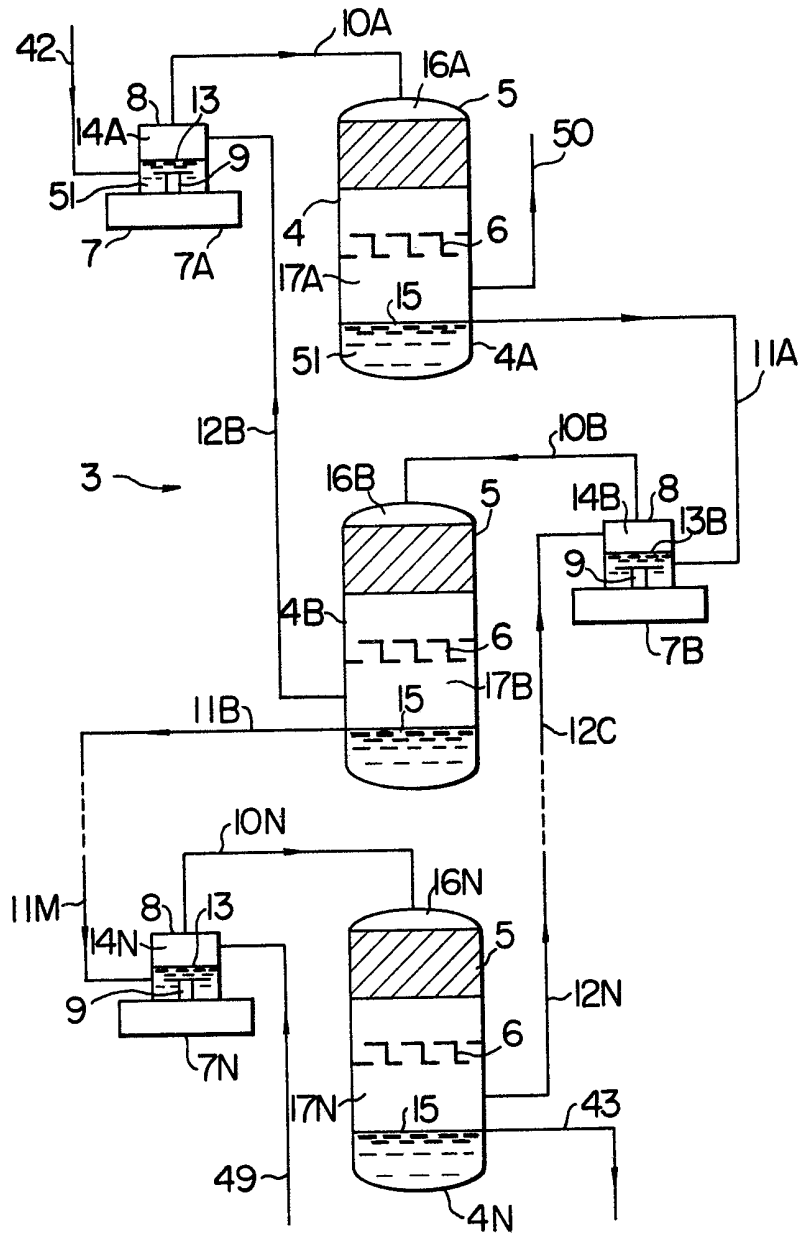


FIG. 4

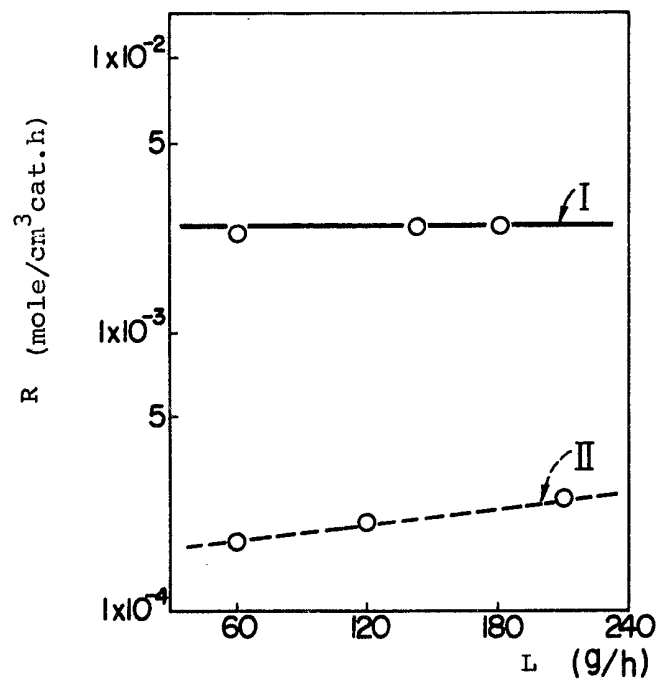


FIG. 5

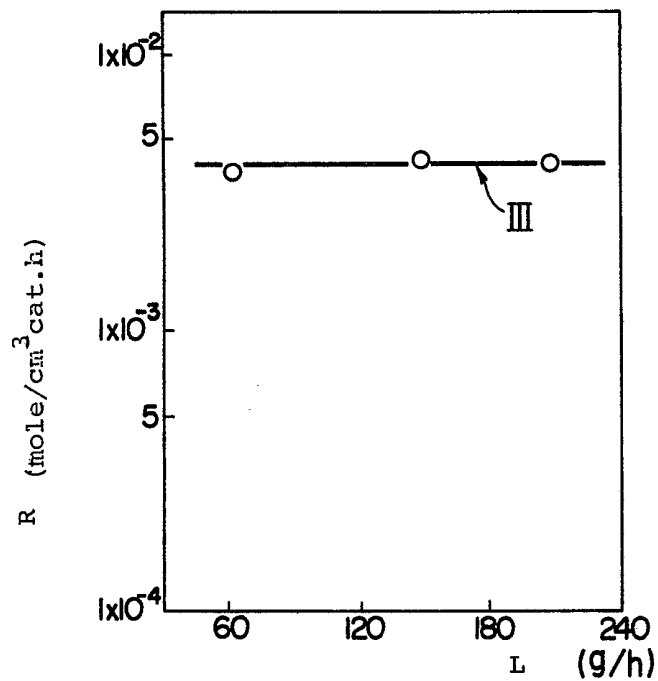


FIG. 6

