(11) EP 0 568 408 B1

(12)

FASCICULE DE BREVET EUROPEEN

(45) Date de publication et mention de la délivrance du brevet:

06.11.1996 Bulletin 1996/45

(51) Int Cl.6: **G21F 9/06**

(21) Numéro de dépôt: 93400989.5

(22) Date de dépôt: 15.04.1993

(54) Enceinte de séparation et de confinement de produits radioactifs contenus dans des effluents liquides et installation et procédé pour le traitement de ces effluents

Trennungs- und Verschlussraum für in flüssigen Abfällen enthaltender radioaktiver Substanzen, sowie Vorrichtung und Verfahren für deren Behandlung

Separation and confinement vessel for radio-active products contained in liquid effluents and device and process for treating those effluents

(84) Etats contractants désignés: **BE CH DE ES GB LI SE**

(30) Priorité: 21.04.1992 FR 9204864

(43) Date de publication de la demande: 03.11.1993 Bulletin 1993/44

(73) Titulaire: FRAMATOME 92400 Courbevoie (FR)

(72) Inventeurs:

Brun, Christian
 F-78500 Sartrouville (FR)

 Guillermier, Pierre F-69006 Lyon (FR)

Saurin, Pierre
 F-78100 Saint Germain en Laye (FR)

(74) Mandataire: Polus, Camille et al c/o Cabinet Lavoix
 2, Place d'Estienne d'Orves
 75441 Paris Cedex 09 (FR)

(56) Documents cités:

EP-A- 0 082 061 FI FR-A- 2 642 746

FR-A- 2 635 608

EP 0 568 408 B1

Il est rappelé que: Dans un délai de neuf mois à compter de la date de publication de la mention de la délivrance du brevet européen, toute personne peut faire opposition au brevet européen délivré, auprès de l'Office européen des brevets. L'opposition doit être formée par écrit et motivée. Elle n'est réputée formée qu'après paiement de la taxe d'opposition. (Art. 99(1) Convention sur le brevet européen).

Description

La présente invention concerne une enceinte de séparation et de confinement de produits radioactifs contenus dans des effluents liquides, et une installation et un procédé pour le traitement de ces effluents.

Elle s'applique en particulier au traitement des effluents liquides provenant d'opérations de décontamination ou de nettoyage d'éléments entrant dans la constitution d'un réacteur nucléaire.

Les générateurs de vapeur d'un réacteur nucléaire à eau sous pression constituent de par leur configuration, leur position dans le circuit secondaire, et les phénomènes thermohydrauliques liés à leur fonctionnement, une zone préférentielle d'accumulation de boues constituées par des particules et des oxydes métalliques issus du circuit secondaire. Il est connu de nettoyer ce circuit secondaire avec des solutions chimiques.

Il est également connu, lorsque des éléments de la partie primaire d'un générateur de vapeur de ce réacteur sont désaffectés, de procéder à leur décontamination, sur place dans la centrale nucléaire, en utilisant des solutions chimiques adaptées.

Les effluents liquides provenant du nettoyage chimique du circuit secondaire ou de la décontamination de la partie primaire du réacteur nucléaire sont radioactifs et doivent être traités, notamment en vue de leur stockage. Ces effluents contiennent essentiellement des cations métalliques et des molécules organiques. Les cations métalliques contiennent l'essentiel de la radioactivité des effluents.

Le stockage d'effluents liquides contenant des produits radioactifs est difficilement envisageable étant donné le volume important des effluents. De plus, les molécules organiques ne peuvent pas être stockées dans les mêmes enceintes que les cations métalliques, en particulier parce que ces molécules ont des propriétés de dissolution des métaux et de corrosion des enceintes de confinement.

L'invention a pour but de séparer les produits radioactifs contenus dans des effluents liquides et de les stocker séparément des effluents liquides, ceci avec des moyens simples et sûrs.

A cet effet l'invention a pour objet une enceinte de séparation et de confinement de produits radioactifs contenus dans des effluents liquides, caractérisée en ce qu'elle comprend des parois en matériau absorbant les radiations susceptibles d'être émises par les produits radioactifs, des électrodes comportant au moins une anode et une cathode, fixées à l'intérieur de l'enceinte, des moyens de raccordement des électrodes à un circuit d'alimentation électrique et des moyens de raccordement de l'enceinte à des moyens d'alimentation et d'évacuation des effluents liquides.

Suivant d'autres caractéristiques de l'invention:

- la cathode est de type volumique ;
- les parois de l'enceinte comprennent une envelop-

pe externe en béton, une enveloppe interne métallique, et une couche de matériau isolant est interposée entre la cathode volumique et l'enveloppe interne métallique.

L'invention a également pour objet une installation pour le traitement d'effluents liquides contenant des produits radioactifs, caractérisée en ce qu'elle comprend une enceinte de séparation et de confinement des produits radioactifs, l'enceinte comportant des parois en matériau absorbant les radiations susceptibles d'être émises par les produits radioactifs, un circuit électrique relié à une anode et une cathode fixées à l'intérieur de l'enceinte, des moyens d'alimentation et d'évacuation des effluents liquides raccordés à l'enceinte et des moyens de mesure du débit de dose de rayonnement émis par le contenu de l'enceinte à l'extérieur de celle-ci.

Suivant d'autres caractéristiques de cette installation:

- les moyens d'alimentation et les moyens d'évacuation des effluents liquides sont munis de moyens de raccordement à un circuit fermé de circulation de la solution radioactive ;
- le circuit fermé comporte des moyens de mesure de l'activité du rayonnement gamma des effluents;
 - l'installation comporte des moyens d'ozonation des effluents après électrolyse, ces moyens d'ozonation étant munis de moyens de raccordement à l'enceinte, ou bien l'installation comporte des moyens d'incinération des effluents après électrolyse, ces moyens d'incinération étant munis de moyens de raccordement à l'enceinte;
 - l'installation comprend une cellule d'électro-électrodialyse des effluents avant électrolyse, cette cellule étant munie de moyens de raccordement à l'enceinte, ou bien l'installation comprend des moyens d'injection d'un électrolyte-support dans la solution avant électrolyse, ces moyens d'injection étant munis de moyens de raccordement à l'enceinte.

L'invention a également pour objet un procédé de traitement d'effluents liquides contenant des produits radioactifs, caractérisé en ce que :

- on introduit un volume prédéterminé d'effluents dans une capacité;
- on réalise l'électrolyse des effluents dans la capacité pour séparer les produits radioactifs des effluents;
- dès que l'activité du rayonnement gamma des effluents est inférieure à un seuil prédéterminé, on vide les effluents de la capacité;
- tant que le débit de dose de rayonnement émis par le contenu de la capacité à l'extérieur de celle-ci est inférieur à un seuil prédéterminé, on effectue à nouveau les étapes précédentes avec des volumes successifs d'effluents;

20

35

45

10

2

20

35

40

50

 dès que le débit de dose de rayonnement émis par le contenu de la capacité de confinement à l'extérieur de celle-ci est supérieur au seuil prédéterminé, on évacue la capacité vidangée vers un stockage de produits contaminés en laissant les électrodes sur lesquelles se sont déposés les produits radioactifs à l'intérieur de la capacité.

Suivant d'autres caractéristiques de ce procédé:

- on coule du béton dans la capacité préalablement à son stockage ;
- on effectue l'ozonation des effluents après électrolyse, en vue de détruire les molécules organiques, jusqu'à ce que la mesure du Carbone Organique Total des effluents soit inférieure à un seuil prédéterminé, ou bien on incinère les effluents après électrolyse en vue de détruire les molécules organiques;
- préalablement à l'électrolyse, on fait subir à la solution radioactive une électro-électrodialyse, ou bien préalablement à l'électrolyse, on ajoute un électrolyte-support.

Des exemples de réalisation de l'invention seront décrits ci-dessous en se référant aux dessins annexés dans lesquels :

- la figure 1 est une vue schématique d'une installation selon un premier mode de réalisation de l'invention;
- la figure 2 est une vue schématique d'une installation selon un deuxième mode de réalisation de l'invention

On voit sur la figure 1 une installation 10 selon un premier mode de réalisation de l'invention, pour le traitement d'un volume prédéterminé d'une solution radioactive. La solution radioactive est constituée d'effluents liquides provenant d'opérations de nettoyage ou de décontamination d'éléments d'un réacteur nucléaire. Ces effluents comportent des ions métalliques et des molécules organiques, en particulier des acides carboxyliques.

L'installation 10 comporte, de la gauche vers la droite en considérant la figure 1, une cellule d'électro-électrodialyse 12, une cellule électrolytique 14, et des moyens 16 d'ozonation de la solution après électrolyse.

La cellule d'électro-électrodialyse 12 est de type connu et ne sera pas décrite.

La cellule électrolytique 14 comporte une enceinte 18 de séparation et de confinement de produits radioactifs de faible et moyenne activité. L'enceinte 18 comporte un corps 20 muni d'un couvercle 22 et des moyens de fermeture étanche de type connu, non représentés sur les figures. Les parois du corps 20 et du couvercle 22 de l'enceinte 18 sont constituées d'une enveloppe métallique interne 24 et d'une enveloppe externe 26 en

béton, ces enveloppes étant adaptées pour absorber les radiations émises par les produits stockés dans l'enceinte 18.

L'enceinte 18 est adaptée pour recevoir la solution radioactive en vue de son traitement par électrolyse. Dans les exemples décrits, on traite la solution par volumes d'environ 200 1.

Une cathode 28 est fixée au corps 20 de l'enceinte 18 et recouvre sa paroi interne. Une anode 30 est fixée au couvercle 22 de l'enceinte 18 et s'étend à l'intérieur de celle-ci

La cathode 28 est d'un type connu dit "volumique". Ce type de cathode comporte une grande surface de contact par unité de volume d'électrolyte et permet de réaliser des transferts d'ions de l'électrolyte (effluents liquides) vers la cathode à des vitesses élevées. Ce type de cathode est constitué par exemple d'une mousse métallique ou d'un déployé métallique.

L'anode 30 est de type connu, par exemple en graphite.

La cathode 28 est isolée électriquement de l'enveloppe métallique interne 24 par une couche 31 isolante intermédiaire de peinture ou de vernis. L'anode 30 est également isolée électriquement de l'enveloppe métallique 24 du couvercle 22 par des moyens connus non représentés sur les figures.

La cathode 28 et l'anode 30 comportent des moyens 32,34 de connexion à un circuit 36 d'alimentation électrique muni d'un générateur de courant 38. Les moyens 32,34 de connexion sont de type connu et sont accessibles depuis l'extérieur de l'enceinte 18.

Un télédétecteur 40 de mesure du débit de dose du rayonnement émis par les produits contenus dans l'enceinte 18 à l'extérieur de celle-ci est disposé sur la surface externe de l'enceinte 18.

La cellule électrolytique 14 est reliée à un circuit fermé 42 de mise en circulation de l'électrolyte, d'une part par un conduit 44 d'alimentation en effluents liquides, et d'autre part par un conduit 46 d'évacuation des effluents liquides.

Le conduit 44 d'alimentation en effluents liquides comporte un premier tronçon 44A interne à l'enceinte 18 et un second tronçon 44B externe à l'enceinte 18. Les deux tronçons 44A,44B sont reliés entre eux par des moyens 48 de raccordement de type connu, accessibles depuis l'extérieur de l'enceinte 18.

De même, le conduit 46 d'évacuation d'effluents liquides comporte un tronçon 46A interne et un tronçon 46B externe reliés entre eux par des moyens 50 de raccordement accessibles depuis l'extérieur de l'enceinte

Le circuit fermé 42 comporte une pompe 52 de circulation dont l'aspiration est reliée par un conduit 54 au conduit d'évacuation 46, et dont le conduit de refoulement 56 est relié au conduit d'alimentation 44.

Le conduit de refoulement 56 comporte des moyens 58 de mesure de l'activité du rayonnement gamma de la solution formant l'électrolyte.

40

50

La cellule électrolytique 14 peut être isolée du circuit fermé 42 au moyen d'une première vanne 60 disposée sur le conduit d'aspiration 54 et d'une seconde vanne 62 disposée sur le conduit de refoulement 56.

La cellule électrolytique 14 est reliée à la cellule d'électro-électrodialyse 12 par des moyens de transfert du volume de solution radioactive comprenant un conduit 64 reliant la cellule 12 d'électro-électrodialyse au conduit d'alimentation 44 de la cellule 14 électrolytique. Le conduit 64 de transfert de solution est muni d'une vanne 66 permettant d'isoler la cellule 12 d'électro-électrodialyse de la cellule 14 d'électrolyse.

On décrira maintenant les moyens 16 d'ozonation. Ces moyens 16 comportent des moyens de transfert du volume de solution après électrolyse comprenant un conduit 68 reliant le conduit d'évacuation 46 de la cellule électrolytique 14 à l'aspiration d'une pompe auto-amorçante 70. Ce conduit 68 comporte une vanne 72 permettant d'isoler la pompe auto-amorçante 70 de la cellule électrolytique 14.

Le refoulement de la pompe auto-amorçante 70 est relié par un conduit 74 à un réservoir 76 de circulation de la solution.

Le réservoir 76 de circulation est relié à un circuit fermé 78 d'injection d'ozone comprenant une pompe 80 dont l'aspiration est raccordée par un conduit 82 au réservoir 76 de circulation et dont le refoulement est raccordé par un conduit 84 à l'extrémité amont d'une trompe 86 d'injection d'ozone. L'extrémité aval de la trompe 86 est raccordée par un conduit 88 au réservoir 76 de circulation.

La trompe 86 d'injection d'ozone est reliée à un ozoneur 92 par des moyens connus comprenant un conduit

Le réservoir 76 de circulation est relié également à des moyens 94 de prélèvement d'échantillons de solution en cours d'ozonation. Ces moyens 94 comportent un conduit 96 muni d'une vanne 98, reliant le réservoir 76 de circulation à un récipient 100 de prélèvement d'échantillons. Ce récipient 100 est associé à des moyens 102 de mesure du Carbone Organique Total d'un échantillon de solution.

Le réservoir 76 de circulation est raccordé à des moyens 104 de vidange de la solution après ozonation. Ces moyens 104 comprennent un conduit 106, muni d'une vanne 108, reliant le réservoir 76 de circulation à des moyens d'évacuation non représentés sur les figures. Ces moyens d'évacuation sont par exemple raccordés à un collecteur d'effluents d'une centrale nucléaire ou à l'égout de cette centrale.

On décrira maintenant le procédé de traitement d'une solution contenant des produits radioactifs et des molécules organiques, mettant en oeuvre l'installation 10 selon le premier mode de réalisation de l'invention.

Un volume prédéterminé de solution radioactive, d'environ 2001, subit successivement une électro-électrodialyse dans la cellule 12, une électrolyse dans la cellule 14 et une ozonation grâce aux moyens d'ozonation

16

Dans un premier temps, on fait subir une électroélectrodialyse à la totalité du volume de solution radioactive de façon à augmenter la concentration des produits radioactifs dans la solution. Cette étape est facultative et peut être supprimée ou substituée par un ajout d'un électrolyte-support dans la solution, comme nous le décrirons ultérieurement dans un second mode de réalisation de l'invention.

Pendant l'électro-électrodialyse, la vanne 66 est fermée de façon à isoler la cellule d'électro-électrodialyse 12 de la cellule électrolytique 14.

Après électro-électrodialyse, la totalité du volume de solution radioactive est transférée dans la cellule électrolytique 11 pour y subir une électrolyse.

Pendant l'électrolyse, la vanne 66 placée entre la cellule d'électro-électrodialyse 12 et la cellule électrolytique 14 ainsi que la vanne 72 placée entre cette cellule 14 et les moyens d'ozonation 16 sont fermées. Les vannes 60,62 à l'aspiration et au refoulement de la pompe de circulation 52 sont ouvertes afin de faire circuler la solution dans le circuit 42.

Au cours de l'électrolyse, les cations radioactifs se déposent sur la cathode volumique 28. De cette façon, la solution s'appauvrit en cations radioactifs et l'activité du rayonnement gamma baisse. L'évolution de l'activité du rayonnement gamma est suivie grâce aux moyens de mesure 58. Lorsque l'activité du rayonnement gamma est inférieure à un seuil prédéterminé, ce seuil dépendant notamment des normes nationales, on arrête l'électrolyse.

La totalité du volume de solution est ensuite transférée dans le réservoir 76 d'ozonation par la pompe de transfert 70, après ouverture de la vanne 72.

Tant que le débit de dose de rayonnement émis par le contenu de l'enceinte 18 à l'extérieur de celle-ci est inférieur à un seuil prédéterminé, on effectue des électrolyses successives de volumes de solution radioactive selon les étapes précédentes. Lorsque ce débit de dose dépasse le seuil prédéterminé, on enlève l'enceinte 18 de l'installation 10 et on la remplace par une nouvelle enceinte. L'enceinte 18 contenant les produits radioactifs est ensuite placée dans une unité de stockage en laissant à l'intérieur de celle-ci les tronçons internes 44A,46A des conduits d'alimentation et d'évacuation de solution, la cathode 28 sur laquelle se sont déposés les cations radioactifs et l'anode 30.

Préalablement au stockage de l'enceinte 18, il est possible de couler du béton à l'intérieur de celle-ci. Le béton est introduit par l'extrémité extérieure débouchante d'un tronçon interne 44A,46A du conduit 44 d'alimentation ou du conduit 46 d'évacuation, après avoir séparé ce tronçon interne 44A,46A du tronçon externe 44B,46B correspondant.

On décrira maintenant le traitement de la solution après électrolyse. Cette solution contient des molécules organiques à éliminer.

Après électrolyse, la solution comporte une quanti-

10

15

35

40

45

té négligeable d'éléments radioactifs et l'ozonation permet de détruire les produits organiques contenus dans la solution, en particulier les acides carboxyliques.

7

L'ozonation de la solution se fait en faisant circuler cette solution dans le circuit d'ozonation 78. L'ozone détruit les molécules organiques en les oxydant.

En particulier, l'oxydation des molécules d'acides carboxyliques de la solution se fait suivant la réaction chimique ci-dessous :

$$3C_nH_{2n+1}COOH+(3n+1)O_3\rightarrow (3n+3)CO_2+(3n+3)H_2O$$

L'ozone consommée par la solution est renouvelée de façon continue au moyen de la trompe 86 d'injection d'ozone.

Pendant l'ozonation, on effectue des prélèvements d'échantillons grâce aux moyens de prélèvement 94 de façon à mesurer le Carbone Organique Total de la solution. Lorsque la valeur du Carbone Organique Total est inférieure à une valeur de seuil, correspondant à la destruction de la plupart des molécules organiques, on vidange la totalité de la solution grâce aux moyens 104.

Selon l'état final de la solution et selon le type de centrale nucléaire, on rejette la solution après ozonation dans un égout ou dans un collecteur d'effluents de la centrale.

Les opérations d'électro-électrodialyse, d'électrolyse et d'ozonation se font de façon indépendante. Ainsi, dès qu'une de ces opérations est terminée, on peut recommencer celle-ci avec une nouvelle solution.

On décrira ci-dessous un second mode de réalisation de l'invention en regard de la figure 2. Sur cette figure, les éléments analogues à ceux de la figure 1, ayant des fonctions analogues, sont désignés par des références identiques.

Sur la figure 2 on a représenté une installation 10 comportant une cellule électrolytique 14 pour le traitement d'une solution radioactive comportant des ions métalliques et des molécules organiques. A la différence du premier mode de réalisation de l'invention, l'installation 10 ne comporte pas de cellule d'électro-électrodialyse ni de moyens d'ozonation.

Dans ce second mode de réalisation de l'invention, l'installation 10 comporte des moyens 110 d'injection d'un d'électrolyte-support dans le volume de solution radioactive avant électrolyse. L'électrolyte-support comporte par exemple des sels de fer, de cobalt ou de nickel. L'ajout d'un électrolyte-support permet d'augmenter la conductivité de la solution et améliore ainsi le rendement de l'électrolyse.

Sur la figure 2 on voit que les moyens d'injection d'électrolyte-support comprennent une vanne trois voies 110 permettant d'ajouter l'électrolyte-support au moment du transfert de la solution dans la cellule électrolytique 14.

Par ailleurs, dans le second mode de réalisation de l'invention, les molécules organiques contenues dans la solution radioactive sont détruites dans une unité d'incinération 112 de type connu. Cette unité d'incinération 112 détruit les molécules organiques en les transformant en molécules d'eau et de dioxyde de carbone.

Le procédé de traitement de la solution radioactive mettant en oeuvre l'installation 10 selon le second mode de réalisation de l'invention comporte successivement un ajout d'électrolyte-support dans un volume prédéterminé de solution radioactive, l'électrolyse de la solution radioactive et l'incinération de la solution après électrolyse.

Ces opérations sont indépendantes et s'enchaînent de façon analogue aux opérations décrites dans le cas du premier mode de réalisation de l'invention.

L'invention ne se limite pas aux deux modes de réalisation décrits. En particulier il est possible de n'effectuer aucune opération préalablement à l'électrolyse de la solution radioactive. On peut effectuer au choix un ajout d'électrolyte-support ou bien une électroélectrodialyse préalablement à l'électrolyse de la solution. De même, on peut effectuer au choix une ozonation ou bien une incinération après électrolyse de la solution.

Le procédé de traitement des effluents liquides pourrait également être réalisé en continu, de même que l'enceinte de séparation et de confinement pourrait être utilisée dans le cas d'un procédé en continu.

L'invention permet de traiter les effluents liquides produits au cours d'opérations de décontamination ou de nettoyage d'éléments d'un réacteur nucléaire. Elle permet de stocker et d'isoler très facilement les cations métalliques radioactifs de ces effluents. Elle permet d'effectuer facilement une destruction des molécules organiques qu'il n'est pas possible de stocker avec les déchets radioactifs ou de rejeter dans l'environnement.

L'utilisation d'une cathode volumique intégrée dans une enceinte de confinement de déchets radioactifs permet de recueillir les cations radioactifs directement dans une enceinte adaptée pour leur stockage. De plus, la cathode volumique permet d'obtenir une vitesse de transfert des cations de la solution radioactive sur la cathode volumique relativement élevée.

Revendications

Enceinte de séparation et de confinement de produits radioactifs contenus dans des effluents liquides, caractérisée en ce qu'elle comprend des parois en matériau absorbant les radiations susceptibles d'être émises par les produits radioactifs, des électrodes comportant au moins une anode (30) et une cathode (28), fixées à l'intérieur de l'enceinte, des moyens (32,34) de raccordement des électrodes (28,30) à un circuit d'alimentation électrique et des moyens (44A,46A,48,50) de raccordement de l'enceinte (18) à des moyens (44B,46B) d'alimentation et d'évacuation des effluents liquides.

15

20

25

35

40

45

- 2. Enceinte selon la revendication 1, caractérisée en ce que la cathode (28) est de type volumique.
- 3. Enceinte selon la revendication 2, caractérisée en ce que les parois de l'enceinte (18) comprennent une enveloppe externe (26) en béton, une enveloppe interne (24) métallique, et en ce qu'une couche (31) de matériau isolant est interposée entre la cathode volumique (28) et l'enveloppe interne (24) métallique.
- 4. Installation pour le traitement d'effluents liquides contenant des produits radioactifs, caractérisée en ce qu'elle comprend une enceinte (18) de séparation et de confinement des produits radioactifs, l'enceinte (18) comportant des parois en matériau absorbant les radiations susceptibles d'être émises par les produits radioactifs, un circuit électrique (36) relié à une anode (30) et une cathode (28) fixées à l'intérieur de l'enceinte (18), des moyens (44B,46B) d'alimentation et d'évacuation des effluents liquides raccordés à l'enceinte (18) et des moyens (40) de mesure du débit de dose de rayonnement émis par le contenu de l'enceinte à l'extérieur de celle-ci.
- 5. Installation selon la revendication 4, caractérisée en ce que les moyens (44B) d'alimentation et les moyens (46B) d'évacuation des effluents liquides sont munis de moyens de raccordement (60,62) à un circuit fermé (42) de circulation de la solution radioactive.
- 6. Installation selon la revendication 5, caractérisée en ce que le circuit fermé (42) comporte des moyens (58) de mesure de l'activité du rayonnement gamma des effluents.
- 7. Installation selon l'une quelconque des revendications 4 à 6, les effluents liquides à traiter comportant des molécules organiques, caractérisée en ce qu'elle comporte des moyens (16) d'ozonation des effluents après électrolyse, ces moyens (16) d'ozonation étant munis de moyens (72) de raccordement à l'enceinte (18).
- 8. Installation selon l'une quelconque des revendications 4 à 6, les effluents liquides à traiter comportant des molécules organiques, caractérisée en ce qu'elle comporte des moyens (112) d'incinération des effluents après électrolyse, ces moyens (112) d'incinération étant munis de moyens (72) de raccordement à l'enceinte (18).
- 9. Installation selon l'une quelconque des revendications 4 à 8, caractérisée en ce qu'elle comprend une cellule d'électro-électrodialyse (12) des effluents avant électrolyse, cette cellule (12) étant munie de moyens (66) de raccordement à l'enceinte.

- 10. Installation selon l'une quelconque des revendications 4 à 8, caractérisée en ce qu'elle comprend des moyens (110) d'injection d'un électrolyte-support dans la solution avant électrolyse, ces moyens (110) d'injection étant munis de moyens (66) de raccordement à l'enceinte.
- 11. Procédé de traitement d'effluents liquides contenant des produits radioactifs, caractérisé en ce que :
 - on introduit un volume prédéterminé d'effluents dans une capacité (18).
 - on réalise l'électrolyse des effluents dans la capacité (18) pour séparer les produits radioactifs des effluents,
 - dès que l'activité du rayonnement gamma des effluents est inférieure à un seuil prédéterminé, on vide les effluents de la capacité (18),
 - tant que le débit de dose de rayonnement émis par le contenu de la capacité à l'extérieur de celle-ci est inférieur à un seuil prédéterminé, on effectue à nouveau les étapes précédentes avec des volumes successifs d'effluents,
 - dès que le débit de dose de rayonnement émis par le contenu de la capacité (18) de confinement à l'extérieur de celle-ci est supérieur au seuil prédéterminé, on évacue la capacité vidangée vers un stockage de produits contaminés en laissant les électrodes sur lesquelles se sont déposés les produits radioactifs à l'intérieur de la capacité (18).
- **12.** Procédé selon la revendication 11, caractérisé par le fait qu'on coule du béton dans la capacité (18) préalablement à son stockage.
- 13. Procédé selon la revendication 11 ou 12, les effluents liquides à traiter comportant des molécules organiques, caractérisé en ce que le fait qu'on effectue l'ozonation (en 16) des effluents après électrolyse, en vue de détruire les molécules organiques, jusqu'à ce que la mesure du Carbone Organique Total des effluents soit inférieure à un seuil prédéterminé.
- 14. Procédé selon la revendication 12 ou 13, les effluents liquides à traiter comportant des molécules organiques, caractérisé par le fait qu'on incinère (en 12) les effluents après électrolyse en vue de détruire les molécules organiques.
- 15. Procédé selon l'une quelconque des revendications 12 à 14, caractérisé par le fait que, préalablement à l'électrolyse, on fait subir (en 12) aux effluents une électro-électrodialyse.
- 16. Procédé selon l'une quelconque des revendications

10

15

20

25

30

35

40

45

12 à 14, caractérisé par le fait que, préalablement à l'électrolyse, on ajoute (en 110) un électrolytesupport aux effluents.

Patentansprüche

- 1. Teilungs- und Verschlußraum für radioaktive Produkte beziehungsweise Substanzen, die in flüssigen Abfällen enthalten sind, dadurch gekennzeichnet, daß er Seitenwände aus Material, die die Strahlungen absorbieren, die von den radioaktiven Substanzen ausgestrahlt werden können, Elektroden, die wenigstens eine Anode (30) und eine Kathode (28) aufweisen, die im Inneren des Raumes befestigt sind, Einrichtungen (32, 34) zum Verbinden der Elektroden (28, 30) mit einem elektrischen Zuführkreis und Einrichtungen (44A, 46A, 48, 50) zum Verbinden des Raumes (18) mit Einrichtungen (44B, 46B) zum Zuführen und Ausbringen der flüssigen Abfälle aufweist.
- 2. Raum nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Kathode (28) vom Volumentyp ist.
- 3. Raum nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Seitenwände des Raumes (18) eine äußere Hülle (26) aus Beton, eine innere metallische Hülle (24) aufweisen, und daß eine Schicht (31) aus isolierendem Material zwischen die Volumenkathode (28) und die metallische Innenhülle (24) gesetzt ist.
- Vorrichtung zum Behandeln von flüssigen Abfällen, die radioaktive Substanzen enthalten, dadurch gekennzeichnet, daß sie einen Trennungs- und Verschlußraum (18) der radioaktiven Substanzen aufweist, wobei der Raum (18) Seitenwände aus die Strahlungen absorbierendem Material aufweist, die von den radioaktiven Substanzen abgegeben werden können, einen elektrischen Kreis (36), der mit einer Anode (30) und einer Kathode (28) verbunden ist, die im Inneren des Raumes (18) befestigt sind, Einrichtungen (44B, 46B) zum Zuführen und Ausbringen der flüssigen Abfälle, die mit dem Raum (18) verbunden sind, und Einrichtungen (40) zum Messen der Rate der Strahlungsdosis aufweist, die von dem Inhalt des Raumes zu dessen Äußeren abgegeben wird.
- 5. Vorrichtung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Zuführeinrichtungen (44B) und die Ausbringeinrichtungen (46B) der flüssigen Abfälle mit Verbindungseinrichtungen (60, 62) zu einem geschlossenen Zirkulationskreislauf (42) der radioaktiven Lösung versehen sind.
- **6.** Vorrichtung nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß der geschlossene Kreislauf (42) Einzeichnet, daß der geschlossen (42)

- richtungen (58) zum Messen der Gamma-Strahlungsaktivität der Abfälle aufweist.
- 7. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 4 bis 6, wobei die zu behandelnden flüssigen Abfälle organische Moleküle aufweisen, dadurch gekennzeichnet, daß sie Ozonisierungseinrichtungen (16) der Abfälle nach Elektrolyse aufweist, wobei die Ozonisierungseinrichtungen (16) mit Einrichtungen (72) zum Verbinden mit dem Raum (18) versehen ist.
- 8. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 4 bis 6, bei der die zu behandelnden flüssigen Abfälle organische Moleküle aufweisen, dadurch gekennzeichnet, daß sie Einrichtungen (112) zum Verbrennen der Abfälle nach Elektrolyse aufweist, wobei diese Verbrennungseinrichtungen (112) mit Einrichtungen (72) zum Verbinden mit dem Raum (18) versehen sind.
- Vorrichtung nach einem der Ansprüche 4 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß sie eine Elektro-Elektrodialysezelle (12) der Abfälle vor Elektrolyse aufweist, wobei diese Zelle (12) mit Einrichtungen (66) zum Verbinden mit dem Raum versehen sind.
- 10. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 4 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß sie Einspritzeinrichtungen (110) eines Elektrolyt-Trägers in die Lösung vor Elektrolyse aufweist, wobei diese Einspritzeinrichtungen (110) mit Einrichtungen (66) zum Verbinden mit dem Raum versehen sind.
- **11.** Verfahren zum Behandeln von flüssigen Abfällen, die radioaktive Substanzen enthalten, dadurch gekennzeichnet, daß:
 - ein vorbestimmtes Volumen an Abfällen in einen Raum (18) eingeführt wird,
 - die Elektrolyse der Abfälle in dem Raum (18) durchgeführt wird, um die radioaktiven Produkte oder Substanzen von den Abfällen zu trennen.
 - sobald die Gamma-Strahlungsaktivität der Abfälle geringer ist als ein vorbestimmter Schwellenwert, die Abfälle aus dem Raum (18) geleert werden,
 - solange die Strahlungsdosisrate, die von dem Inhalt des Raumes nach dessen Äußeren emittiert wird, geringer ist als ein vorgesehener Schwellenwert, die vorhergehenden Schritte erneut mit aufeinanderfolgenden Volumen von Abfällen durchgeführt werden,
 - sobald die Strahlungsdosisrate, die von dem

7

15

25

35

40

Inhalt des Verschlußraumes (18) nach dessen Äußeren abgegeben wird, größer ist als der vorbestimmte Schwellenwert, der geleerte Raum zu einem Lager von kontaminierten Substanzen evakuiert wird, wobei die Elektroden, an denen die radioaktiven Substanzen abgelagert haben, im Inneren des Raumes (18) gelassen werden.

- **12.** Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß Beton in den Raum (18) vor seinem Lagern eingegossen wird.
- 13. Verfahren nach Anspruch 11 oder 12, wobei die zu behandelnden flüssigen Abfälle organische Moleküle aufweisen, dadurch gekennzeichnet durch die Tatsache, daß die Ozonisierung (bei 16) der Abfälle nach Elektrolyse durchgeführt wird, um die organischen Moleküle zu zerstören, bis die Messung des gesamten organischen Kohlenstoffs der Abfälle unter einem vorbestimmten Schwellenwert liegt.
- 14. Verfahren nach Anspruch 12 oder 13, bei dem die zu behandelnden flüssigen Abfälle organische Moleküle aufweisen, dadurch gekennzeichnet, daß (bei 12) die Abfälle nach Elektrolyse verbrannt werden, um die organischen Moleküle zu zerstören.
- **15.** Verfahren nach einem der Ansprüche 12 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß vor der Elektrolyse die Abfälle einer Elektro-Elektrodialyse (bei 12) unterworfen werden.
- 16. Verfahren nach einem der Ansprüche 12 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß vor der Elektrolyse ein Elektrolyten-Träger den Abfällen (bei 110) zugeführt wird.

Claims

- 1. Vessel for separation and containment of radioactive products contained in liquid effluents, characterised in that it comprises walls made of a material which absorbs the radiation which can be emitted by the radioactive products, electrodes including at least one anode (30) and one cathode (28), which are fixed inside the vessel, means (32, 34) for connecting the electrodes (28, 30) to an electrical supply circuit, and means (44A, 46A, 48, 50) for connecting the vessel (18) to means (44B, 46B) for supplying and draining the liquid effluents.
- 2. Vessel according to Claim 1, characterised in that the cathode (28) is of the voluminous type.
- **3.** Vessel according to Claim 2, characterised in that the walls of the vessel (18) comprise an outer con-

- crete envelope (26), an inner metal envelope (24); and in that a layer (31) of insulating material is interposed between the voluminous cathode (28) and the inner metal envelope (24).
- 4. Installation for treating liquid effluents containing radioactive products, characterised in that it comprises a vessel (18) for separation and containment of the radioactive products, the vessel (18) including walls made of a material which absorbs the radiation which can be emitted by the radioactive products, an electrical circuit (36) connected to an anode (30) and a cathode (28) which are fixed inside the vessel (18), means (44B, 46B) for supplying and draining the liquid effluents which are connected to the vessel (18), and means (40) for measuring the radiation dose rate emitted by the contents of the vessel outside the latter.
- 5. Installation according to Claim 4, characterised in that the means (44B) for supplying and the means (46B) for draining the liquid effluents are fitted with means (60, 62) for connection to a closed circuit (42) for circulation of the radioactive solution.
 - 6. Installation according to Claim 5, characterised in that the closed circuit (42) includes means (58) for measuring the gamma radiation activity of the effluents.
 - 7. Installation according to any one of Claims 4 to 6, the liquid effluents to be treated including organic molecules, characterised in that it includes means (16) for ozonising the effluents after electrolysis, these ozonisation means (16) being fitted with means (72) for connection to the vessel (18).
 - 8. Installation according to any one of Claims 4 to 6, the liquid effluents to be treated including organic molecules, characterised in that it includes means (112) for incinerating the effluents after electrolysis, these incineration means (112) being fitted with means (72) for connection to the vessel (18).
- 45 9. Installation according to any one of Claims 4 to 8, characterised in that it comprises a cell (12) for electro-electrodialysis of the effluents before electrolysis, this cell (12) being fitted with means (66) for connection to the vessel.
 - 10. Installation according to any one of Claims 4 to 8, characterised in that it comprises means (110) for injecting a support electrolyte into the solution before electrolysis, these injection means (110) being fitted with means (66) for connection to the vessel.
 - **11.** Method for treating liquid effluents containing radioactive products, characterised in that:

- a predetermined volume of effluents is introduced into a tank (18),
- electrolysis of the effluents in the tank (18) is carried out in order to separate the radioactive products from the effluents,
- as soon as the gamma radiation activity of the effluents is less than a predetermined threshold, the effluents are emptied from the tank
- as long as the radiation dose rate emitted by the contents of the tank outside the latter is less than a predetermined threshold, the preceding stages are repeated with successive volumes of effluents.
- as soon as the radiation dose rate emitted by 15 the contents of the containment tank (18) outside the latter is greater than the predetermined threshold, the emptied tank is removed towards a storage area for contaminated products while leaving the electrodes onto which the radioac- 20 tive products have been deposited inside the tank (18).
- 12. Method according to Claim 11, characterised in that concrete is poured into the tank (18) prior to its stor-
- 13. Method according to Claim 11 or 12, the liquid effluents to be treated including organic molecules, characterised in that the ozonisation (at 16) of the effluents is carried out after electrolysis, with a view to breaking down the organic molecules, until the measurement of the Total Organic Carbon of the effluents is less than a predetermined threshold.
- 14. Method according to Claim 12 or 13, the liquid effluents to be treated including organic molecules, characterised in that the effluents are incinerated (at 12) after electrolysis with a view to breaking down the organic molecules.
- 15. Method according to any one of Claims 12 to 14, characterised in that, prior to the electrolysis, the effluents are subjected (at 12) to an electro-electrodialysis.
- 16. Method according to any one of Claims 12 to 14, characterised in that, prior to the electrolysis, a support electrolyte is added (at 110) to the effluents.

35

40

45

50



