

# Retour d'expérience du procédé de détritiation de Valduc

D. Leterq<sup>1</sup>, P. Bussière<sup>2</sup>

<sup>1</sup>CEA DIF

<sup>2</sup>CEA Valduc

Sur le plan international, c'est aux Etats-Unis qu'ont été mises en place les premières unités de détritiation d'atmosphère de boîtes à gants. Ce développement technologique a été stimulé par le durcissement de la réglementation américaine sur les rejets dans les années 70. Pour faire face à cette nouvelle exigence, la société Engelhard, spécialisée dans le traitement des gaz, met alors au point un catalyseur adapté à l'oxydation de traces de tritium gazeux. L'eau générée peut être facilement piégée, contrairement au tritium gazeux, particulièrement volatil. Ce catalyseur, à base de métaux précieux, possède en particulier une grande surface d'échange (200 m<sup>2</sup> par gramme), propice à la réaction chimique d'oxydation. Engelhard construit autour de ce principe un procédé complet de traitement qui sera repris par l'ensemble des installations Tritium dans le monde. Il consiste à préchauffer le gaz à traiter, à convertir le tritium présent en eau dans un réacteur d'oxydation, à refroidir le gaz puis à piéger l'eau produite sur de la zéolithe, matériau avide d'humidité. Le gaz ainsi décontaminé est recyclé ou bien rejeté dans l'environnement. Le facteur d'épuration affiché est de l'ordre de 1000.

A Valduc, au début des années 70, les procédés de traitement du tritium sont implantés dans des caissons ventilés, de taille équivalente à des cellules. Les opérations de maintenance doivent être réalisées en scaphandre à l'intérieur du caisson lui-même. Les boîtes à gants font progressivement leur apparition à la fin des années 70. Elles sont ventilées et seules quelques unes - celles qui présentent l'inventaire le plus élevé - possèdent un système de détritiation dédié, du type de celui conçu par Engelhard. La capacité de traitement est alors limitée à 60 Nm<sup>3</sup>/h. La détritiation se généralise au début des années 90, avec la création de cinq réseaux de ventilation de boîtes à gants possédant chacun leur propre système de traitement. Au total, près d'une centaine de boîtes vont ainsi bénéficier d'un système de détritiation d'atmosphère. La capacité totale de traitement s'élève à 1200 Nm<sup>3</sup>/h. Enfin, en 2000, une nouvelle unité de détritiation est mise en place. Elle permet de traiter l'air rejeté par les cinq réseaux de détritiation et joue donc un rôle de traitement de deuxième niveau. Elle réduit encore le niveau d'activité en tritium avant son évacuation à la cheminée et permet également de pallier un éventuel dysfonctionnement du premier niveau de détritiation.

Sur le plan technique, le fonctionnement des unités de détritiation peut se faire « en ligne », auquel cas le débit d'air introduit est rejeté à la

cheminée après traitement, ou « en boucle », mode pour lequel l'air est recyclé. Le premier mode est préféré quand on souhaite maintenir un très faible niveau de contamination en boîte à gants, le recyclage conduisant à réintroduire dans le réseau la faible proportion de tritium non convertie.

La température du réacteur d'oxydation est portée à 200°C pour le premier étage de traitement, afin d'éviter l'adsorption de la vapeur d'eau ou d'éventuel monoxyde de carbone sur le catalyseur, espèces inhibitrices de la réaction. Pour le deuxième étage, la température atteint 450 °C, seuil qui permet de décomposer les hydrocarbures tritiés produits par l'interaction du tritium avec les matières organiques. Des essais de qualification ont démontré que le rendement de conversion du tritium en eau était supérieur à 99,8 %. L'atmosphère d'une boîte à gants revient à son niveau normal au plus tard six heures après l'occurrence d'un pic de concentration volumique en tritium.

Les règles d'exploitation de l'installation imposent qu'une boîte à gants soit détritiable quand l'inventaire présent est supérieur à 1000 Ci (37 TBq). Elle doit être détritiiée quand l'activité volumique en tritium dépasse le seuil de 5500 LPCA (1,1 GBq/m<sup>3</sup>). Le raccordement au système de détritiation peut être permanent ou réalisé de façon automatique lorsque le seuil est atteint. Le taux de renouvellement de l'atmosphère doit être supérieur à 1 dans une boîte à gants détritiiée.

Une surveillance centralisée des caractéristiques de l'atmosphère des boîtes à gants (activité tritium, pression, débit, hygrométrie, teneurs en hydrogène et oxygène) est assurée au moyen d'un système informatisé de supervision. Celui-ci permet d'identifier en temps réel le moindre dysfonctionnement et assure l'archivage des données.

L'impact de la mise en place des systèmes de détritiation à Valduc peut être apprécié à partir de la courbe des rejets annuels du centre. Ils sont passés de plusieurs dizaines de grammes par an dans les années 70 à des niveaux inférieurs au gramme dans les années 2000, correspondant à environ 20 % de l'autorisation annuelle de rejet. Par ailleurs, depuis 1995, aucun rejet incidentel n'a atteint le seuil d'information à l'autorité de sûreté fixé à 500 Ci (18,5 TBq).

La mise en œuvre de systèmes de détritiation entraîne le besoin de gérer les quantités d'eau piégées sur la zéolithe. Cette eau est récupérée en faisant circuler un flux d'air sec à 250°C dans la zéolithe. La vapeur est ensuite condensée dans un piège thermique refroidi à 7°C. A l'eau tritiée produite dans le réacteur d'oxydation s'ajoute l'eau provenant des entrées d'air humide de la cellule vers l'intérieur des boîtes à gants. Or la seconde représente 10 000 fois le volume de la première. Il en résulte deux inconvénients majeurs :

- la production d'une quantité substantielle d'eau tritiée (environ 100 litres par an),
- la forte dilution de la teneur en tritium (concentration dans l'eau de 300 Ci/l, soit 11,1 TBq/l, correspondant à un titre isotopique en tritium de 100 ppm).

Cette eau est entreposée de manière sûre dans des bidons en polyéthylène de 10 litres, eux-mêmes placés en boîtes à gants, ou bien elle est refixée sur de la zéolithe à l'intérieur de conteneurs étanches. Des études sont en cours pour mettre un point un procédé permettant de valoriser cette eau. Celui-ci comportera une phase préliminaire d'élimination des impuretés chimiques (purification), suivie d'une électrolyse de l'eau puis d'une étape de séparation isotopique de l'hydrogène produit.

Les systèmes de détritiation de Valduc sont en constante évolution.

Les réflexions actuelles visent à réduire et éventuellement supprimer les quantités d'eau tritiée produites. La solution envisagée consisterait à augmenter la concentration en tritium dans le flux à traiter en effectuant une étape préliminaire d'enrichissement. Cette séparation entre le tritium gazeux et l'azote de balayage des boîtes à gants peut être réalisée par perméation dans des membranes organiques (par exemple en polyimide). Le tritium ainsi enrichi pourrait alors être piégé directement sur un matériau adapté dit « getter », sans passer par l'étape d'oxydation.