

FR 80 00 631

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

INSTITUT DE PROTECTION ET DE SURETE NUCLEAIRE

DEPARTEMENT DE PROTECTION

SERVICES TECHNIQUES DE PROTECTION

Technical meeting for the NEA group of national
nominees on alpha-bearing waste. Workshop on high
temperature incineration. Mol, Belgium, 6-8 November
1979

CEA-CONF--4975

HIGH TEMPERATURE TREATMENTS OF GASES
ISSUED FROM A RADIOACTIVE WASTE INCINERATOR

CHAPUIS A.M., CHEVALIER G.

Technical meeting for the NEA group of national
nominees on alpha-bearing wastes

Workshop on high temperature incineration

O. E. C. D.

MOL, Belgium, 6-8 November 1979

HIGH TEMPERATURE TREATMENTS OF GASES
ISSUED FROM A RADIOACTIVE WASTE INCINERATOR

CHAPUIS A.M., CHEVALIER G.

The high temperature incineration of radioactive waste gives flue gases with high temperature which can be contaminated with radionuclides and chemical products. It is therefore necessary to choose a technique decreasing these contaminations, to treat and filter the gases, to control effluents contamination.

Thermal destruction of organic compounds

Many organic compounds in waste can be destroyed by combustion. They are solid such as materials, pipes, clothes, wrappings and liquid like cleaning products, extraction and purification solvent.

Three conditions are needed to obtain a good oxidation :

- turbulences to obtain an homogenous mixture of gas and oxygen,
- sufficient temperature for a correct reaction rate,
- a contact time long enough between effluent and heat in order to get a complete reaction.

The temperature needed depends on the organic compound. We are therefore studying thermal degradation of compounds containing H, S, N, Cl, with and without oxygen (1 to 5). These studies show that the complete combustion of some of them with a low LHC, such as carbontetrachloride or ethylen tetrachloride, need contact time longer than 1 second and temperature higher than 1050° C (4). We are now continuing the experiments between 1000 and 1400° C.

The study without oxygen is useful in the case of pyrolysis and for bad combustion conditions, at the moment of feed-up for example.

Compounds with P are interesting too, we study the thermal degradation of TBP often used in Pu extraction process ; this degradation gives P₂ O₅ but also some butene that may be a cause of explosion.

Many problems are raised by corrosion due to PVC combustion. This is particularly true for our incinerator used for Pu recovery where 55 % of the waste are vinyl chloride. And Mrs AUSCHAPT, in Marcoule, who uses it and is studying a bigger one is investigating substitutes. She has found three similar materials, but with slightly different properties. They are more expensive and they all contain a small amount of Cl incorporated into the sheets to make them non-inflammable.

Filtration of gas

The flue gas from the furnace has to be filtered before release. The choice of the filtration process obeys 3 conditions :

- not to increase too much the volume to be filtered in order to limit the ground space of the unit,
- to avoid corrosion which first appears in the cold parts and especially in the heat exchanger,
- to perform a possible wet scrubbing only on non-radioactive gases since effluent treatment stations do not accept such liquids.

For these reasons we have preferred hot filtration and experimented and developed some devices (6).

a) a post-combustion chamber : it is a chamber fit up with silicon carbide grains, it increases the contact between heat and gas and allows the spontaneous combustion of carbon black. This chamber fits the incinerators built by CEC in France (Strasbourg and Grenoble) and in Japan (Tokai - Mura and Oarai),

b) a high-temperature filter. This is a set of metallic candles lined with asbestos fibers, working between 600 and 800° C. It allows the burning of carbon black and the pre-filtering of solid particles. When the filter is plugged and the pressure drop is too high asbestos is removed in a glove-box, the candles are lined again with new asbestos fibers, heated and ready for another period.

c) A medium-temperature filter

Filtering at medium temperature about 400° C is also possible. We use a filtering material made of small fibers of silica and alumina, with a low initial pressure drop. Local heating with an electric resistance heats the fibers up to 600° C for unplugging. This filter has also been used for Diesel engine gas cleaning (7).

When we studied these various filters and filtering materials we saw that control at low temperature was not sufficient and we thus decided to build a bench to test them up to 800° C. We are now beginning such tests with silicon carbide candles, silica and alumina fibers, quartz and asbestos fibers, filter papers made with mineral fibers and commercial Bekipor and Bekinox filters.

We are also studying the thermal behaviour of the components : casing, frame, lute, mastic, gasket.

Effluent control

In order to estimate the decontamination factor of each part it is necessary to measure the contamination of the flue gas at each stage of the process, even in the high temperature zone.

The present sampling techniques are not satisfying enough. The dusts must be collected with the same efficiency whatever the particle size, as well as the volatile elements.

The use of a cooled pipe must be avoided. We have made experiments for radioactive gas sampling at low temperature and we are now developing a sampling system for high temperature (8, 9). It works with isokinetic conditions, in a closed circuit where the hot gases are diluted with fresh air. It will be used to control the new incinerator for chlorinated solvents at Cadarache. We will also control the Grenoble incinerator, which is to start again, next year, after modifications.

* * *

All these studies clearly show that we must be careful when choosing and controlling a filtering unit.

BIBLIOGRAPHY

- (1) CHEVALIER G., DUPOUX N.
Epuration par traitement thermique des atmosphères chargées de polluants organiques volatils.
Rapport CEA-R-4732 - 1976.
- (2) BRAULT A., CARMELLE D., et coll.
Epuration par traitement thermique en présence d'air des effluents gazeux pollués par des vapeurs de produits organiques soufrés.
Rapport CEA-R-4998 - 1979.
- (3) CHEVALIER G., DUPOUX N.
Décomposition thermique du chlorure de polyvinyle
Note CEA-N-1714 - Avril 1974.
- (4) CARMELLE D., BRAULT A., CHEVALIER G.
Epuration par traitement thermique des atmosphères chargées de vapeurs de solvants chlorés.
Rapport CEA-R-4902 - 1978.

.../..

- (5) BRAULT A. CARMELLE D., CHEVALIER G., KERFANTO M.
Dégradation thermique des dérivés chlorés des hydrocarbures en absence d'oxygène. Cas des dérivés perchlorés.
Rapport CEA-R-4997 - 1979.
- (6) CHAPUIS A.M., CHEVALIER G. et coll.
Traitement des effluents gazeux à haute température -
Application à la destruction des déchets radioactifs par traitements thermiques.
Revue Générale Nucléaire 508-512, 6, Décembre 1976.
- (7) DUPOUX J., LETOURNEAU
Filtre régénérable pour l'épuration des gaz de combustion d'un moteur Diesel.
Congrès Mondial de la Filtration - Paris 14-17 mai 1974.
- (8) CHARUAU J.
Etude de la rétention d'aérosols dans les conduits de prélèvement - Application
à la mesure de la contamination radioactive.
Rapport CEA-R-4985 - 1979.
- (9) CHARUAU J.
Rétention des particules dans les conduits de prélèvement d'aérosols.
Rayonnements ionisants 1977, 4, 169-176.

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE
INSTITUT DE PROTECTION ET DE SURETE NUCLEAIRE
DEPARTEMENT DE PROTECTION
SERVICES TECHNIQUES DE PROTECTION

TRAITEMENT A HAUTE TEMPERATURE DES GAZ
PROVENANT D'UN INCINERATEUR DE DECHETS RADIOACTIFS

CHAPUIS A.M., CHEVALIER G.

Réunion technique des délégués nationaux du groupe
AEN sur les déchets - Réunion de travail sur l'inci-
nération à haute température (O.C.D.E.)
Mol, Belgique, 6 - 8 Novembre 1979.
CEA - CONF 4975

TRAITEMENTS A HAUTE TEMPERATURE DES GAZ
PROVENANT D'UN INCINERATEUR DE DECHETS RADIOACTIFS

CHAPUIS A.M., CHEVALLIER G.

L'incinération des déchets radioactifs à haute température produit des effluents gazeux, eux-mêmes à haute température, qui peuvent être contaminés par des radioéléments, solides ou gazeux, et par des composés chimiques gazeux. Il est donc nécessaire : de choisir la technique d'incinération de manière à réduire ces contaminations, de traiter et filtrer les effluents gazeux pour diminuer la nocivité des rejets, de contrôler la contamination des effluents.

Incinération des produits organiques

De nombreux produits organiques, porteurs de la contamination peuvent être détruits par combustion. Ils sont sous forme solide : parties de matériels, tuyauteries, vêtements, emballages ou sous forme liquide : produits de nettoyage et de décontamination, solvants utilisés dans les procédés d'extraction ou de purification.

Trois conditions sont essentielles pour que l'oxydation soit réalisée de façon efficace :

- des turbulences pour rendre homogène le mélange gaz-oxygène,
- une température suffisante pour obtenir une vitesse de réaction correcte,
- un temps de contact effluent-chaueur permettant d'obtenir une réaction complète.

C'est la règle des trois T (Température, Temps, Turbulence).

La température nécessaire dépend essentiellement du composé organique, c'est la raison pour laquelle nous avons étudié la dégradation à haute température d'hydrocarbures et composés hydrogénés (1), de composés organosoufrés (2), organoazotés, organochlorés (3, 4, 5).

Ces études ont montré que la combustion complète de certains produits à faible PCI comme le tétrachlorure de carbone ou le tétrachloroéthylène nécessitent des temps de contact supérieurs à la seconde et des températures supérieures à 1050° C (4). Nous poursuivons donc actuellement l'étude de ces décompositions entre 1000 et 1400° C.

Nous nous intéressons également aux organophosphorés et plus particulièrement au TBP, fréquemment utilisé dans les procédés d'extraction du plutonium dont la dégradation thermique fournit, en plus de l'anhydride phosphorique, du butène, source de risques d'explosion.

.../..

Filtration des gaz

Les effluents gazeux issus du four d'incinération sont caractérisés par une température élevée et la présence de produits chimiques corrosifs, de noir de carbone, de particules solides, de radionucléides.

Compte tenu des règlements concernant les rejets d'effluents gazeux, une filtration est nécessaire. Le choix de l'installation est guidé par plusieurs soucis :

- ne pas augmenter trop considérablement le volume gazeux à filtrer pour limiter l'encombrement de l'installation,
- éviter les problèmes de corrosion qui peuvent se manifester aux points froids de l'installation et en particulier dans les échangeurs de chaleur,
- n'effectuer un éventuel lavage que sur des gaz débarrassés de leur contamination de manière à ne pas produire d'effluents liquides radioactifs dont la composition chimique est souvent incompatible avec les stations de traitement des effluents.

Ceci conduit à préférer une filtration à chaud pour laquelle nous avons expérimenté et mis en service plusieurs dispositifs (6) :

- chambre de post-combustion : le passage des gaz au travers d'une chambre garnie de grains de carbure de silicium a l'avantage d'augmenter le contact des gaz avec la chaleur, et de favoriser la combustion spontanée du noir de carbone. Ces chambres équipent les incinérateurs construits par la Société Carbonisation Entreprise et Céramique à Strasbourg et Grenoble en France, à Tokai-Mura et Oarai au Japon,
- filtre haute température : il s'agit d'un ensemble de bougies en métal déployé garnies intérieurement d'un dépôt de fibres d'amiante et fonctionnant entre 700° et 800° C. Il permet à la fois la combustion du noir de carbone et la pré-filtration des particules solides,
- filtre à moyenne température : la filtration précédente exige que le filtre soit maintenu à température élevée (> 700° C), ce qui n'est pas toujours réalisable. Nous avons donc étudié une autre possibilité qui consiste à utiliser un filtre fonctionnant à une température plus basse, de l'ordre de 400° C.

Le filtre est décolmaté périodiquement afin de lui redonner les caractéristiques initiales de fonctionnement. Le décolmatage est assuré par combustion forcée sur le filtre en portant ce dernier à haute température pendant une brève période. Ceci est réalisé par un chauffage local du matériau filtrant à l'aide de résistances électriques.

Le matériau filtrant doit être constitué de fibres fines et avoir une perte de charge initiale la plus faible possible. De plus il doit fonctionner en permanence à 400° C et subir un grand nombre de décolmatages à 600° C. On a retenu et expérimenté des papiers et nappes de fibres de silice et d'alumine.

Des ensembles filtrants prototypes ont été réalisés et expérimentés pour l'épuration des gaz de combustion des moteurs diesel (7).

L'expérience que nous avons acquise sur différentes installations et en particulier sur l'incinérateur de Grenoble nous a montré l'insuffisance des essais à basse température. Nous venons donc de réaliser un banc pour tester les ensembles de filtration et les média filtrants jusqu'à 800° C et nous avons commencé une série de contrôles qui portent sur des bougies filtrantes en carbure de silicium, en fibres de silico-alumineux, en fibres d'amiante, des papiers filtres en fibres minérales, des filtres Bekipor et Bekinox.

Parallèlement nous étudions le comportement thermique des composants de ces ensembles filtrants : carcasses métalliques, luts qui assurent l'étanchéité entre le média filtrant et la carcasse, joints.

Contrôle des effluents

Pour évaluer le facteur de décontamination de chaque élément et vérifier que l'installation est conforme aux normes de protection il est nécessaire de mesurer la contamination radioactive des effluents gazeux à chaque stade du procédé et en particulier dans les zones à haute température. A ce point de vue aucune des techniques actuelles de prélèvement ne paraît satisfaisante. Il faut en effet que le prélèvement soit représentatif, qu'il n'élimine pas les poussières de grandes dimensions et que les matières volatiles soient arrêtées. Il faut donc éviter les cannes réfrigérées et respecter les conditions d'isocinétisme. En nous appuyant sur les travaux que nous avons déjà réalisés à plus basse température (8, 9), nous sommes en train de mettre au point un système de prélèvement, fonctionnant par dilution des gaz chauds par un courant d'air froid, en circuit fermé et qui respecte les conditions précédentes.

* * * *

Le traitement des effluents gazeux à haute température met en jeu des techniques qui sont actuellement assez mal maîtrisées qu'il s'agisse des média filtrants, des structures permettant de les utiliser ou des moyens de contrôle.

- (1) CHEVALIER G., DUPOUX N.
Epuraton par traitement thermique des atmosphères chargées de polluants organiques volatils.
Rapport CEA-R-4732 - 1976.
- (2) BRAULT A., CAMELLE D., et coll.
Epuraton par traitement thermique en présence d'air des effluents gazeux pollués par des vapeurs de produits organiques soufrés.
Rapport CEA-R-4998 - 1979.
- (3) CHEVALIER G., DUPOUX N.
Décomposition thermique du chlorure de polyvinyle
Note CEA-N-1714 - Avril 1974.
- (4) CAMELLE D., BRAULT A., CHEVALIER G.
Epuraton par traitement thermique des atmosphères chargées de vapeurs de solvants chlorés.
Rapport CEA-R-4902 - 1978.

.../..

- (5) BRAULT A. CARMELLE D., CHEVALIER G., KERFANTO M.
Dégradation thermique des dérivés chlorés des hydrocarbures en absence d'oxygène. Cas des dérivés perchlorés.
Rapport CEA-R-4997 - 1979.
- (6) CHAPUIS A.M., CHEVALIER G. et coll.
Traitement des effluents gazeux à haute température -
Application à la destruction des déchets radioactifs par traitements thermiques.
Revue Générale Nucléaire 508-512, 6. Décembre 1976.
- (7) DUPOUX J., LETOURNEAU
Filtre régénérable pour l'épuration des gaz de combustion d'un moteur Diesel.
Congrès Mondial de la Filtration - Paris 14-17 mai 1974.
- (8) CHARUAU J.
Etude de la rétention d'aérosols dans les conduits de prélèvement - Application
à la mesure de la contamination radioactive.
Rapport CEA-R-4985 - 1979.
- (9) CHARUAU J.
Rétention des particules dans les conduits de prélèvement d'aérosols.
Rayonnements ionisants 1977, 4, 169-176.

