
PREMIER MINISTRE

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

10.2

ETUDE DE LA DIFFUSION
DE LA RADIOACTIVITE DE BLOCS
D'ENROBES BITUMINEUX
EN PROVENANCE D'UN ATELIER
D'ENROBAGE INDUSTRIEL

par

Jean RODIER, GUY LEFILLATRE

Centre de Production de Plutonium de Marcoule

Rapport CEA - R - 3743

1969

Ba

SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A

C.E.N. - SACLAY B.P. n° 2, 91 - GIF-sur-YVETTE - France

CEA-R-3743 - RODIER Jean, LEFILLATRE Guy
avec la collaboration technique
de RODI Lucienne, CUDEL Yvonne

ETUDE DE LA DIFFUSION DE LA RADIOACTIVITE DE
BLOCS D'ENROBES BITUMINEUX EN PROVENANCE D'UN
ATELIER D'ENROBAGE INDUSTRIEL

Sommaire. - La solidification par le bitume des boues de
coprécipitation chimique de la station de traitement des ef-
fluents du Centre de Marcoule, étudiée en laboratoire, a
conduit à la réalisation d'une installation industrielle d'enro-
bage. La qualité de l'enrobé obtenu a été contrôlée par le
test de lixiviation qui a été effectué en eau ordinaire et en
eau de mer sur des échantillons de laboratoire de 45 ml
et sur des blocs d'enrobé industriel de 150 litres.

./.

CEA-R-3743 - RODIER Jean, LEFILLATRE Guy
with the technical assistance of
RODI Lucienne, CUDEL Yvonne

STUDY OF RADIOACTIVITY DIFFUSION FOR BITUMEN-
COATED BLOCKS PRODUCED BY AN INDUSTRIAL COATING
PLANT

Summary. - The solidification by bitumen of chemical copreci-
pitation sludges from the Marcoule waste treatment station
has been studied in the laboratory and has led to the cons-
truction of an industrial coating plant. The quality of the coa-
ted material obtained has been controlled by the lixiviation
test carried out with ordinary water and with sea-water on
45 ml laboratory samples and on industrial coated blocks of
150 litres.

Tests on blocks of such a size have necessitated the

./.

L'expérimentation sur des blocs de telles dimensions a nécessité l'installation de 3 cuves spéciales. Deux, d'une capacité de 2 000 litres, contiennent de l'eau ordinaire et de l'eau de mer recyclées en permanence à une vitesse de 2,5 cm/h et renouvelées périodiquement. Dans la 3ème cuve d'une capacité de 11 000 litres, le bloc d'enrobé a été enfoui dans de la terre et aspergé d'eau ordinaire afin d'étudier la migration des radioéléments dans le sol.

Les résultats de ces essais confirment ceux obtenus au cours des tests de laboratoire.

1969

23 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

installation of three special tanks. Two, each of 2 000 litres capacity, contain ordinary and sea-water which was continuously recycled at a rate of 2.5 cm/hr and renewed periodically. In the third tank having a capacity of 11 000 litres, the coated block was buried in earth and sprinkled with ordinary water with a view to studying the migration of radioelements in soil.

The results of these tests confirm those obtained during the laboratory experiments.

1969

23 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

A partir de 1968, les rapports CEA sont classés selon les catégories qui figurent dans le plan de classification ci-dessous et peuvent être obtenus soit en collections complètes, soit en collections partielles d'après ces catégories.

Ceux de nos correspondants qui reçoivent systématiquement nos rapports à titre d'échange, et qui sont intéressés par cette diffusion sélective, sont priés de se reporter à la lettre circulaire CENS/DOC/67/4690 du 20 décembre 1967 que nous leur avons adressée, et qui précise les conditions de diffusion.

A cette occasion nous rappelons que les rapports CEA sont également vendus au numéro par la Direction de la Documentation Française, 31, quai Voltaire, Paris 7^e.

PLAN DE CLASSIFICATION

- | | |
|--|---|
| 1. APPLICATIONS INDUSTRIELLES DES ISOTOPES ET DES RAYONNEMENTS | 8. PHYSIQUE
8. 1 Accélérateurs
8. 2 Electricité, électronique, détection des rayonnements
8. 3 Physique des plasmas
8. 4 Physique des états condensés de la matière
8. 5 Physique corpusculaire à haute énergie
8. 6 Physique nucléaire
8. 7 Electronique quantique, lasers |
| 2. BIOLOGIE ET MEDECINE
2. 1 Biologie générale
2. 2 Indicateurs nucléaires en biologie
2. 3 Médecine du travail
2. 4 Radiobiologie et Radioagronomie
2. 5 Utilisation des techniques nucléaires en médecine | 9. PHYSIQUE THEORIQUE ET MATHÉMATIQUES |
| 3. CHIMIE
3. 1 Chimie générale
3. 2 Chimie analytique
3. 3 Procédés de séparation
3. 4 Radiochimie | 10. PROTECTION ET CONTRÔLE DES RAYONNEMENTS. TRAITEMENT DES EFFLUENTS
10. 1 Protection sanitaire
10. 2 Contrôle des rayonnements
10. 3 Traitement des effluents |
| 4. ETUDES DU DOMAINE DE L'ESPACE | 11. SÉPARATION DES ISOTOPES |
| 5. GEOPHYSIQUE, GEOLOGIE, MINÉRALOGIE ET MÉTÉOROLOGIE | 12. TECHNIQUES
12. 1 Mécanique des fluides - Techniques du vide
12. 2 Techniques des températures extrêmes
12. 3 Mécanique et outillage |
| 6. MÉTAUX, CÉRAMIQUES ET AUTRES MATÉRIAUX
6. 1 Fabrication, propriétés et structure des matériaux
6. 2 Effets des rayonnements sur les matériaux
6. 3 Corrosion | 13. UTILISATION ET DÉVELOPPEMENT DE L'ÉNERGIE ATOMIQUE
13. 1 Centres d'études nucléaires, laboratoires et usines
13. 2 Divers (documentation, administration, législation, etc...) |
| 7. NEUTRONIQUE, PHYSIQUE ET TECHNOLOGIE DES RÉACTEURS
7. 1 Neutronique et physique des réacteurs
7. 2 Refroidissement, protection, contrôle et sécurité
7. 3 Matériaux de structure et éléments classiques des réacteurs | 14. ETUDES ÉCONOMIQUES ET PROGRAMMES |

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ÉNERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII^e.

The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII^e.

- Rapport CEA-R-3743 -

Centre de Production de Plutonium de Marcoule
Service de Protection contre les Radiations
et d'Assainissement Radioactif

ETUDE DE LA DIFFUSION DE LA RADIOACTIVITÉ
DE BLOCS D'ENROBES BITUMINEUX
EN PROVENANCE D'UN ATELIER D'ENROBAGE INDUSTRIEL

par

Jean RODIER, Guy LEFILLATRE
avec la collaboration technique de
Lucienne RODI, Yvonne CUDEL

- Avril 1969 -

ETUDE DE LA DIFFUSION DE LA RADIOACTIVITE DE BLOCS D'ENROBES BITUMINEUX EN PROVENANCE D'UN ATELIER D'ENROBAGE INDUSTRIEL

Au Centre de Marcoule, les effluents aqueux sont traités par coprécipitation chimique à la Station de Traitement des Effluents. Les boues obtenues ont une teneur en eau élevée (50 à 85 %). Il a donc été tenté de les solidifier grâce à un liant, en l'occurrence du bitume, et de passer ainsi directement d'une suspension aqueuse à un solide dont la structure est homogène. L'étude entreprise a abouti à la mise au point d'une méthode d'enrobage des boues par le bitume fondée sur le procédé par effluence et à la construction d'un atelier d'enrobage. Cet atelier d'une capacité de 600 l/h est maintenant en exploitation depuis plus de 2 ans. Le procédé consiste à verser le bitume chaud dans les boues additionnées d'un agent tensio-actif ; l'émulsion instable réalisée est rompue instantanément et libère la presque totalité de l'eau de constitution des boues qui exsude du mastic formé. La faible quantité d'eau résiduelle est éliminée par évaporation lors du chauffage de l'enrobé avant sa mise en fûts.

La qualité de l'enrobé, sa tenue en milieu aqueux ont été contrôlées en laboratoire par le test de lixiviation d'abord lors des études de mises au point du procédé, puis sur des échantillons prélevés à la sortie de la chaîne d'enrobage industriel.

La solidification qui ne conduit pas à une étanchéité absolue dans le temps, nécessite une évaluation préalable des risques de dispersion en fonction du mode de stockage que celui-ci utilise : l'immersion en mer ou l'enfouissement dans le sol. Aussi avons-nous envisagé de contrôler les résultats de laboratoire en immergeant non plus des échantillons de faibles volumes (45 ml environ) mais des blocs d'enrobé de 150 l. environ préalablement retirés de leur conteneur, c'est-à-dire d'étudier les conditions exactes de la diffusion lorsque l'enveloppe externe de l'enrobé aura disparu après corrosion.

TEST DE LIXIVIATION.

Le but de ce test est d'évaluer la radioactivité libérée par l'enrobé après son immersion dans un milieu aqueux. Le principe de la méthode adoptée consiste à immerger dans de l'eau ordinaire ou de l'eau de mer des échantillons d'enrobé ayant une radioactivité connue, puis à contrôler l'évolution de l'activité du milieu aqueux en fonction du temps.

Les échantillons d'enrobés bitumineux se présentent sous la forme d'un cylindre dont les dimensions ont été rigoureusement respectées pour toutes les études de laboratoire.

Les milieux aqueux utilisés sont de l'eau ordinaire dont la minéralisation était inférieure à 200 mg/l avec un pH compris entre 7,5 et 7,8, et de l'eau de mer prélevée en Méditerranée.

Les prélèvements nécessaires à la mesure de la radioactivité sont effectués périodiquement après homogénéisation. L'eau échantillonnée est remplacée de façon que le volume initial reste constant.

Le test est également pratiqué avec de l'eau renouvelée ; dans ce cas l'eau est soutirée en totalité puis remplacée par un volume d'eau identique.

Les mesures effectuées sur les échantillons d'eau prélevée sont l'évaluation de l'activité globale, complétée pour les eaux renouvelées par une spectrométrie γ et un dosage radiochimique du strontium.

Les résultats sont exprimés en rapport de diffusion RD calculé à partir de l'activité diffusée globale et de l'activité de l'échantillon au moment du prélèvement pour l'eau renouvelée et l'activité initiale pour les eaux stagnantes.

$$RD(t) = \frac{a}{A}$$

a = radioactivité de l'eau au temps t (en μCi)

A = radioactivité initiale de l'échantillon ou au temps t (en μCi)

t = temps écoulé depuis le début du test (en jours).

Nous avons retenu ce mode d'expression des résultats car il présente l'avantage de donner sous une forme simple, une bonne idée de l'efficacité du procédé de solidification des résidus et permet en outre une évaluation commode des risques ultimes présentés pour les stockages. Les unités habituellement utilisées pour exprimer les résultats des études de diffusion font intervenir les notions de poids, de volume et de surface ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{jour}^{-1}$, cm/jour , etc...). Dans ces expressions, le terme poids peut être mal interprété, car il concerne davantage le matériau d'enrobage que le résidu enrobé. De plus il varie en fonction de la densité du produit. Les termes de volume et de surface introduits pour permettre la comparaison des résultats obtenus sur des enrobages de types différents peuvent entraîner des erreurs. En effet, il existe le plus souvent, une différence entre la surface réelle de contact avec l'eau et la surface géométrique d'un matériau. Pour certains matériaux (verre, bitume), cette différence, liée à la présence de bulles ou de criques, peut rester relativement faible ; pour d'autres, (céramiques, poudres...) elle peut être considérable et atteindre plusieurs ordres de grandeur.

En définitive il apparaît plus réaliste d'éliminer toutes ces notions. Cela est bien justifié si l'on remarque que dans l'estimation du risque présenté par un stockage réel de blocs de produits radioactifs solidifiés, il ne faut pas avoir l'ambition d'obtenir plus qu'un ordre de grandeur.

D'une façon générale et plus particulièrement dans le cas des enrobés par le bitume, le phénomène de diffusion ne semble pas être uniquement le résultat d'une dissolution superficielle. Il s'agit d'un processus complexe où interviennent à la fois une migration des radioéléments des couches profondes vers la surface placée au contact de l'eau et une diffusion de l'eau à travers la couche superficielle, puis à travers les couches profondes de l'enrobé.

ETUDES DE LABORATOIRE.

Le test de diffusion de la radioactivité a été effectué sur des boues type "moyenne activité" de la Station de Traitement des Effluents enrobées au laboratoire et sur un enrobé de même type de boue sortant de la chaîne d'enrobage de l'installation industrielle. Les échantillons se présentent sous forme de cylindres de 35 mm de diamètre et de 50 mm de hauteur, leur volume est de 48 cm^3 et leur surface de 74 cm^2 . Ils ont été immergés dans un flacon en polyéthylène de 1 litre contenant 900 ml d'eau ordinaire (en eau stagnante et en eau renouvelée) ou d'eau de mer (en eau stagnante).

1° Enrobé préparé en laboratoire.

Des boues type "moyenne activité" de la Station de Traitement des Effluents, ayant une teneur en eau de 54 % ont été enrobées en laboratoire avec du Mexphalte 40/50 à la dose de 45 parties pour 100 parties de boues sèches correspondant à une teneur en bitume dans l'enrobé de 31 %. Le relargage de l'eau de constitution des boues a été obtenu au moyen d'agents tensio-actifs : l'Héliopon et le Redicote utilisés aux doses de 1,6 parties de l'un et 0,6 partie de l'autre pour 100 parties de boues sèches.

L'analyse radiométrique de l'enrobé a donné les résultats suivants :

Activité $2\pi \beta\gamma$:		$\mu\text{Ci/g}$
	1,7	
$^{95}\text{ZrNb}$:	1,54	"
$^{144}\text{CePr}$:	$5,6 \cdot 10^{-1}$	"
$^{103-106}\text{Ru}$:	$2,2 \cdot 10^{-2}$	"
^{137}Cs :	$9 \cdot 10^{-4}$	"
^{90}Sr :	$2,4 \cdot 10^{-2}$	"
^{89}Sr :	$3,5 \cdot 10^{-2}$	"

Les résultats du test de lixiviation poursuivis pendant 2 036 jours dans l'eau de mer en eau stagnante, dans l'eau ordinaire en eau renouvelée et en eau stagnante sont rassemblés sur les courbes n° 1.

Il apparaît d'après ces courbes qu'au bout de 2 036 jours, la radioactivité retrouvée en eau ordinaire stagnante représente $7,9 \cdot 10^{-5}$ de la radioactivité de l'enrobé immergé et $2,10^{-5}$ en eau de mer. En totalisant la radioactivité des eaux renouvelées, il est constaté

que $1,4 \cdot 10^{-4}$ de l'activité initiale a diffusé ; elle est constituée par du $^{106}\text{Ru-Rh}$ - ^{137}Cs et $^{95}\text{Zr-Nb}$. Le rapport de diffusion moyen par jour est de $6,10^{-7}$. Aucun phénomène de gonflement des éprouvettes après cette immersion prolongée dans l'eau ne s'est manifesté.

2° Enrobé prélevé à la Station d'enrobage industriel.

Un enrobé de boues type "moyenne activité" a été prélevé à la sortie de la machine de déshydratation. Ses caractéristiques sont les suivantes :

Teneur en eau	:	0,4 %
Teneur en Mexphalte 40/50	:	50,8 %
Densité à 20 °C	:	1,44

La radioactivité a été évaluée au moyen d'un compteur 2π , l'analyse radiométrique effectuée par spectrométrie γ a été complétée par le dosage du strontium. Les résultats ont été les suivants :

Activité $2\pi \beta\gamma$:	3,6	$\mu\text{Ci/g}$
$^{106}\text{RuRh}$: 1,70	"
$^{95}\text{ZrNb}$: 1	"
$^{144}\text{CePr}$: 0,7	"
^{137}Cs	: $2,7 \cdot 10^{-3}$	"
^{90}Sr	: $3,7 \cdot 10^{-2}$	"
^{89}Sr	: $5,6 \cdot 10^{-2}$	"

Les résultats du test de lixiviation poursuivi pendant 737 jours en eau de mer stagnante et en eau ordinaire soit renouvelée, soit stagnante, sont rassemblés sur les courbes n° 2.

Il apparaît d'après ces courbes qu'au bout de 737 jours la radioactivité retrouvée en eau ordinaire stagnante représente $1,10^{-4}$ de la radioactivité de l'enrobé immergé. Elle est moins élevée dans l'eau de mer soit $1,1 \cdot 10^{-5}$. En totalisant la radioactivité des eaux renouvelées, il est constaté que $4,8 \cdot 10^{-4}$ de la radioactivité initiale a diffusé ; elle est constituée par du $^{106}\text{RuRh}$ et ^{137}Cs . Le rapport de diffusion moyen par jour est de $1,5 \cdot 10^{-6}$.

ETUDE DE LA DIFFUSION DE LA RADIOACTIVITE DE FUTS D'ENROBE DE BOUES TYPE "MOYENNE ACTIVITE".

Pour obtenir facilement des blocs d'enrobé, des fûts vides ont été tapissés intérieurement de papier anti-adhésif. L'enrobé a été prélevé dans ces conteneurs à la sortie de la chaîne d'enrobage de boues type "moyenne activité" à base de carbonate de calcium. Le démoulage après séparation du papier, a permis d'obtenir des enrobés monolithiques.

Les caractéristiques physiques de ces enrobés sont les suivantes :

- Teneur en Mexphalte 40/50	:	39,5 %
- Densité à 20 °C	:	1,60
- Point de ramollissement	:	163 °C.

La radioactivité a été évaluée au moyen d'un compteur 2π , l'analyse radiométrique effectuée par spectrométrie γ a été complétée par le dosage du ^{90}Sr et ^{89}Sr . Les résultats au moment du démarrage des essais sont les suivants :

Activité 2π	:	3,2	$\mu\text{Ci/g}$ d'enrobé
Spectrométrie γ	$^{144}\text{Ce Pr}$: 2,1	"
	$^{106}\text{Ru Rh}$: 0,32	"
	$^{103}\text{Ru Rh}$: 0,04	"
	$^{95}\text{Zr Nb}$: 0,5	"
	^{137}Cs	: 0,14	"
	^{90}Sr	: 0,14	"
	^{89}Sr	: 0,076	"

Trois cuves ont été spécialement aménagées pour recevoir les enrobés. Deux sont destinées à l'étude de la diffusion de la radioactivité dans l'eau ordinaire et dans l'eau de mer. Pour la troisième, l'enrobé a été enfoui dans de la terre et aspergé d'eau ordinaire. En fin d'expérimentation, l'analyse des échantillons de terre obtenue par carottage permettra de déterminer la fixation des radio-éléments dans le sol.

1° Etude de la diffusion de la radioactivité dans l'eau ordinaire.

La cuve utilisée, d'une capacité de 2 500 litres environ, est en acier inoxydable et fermée par un couvercle. Elle est équipée d'un plancher intermédiaire en caillebotis dont le diamètre des trous est de 4 mm, sur lequel est déposé le bloc d'enrobé. L'eau est maintenue à 25 °C par un thermoplongeur solidaire du couvercle, d'une puissance de 20 kW avec ther-

mostat de régulation, réglable de 0 à 25 °C. 2 100 litres d'eau sont introduits, ce volume est ajusté grâce à un trop plein. La vidange est assurée par l'intermédiaire d'une pompe d'un débit de 5,8 m³/h. Pendant l'expérimentation, l'eau est recyclée en permanence à une vitesse de 2,5 cm/h au moyen d'une pompe doseuse à membrane. Le fonctionnement continu de l'installation est contrôlé par un compteur horaire. Le bloc d'enrobé d'un poids de 227,5 kg a un volume de 142,2 dm³ (Ø 59 cm, H = 52,7 cm) et une surface de 1,51 m².

L'eau ordinaire a été renouvelée périodiquement :

- toutes les semaines pendant deux semaines,
- tous les mois pendant 8 mois puis tous les 3 mois.

A chaque renouvellement de l'eau, un prélèvement est destiné à l'évaluation de l'activité 2π, à l'analyse par spectrométrie γ et au dosage radiochimique du ⁹⁰Sr et ⁸⁹Sr. L'activité 2π de l'enrobé a été déterminée parallèlement.

Les résultats des analyses sont rassemblés dans le tableau n° 1 et sur la courbe n° 3.

En totalisant la radioactivité retrouvée dans les eaux de diffusion, au bout de 462 jours, il apparaît que 1,3.10⁻⁵ de l'activité initiale a diffusé. Elle est constituée par du :

¹⁰⁶ RuRh	:	66,6 %
¹³⁷ Cs	:	14,4 %
⁹⁰ Sr	:	13,9 %
⁸⁹ Sr	:	7 %

Il semblerait que le pourcentage de ruthénium retrouvé dans l'eau aurait tendance à diminuer alors que celui du césium 137 augmenterait. La diffusion du strontium 90 semble plus irrégulière.

Le rapport de diffusion moyen par jour est de 5,5.10⁻⁸.

2° Etude de la diffusion de la radioactivité dans l'eau de mer.

La cuve utilisée d'une capacité de 2 500 l, environ (Ø 1 200 mm - H 2 400 mm), est en polypropylène d'une épaisseur de 10 mm. Toutes les conduites d'alimentation et de vidange sont également en polypropylène. Fermée par un couvercle en polypropylène, elle est équipée d'un plancher intermédiaire en caillebotis (Ø des trous 4 mm) sur lequel est déposé l'enrobé. Le bloc d'enrobé d'un poids de 238 kg, a un volume de 148,7 dm³ et une surface de 1,55 m². Il est immergé dans 2 100 litres d'eau de mer qui est recyclée en permanence au moyen d'une pompe doseuse à la vitesse de 2,5 cm/h. Etant donné la faible radioactivité

TABLEAU n° 1

Temps en jours entre chaque vidange	Activité 2π de l'enrobé en mCi	Activité 2π diffusée en µCi	Rapport de diffusion R.D.	Spectrométrie γ							
				¹⁰⁶ Ru Rh en µCi	¹³⁷ Cs en µCi	⁹⁵ Zr Nb en µCi	⁴⁰ K en pCi	¹²⁵ Sb en µCi	⁹⁰ Sr en µCi	⁸⁹ Sr en µCi	
7	735	0,5	6,8.10 ⁻⁷	Prob.	Prob.	Prob.					
7	683	0,16	2,3.10 ⁻⁷	Prob.	4.10 ⁻²	Prob.				2,95.10 ⁻²	1,9.10 ⁻²
33	637	0,82	1,3.10 ⁻⁶	3,9.10 ⁻¹	2,3.10 ⁻²		1	Prob.		1,8.10 ⁻²	7,8.10 ⁻³
31	569	1,05	1,8.10 ⁻⁶	7,4.10 ⁻²	5,9.10 ⁻²					3,4.10 ⁻¹	1,7.10 ⁻¹
32	469	1,27	2,7.10 ⁻⁶	4.10 ⁻¹						6,5.10 ⁻²	1,8.10 ⁻²
29	445	0,82	1,8.10 ⁻⁶	3,2.10 ⁻¹	5,3.10 ⁻²					4,4.10 ⁻²	2,8.10 ⁻²
31	432	0,73	1,7.10 ⁻⁶	3,6.10 ⁻¹	6,6.10 ⁻²					9,9.10 ⁻³	2,8.10 ⁻²
31	370	0,59	1,6.10 ⁻⁶	2,3.10 ⁻¹	3.10 ⁻²					5,15.10 ⁻²	2,3.10 ⁻²
36	342	0,18	5,3.10 ⁻⁷	9,3.10 ⁻²	2,55.10 ⁻²					9.10 ⁻³	1,26.10 ⁻³
31	342	0,28	8,2.10 ⁻⁷	1,1.10 ⁻¹	3,33.10 ⁻²					2,04.10 ⁻²	1,36.10 ⁻²
101	296	1,09	3,6.10 ⁻⁶	5,29.10 ⁻¹	1,36.10 ⁻¹					1,24.10 ⁻¹	6,3.10 ⁻²
92	250	2,18	8,7.10 ⁻⁶	7,35.10 ⁻¹	2,5.10 ⁻¹					3,3.10 ⁻²	1,26.10 ⁻¹

retrouvée dans l'eau de mer et les difficultés que présente le dosage de si faibles quantités de radio-éléments dans un milieu fortement minéralisé, l'eau de mer n'a été renouvelée que tous les mois pendant 5 mois, puis tous les 3 mois.

L'analyse des échantillons prélevés avant chaque vidange a été effectuée par spectrométrie γ . Les résultats des dosages sont rassemblés dans le tableau n° 2. Le potassium 40 présent naturellement dans l'eau de mer, le strontium 90 dont le dosage est en cours, n'ont pas été pris en compte dans ces résultats.

En totalisant la radioactivité retrouvée dans les eaux de diffusion, il apparaît qu'au bout de 460 jours $1,2 \cdot 10^{-6}$ de l'activité initiale a diffusé.

TABLEAU n° 2

Temps en jours entre chaque vidange	Activité 2 π de l'enrobé en mCi	Spectrométrie γ			
		¹⁰⁶ Ru Rh en μ Ci	¹²⁵ Sb en μ Ci	¹³⁷ Cs en μ Ci	⁹⁵ Zr Nb en μ Ci
31	666	$8,2 \cdot 10^{-2}$	$6,9 \cdot 10^{-2}$	$4,6 \cdot 10^{-2}$	-
31	595	$3,4 \cdot 10^{-1}$	-	$6,7 \cdot 10^{-2}$	-
48	490	Prob.	-	$3 \cdot 10^{-2}$	$1,4 \cdot 10^{-2}$
31	452	-	-	$1,3 \cdot 10^{-2}$	-
31	380	-	-	$8,9 \cdot 10^{-3}$	-
90	357	-	-	$1,8 \cdot 10^{-2}$	-
96	309	$1,05 \cdot 10^{-2}$	-	$1,89 \cdot 10^{-2}$	-
99	262	$6,9 \cdot 10^{-2}$	-	$7,56 \cdot 10^{-2}$	-

3° Etude de la diffusion de la radioactivité dans l'eau ordinaire d'un bloc d'enrobé enfoui dans la terre.

La cuve utilisée d'une capacité de 11 000 litres, est en acier inoxydable. Elle est équipée d'un plancher en inox percé de trous de 1 mm de diamètre, recouvert d'une toile de nylon. Un lit filtrant composé de gravillons calibrés 50/100 et 15/25 a été ensuite recouvert par 8 m^3 de terre tamisée. Elle a été prélevée sur le Centre de Marcoule dans une couche géologique constituée par des argiles sableuses surmontant les marnes bleues plaisanciennes. C'est dans cette couche que sont construites la plupart des fosses destinées au stockage provisoire.

Les caractéristiques de cette terre sont les suivantes :

Granulométrie :	sable grossier (ϕ supérieur à 50μ)	53 %
	sable fin ($50 \mu > \phi > 20 \mu$)	18 %
	limon ($20 \mu > \phi > 5 \mu$)	9 %
	argile ($\phi < 5 \mu$)	20 %
	CO ₃ (en mg de CO ₃ Ca) (par gramme de matière sèche)	183 mg
	Carbone organique (par gramme de matière sèche)	3 mg.

La terre a été tassée sur une hauteur de 1,66 m. Le bloc d'enrobé mis en place a un poids de 230,5 kg, un volume de 144 dm^3 et une surface de $1,51 \text{ m}^2$. Il a été entouré et recouvert de terre sur une hauteur de 30 cm. Un espace vide de 24 cm a été réservé entre la surface de la terre et le couvercle. Après avoir saturé la terre d'eau ordinaire, 4 400 litres d'eau ont été introduits progressivement. L'eau recueillie après filtration à travers la terre est recyclée et aspergée en permanence en surface.

Au bout de 537 jours, la radioactivité retrouvée dans l'eau est négligeable. Elle est de $1,7 \cdot 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$ et n'a pas augmenté depuis le début des essais. L'étude étant poursuivie, l'analyse de la terre n'a pas encore été effectuée.

CONCLUSIONS.

Le test de diffusion de la radioactivité a été effectué en eau ordinaire et en eau de mer sur des échantillons de laboratoire de 45 ml environ et des blocs d'enrobé de 150 litres environ.

Les résultats des essais en eau renouvelée montrent que les rapports de diffusion les plus faibles ont été obtenus avec les blocs d'enrobé de grand volume. Au bout du même temps, soit 460 jours, et en cumulant les activités des eaux renouvelées, il apparaît que $7,8 \cdot 10^{-5}$ et $2 \cdot 10^{-4}$ de l'activité initiale a diffusé au cours des tests de laboratoire et $1,3 \cdot 10^{-5}$ pour les blocs d'enrobé de 150 litres. Ce résultat favorable peut s'expliquer par le fait qu'en augmentant les dimensions de l'échantillon, le rapport de la surface au volume a diminué d'un facteur 15.

En eau stagnante, la diffusion de la radioactivité est moins élevée dans l'eau de mer ($2 \cdot 10^{-5}$ - $1,1 \cdot 10^{-5}$) que dans l'eau ordinaire ($7,9 \cdot 10^{-5}$ - $1 \cdot 10^{-4}$) au cours des tests de laboratoire. Il semble en être de même pour l'eau renouvelée sans qu'il soit cependant possible de l'affirmer puisque l'activité du ^{90}Sr n'a pu être prise en compte. Il est remarqué également que la diffusion de la radioactivité au cours du temps, est plus élevée en eau renouvelée ($1 \cdot 10^{-4}$ - $4,8 \cdot 10^{-4}$) qu'en eau stagnante ($7,9 \cdot 10^{-5}$ - $1 \cdot 10^{-4}$).

Le test de diffusion en eau renouvelée met en évidence le fait que la diffusion de la radioactivité n'est pas un phénomène régulier et constant. En effet, les rapports de diffusion calculés par jour sont très variables d'une eau renouvelée à une autre pour un même échantillon.

L'essai de percolation par de l'eau ordinaire d'un bloc d'enrobé enfoui dans de la terre montre que l'activité retrouvée dans l'eau est très faible et constante au bout de 537 jours d'expérimentation ($1,7 \cdot 10^{-8}$ $\mu\text{Ci/ml}$).

BIBLIOGRAPHIE.

J. RODIER, G. LEFILLATRE, J. SCHEIDHAUER

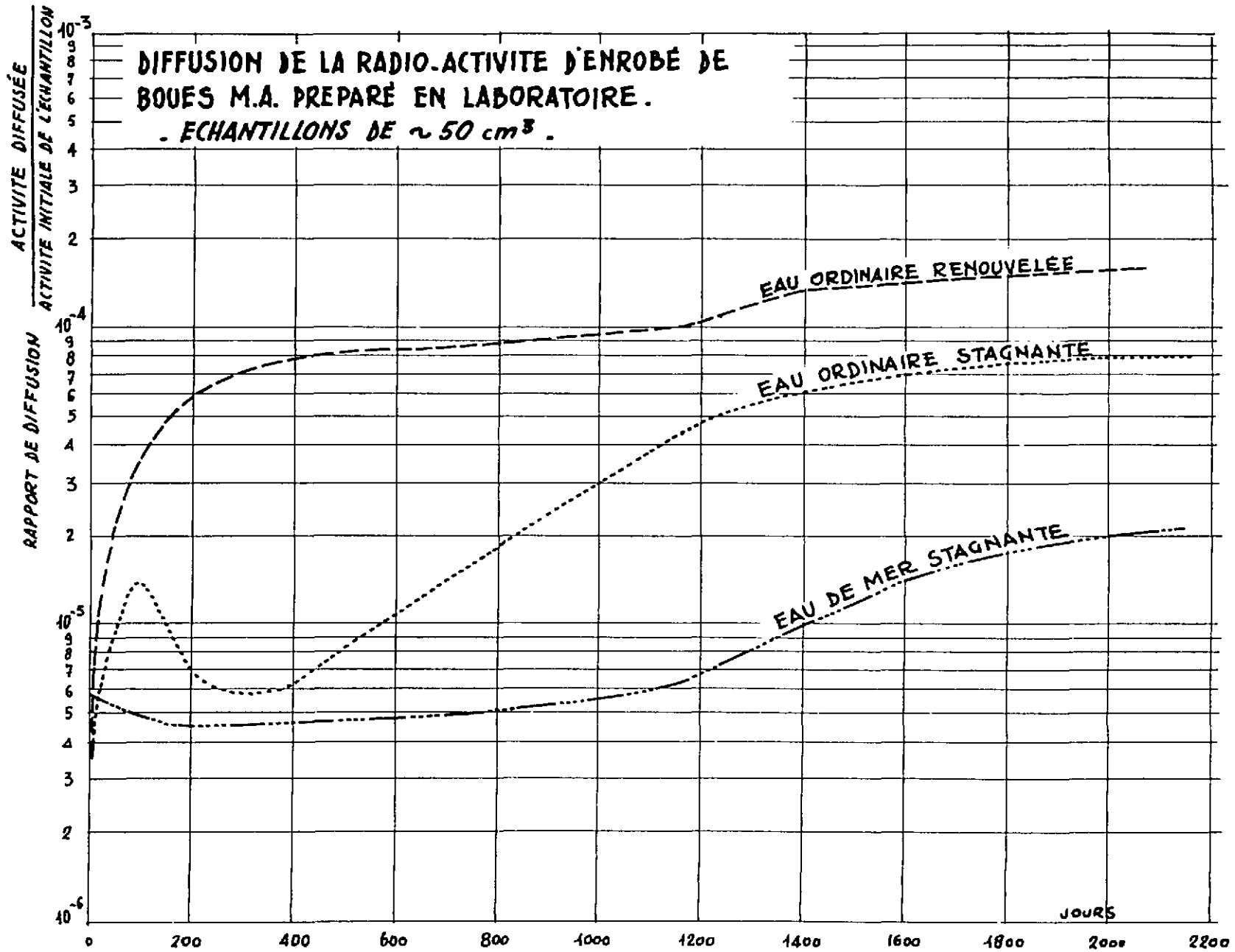
Enrobage par le bitume des boues radioactives de la station de traitement
des effluents du Centre de Marcoule.

Rapport C.E.A. n° 2331.

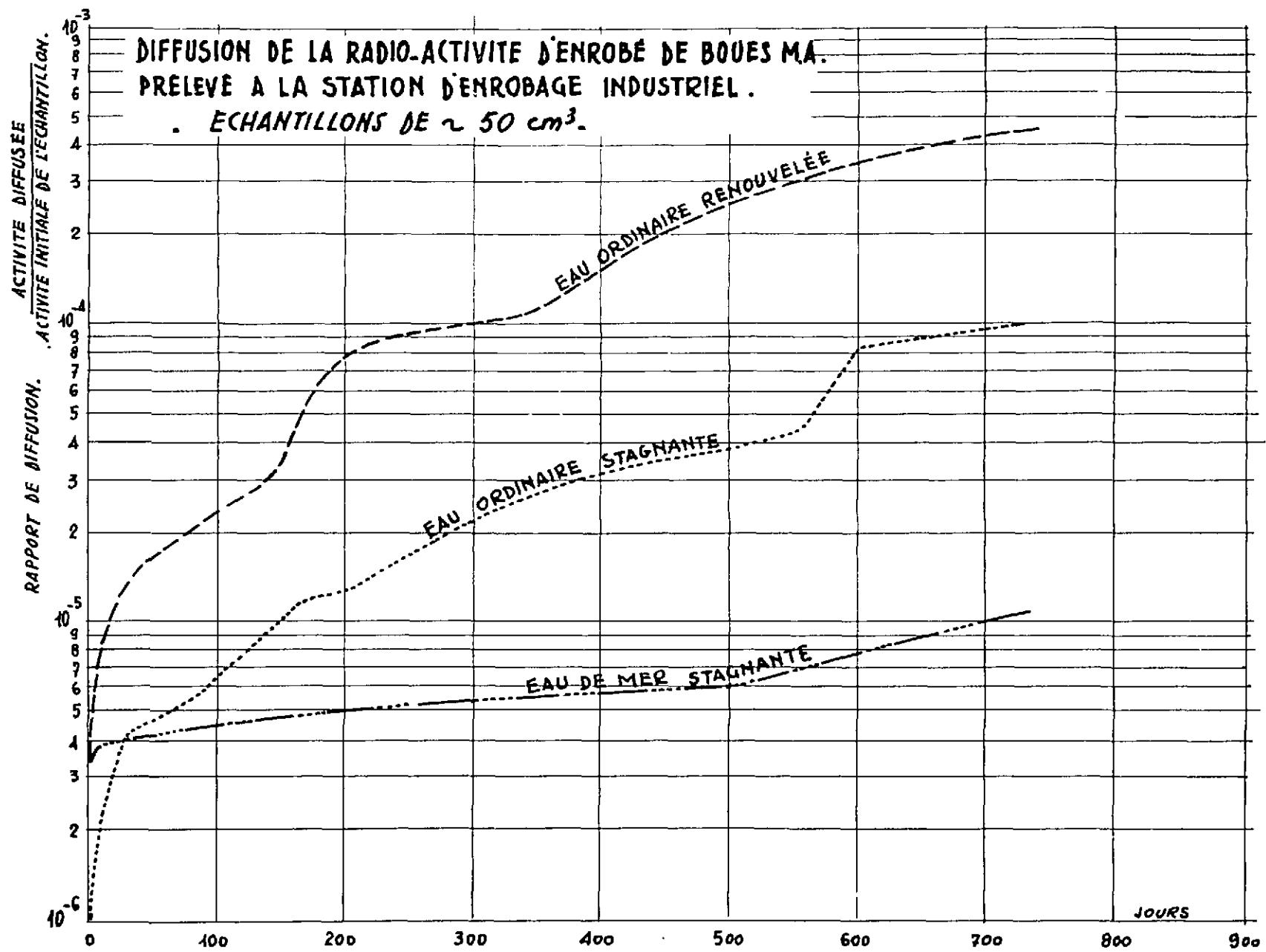
G. LEFILLATRE, N. FERNANDEZ

Insolubilisation des boues chimiques de coprécipitation par le bitume,
Installation du Centre de Production de Plutonium de Marcoule.

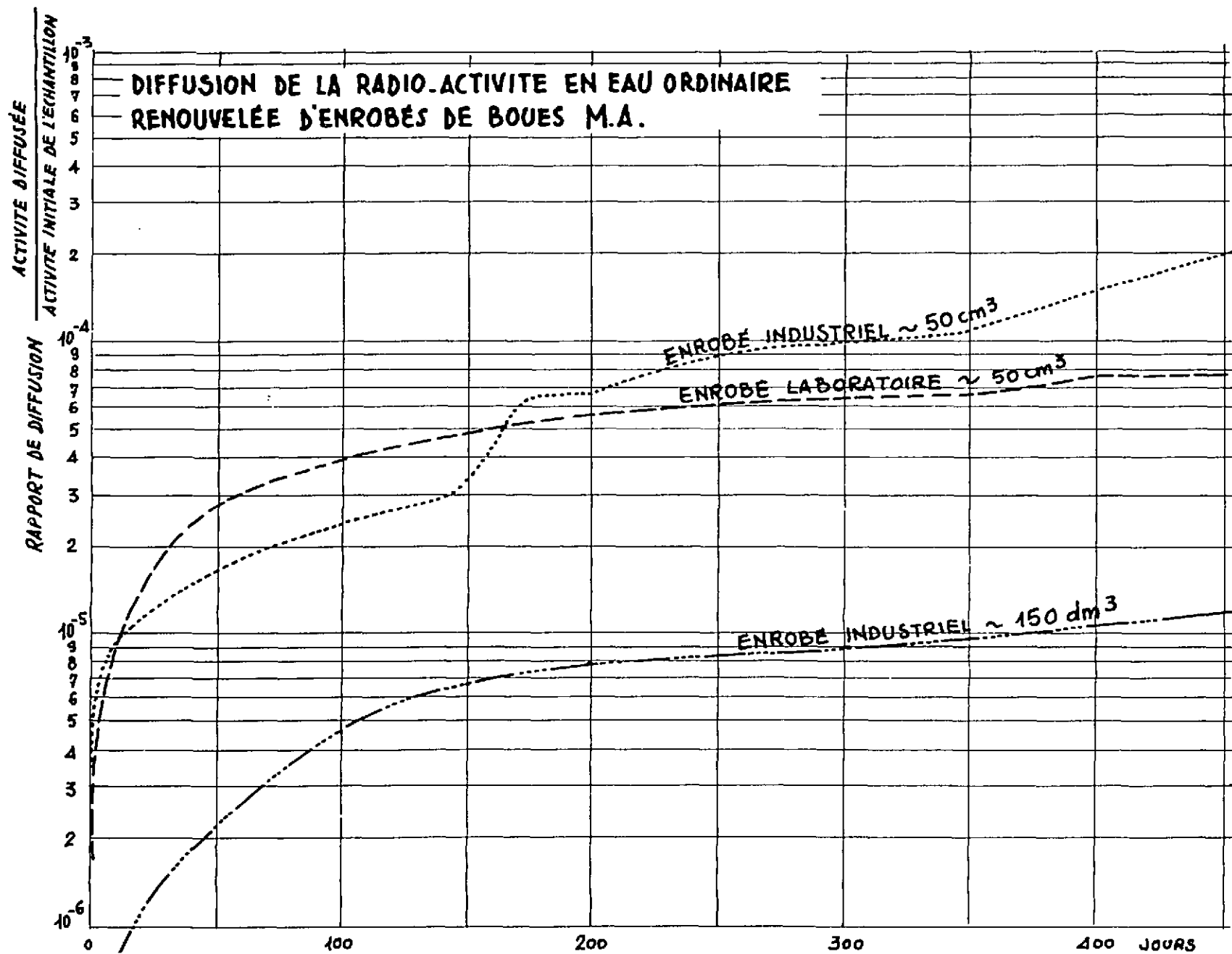
Technical Reports series n° 82, A.I.E.A., 1968.



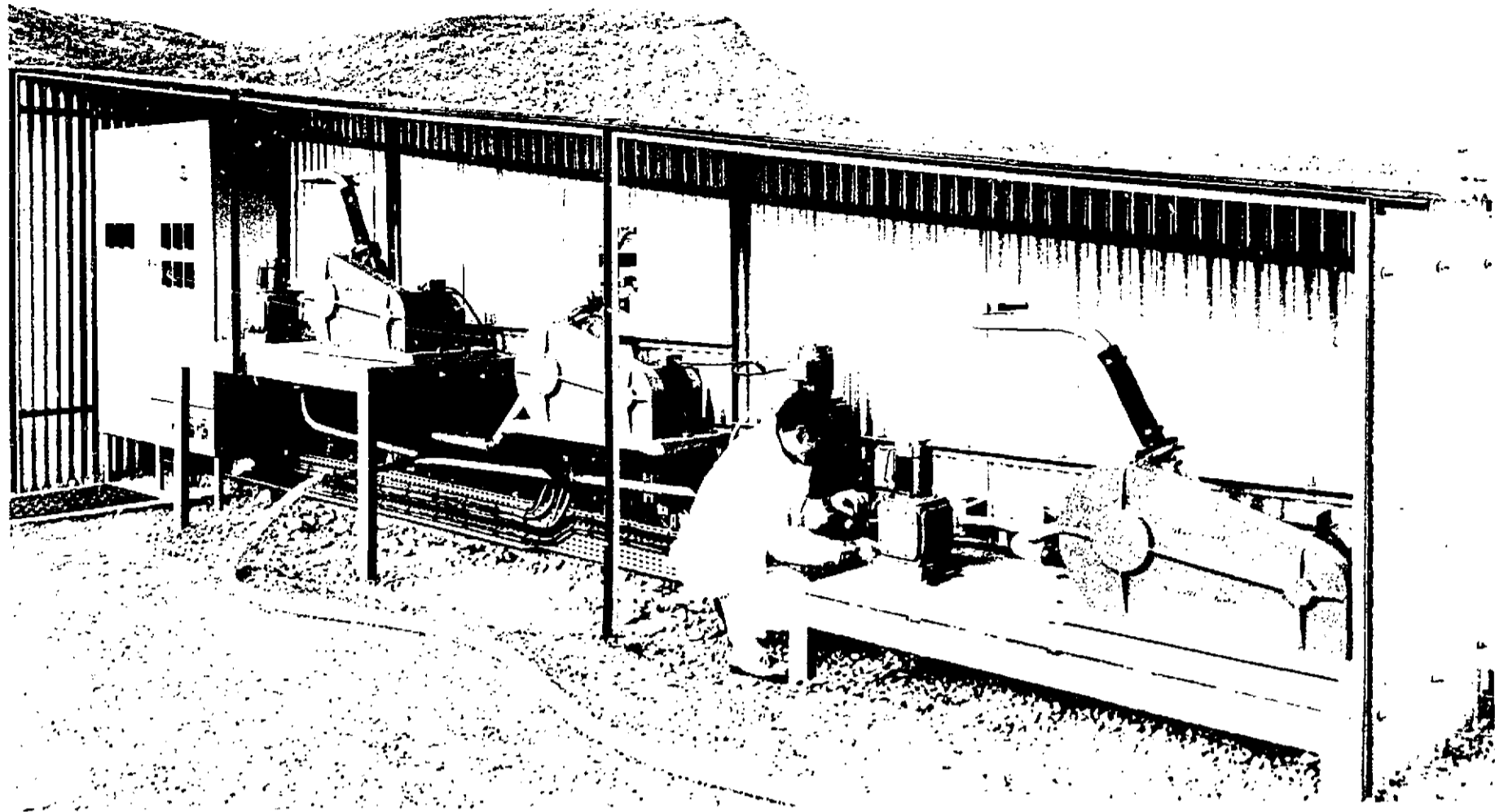
COURBE N° 1 - Diffusion de la radioactivité d'enrobé de boues M. A préparé en laboratoire.
Echantillons de $\sim 50 \text{ cm}^3$.



COURBES N° 2 - Diffusion de la radioactivité d'enrobé de boues M.A. prélevé à la Station d'enrobage industriel.
Echantillons de $\sim 50 \text{ cm}^3$.



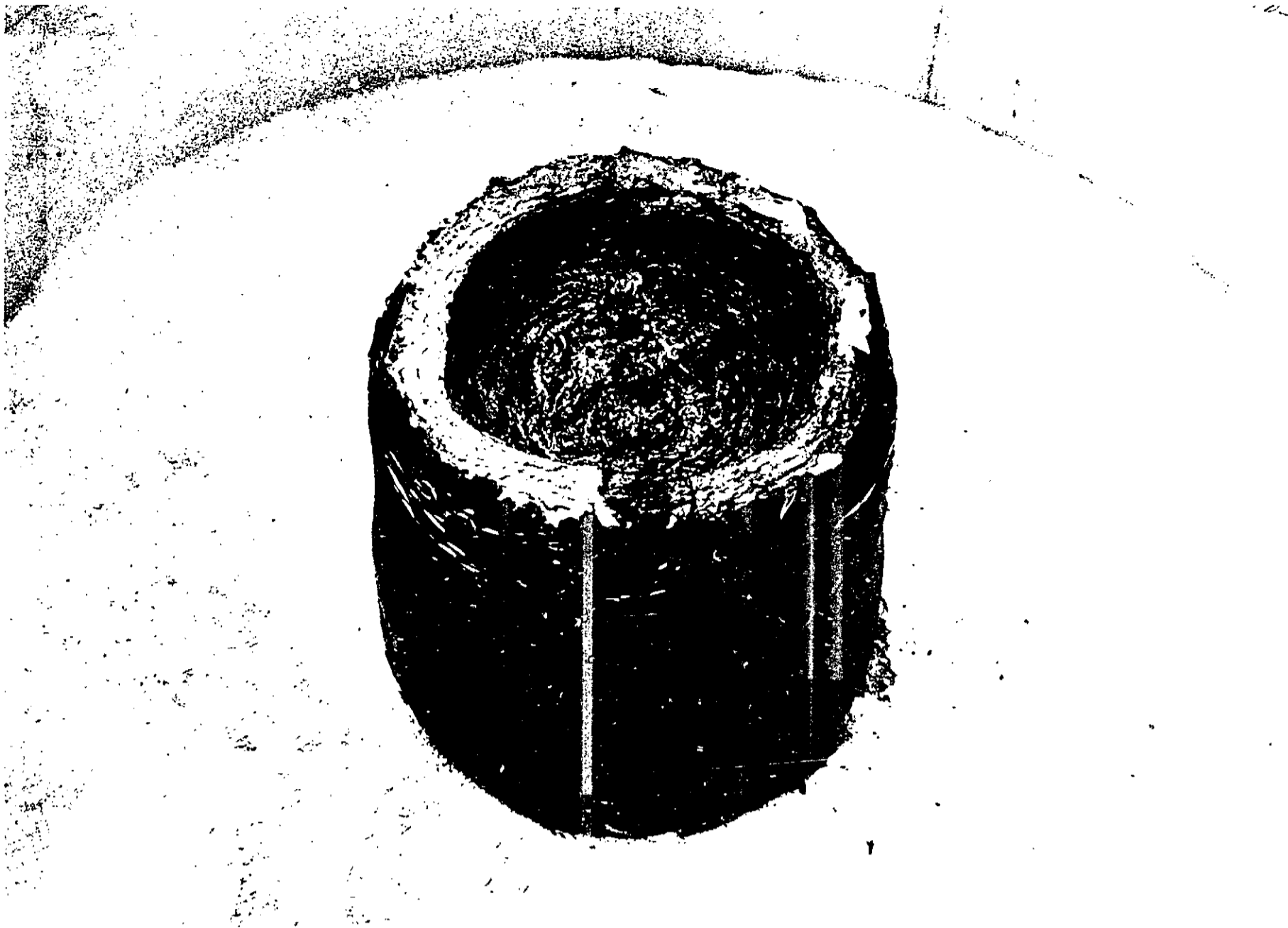
COURBES N° 3 - Diffusion de la radioactivité en eau ordinaire renouvelée d'enrobés de boues M.A.



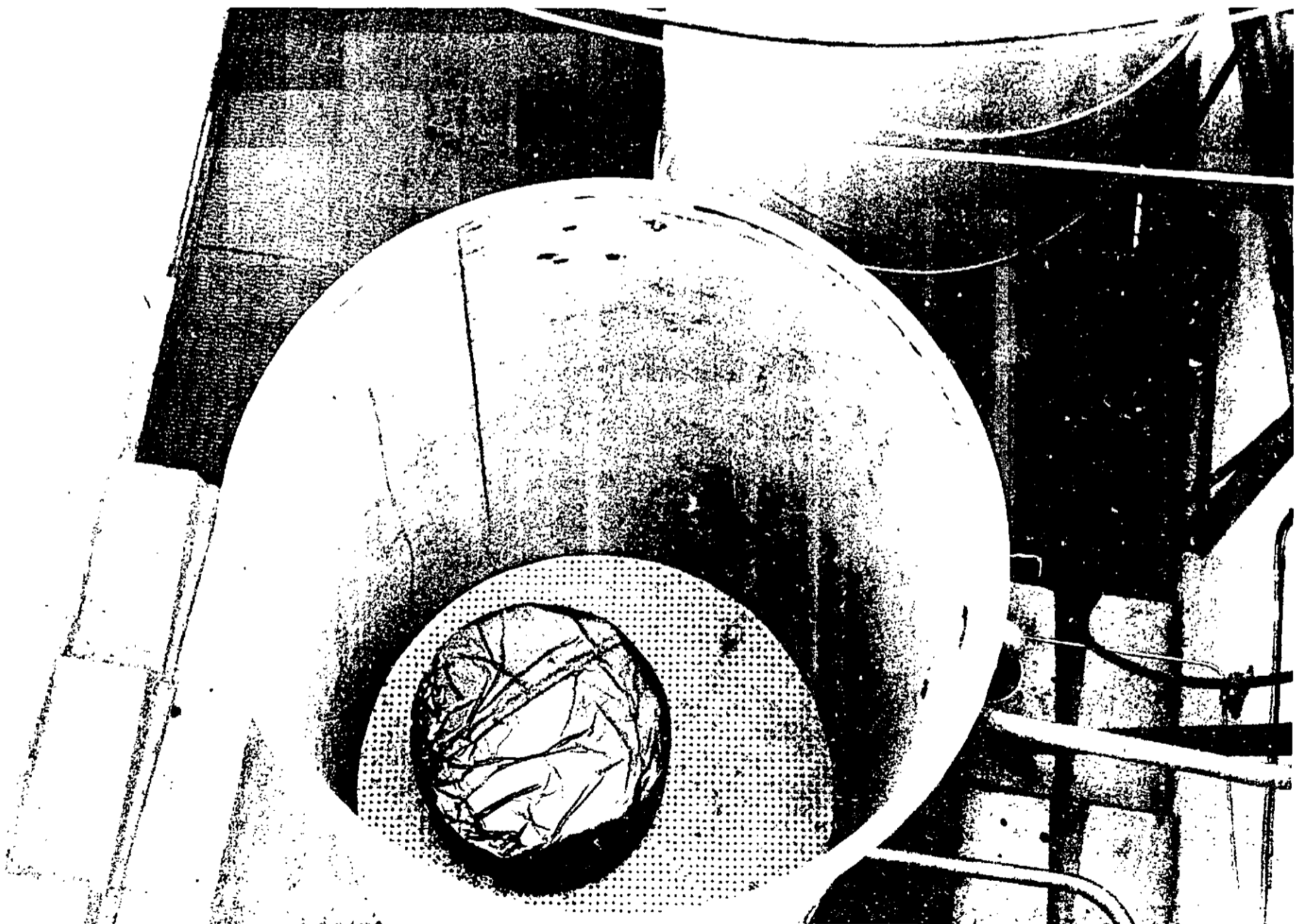
Pompes de recyclage et de vidange.



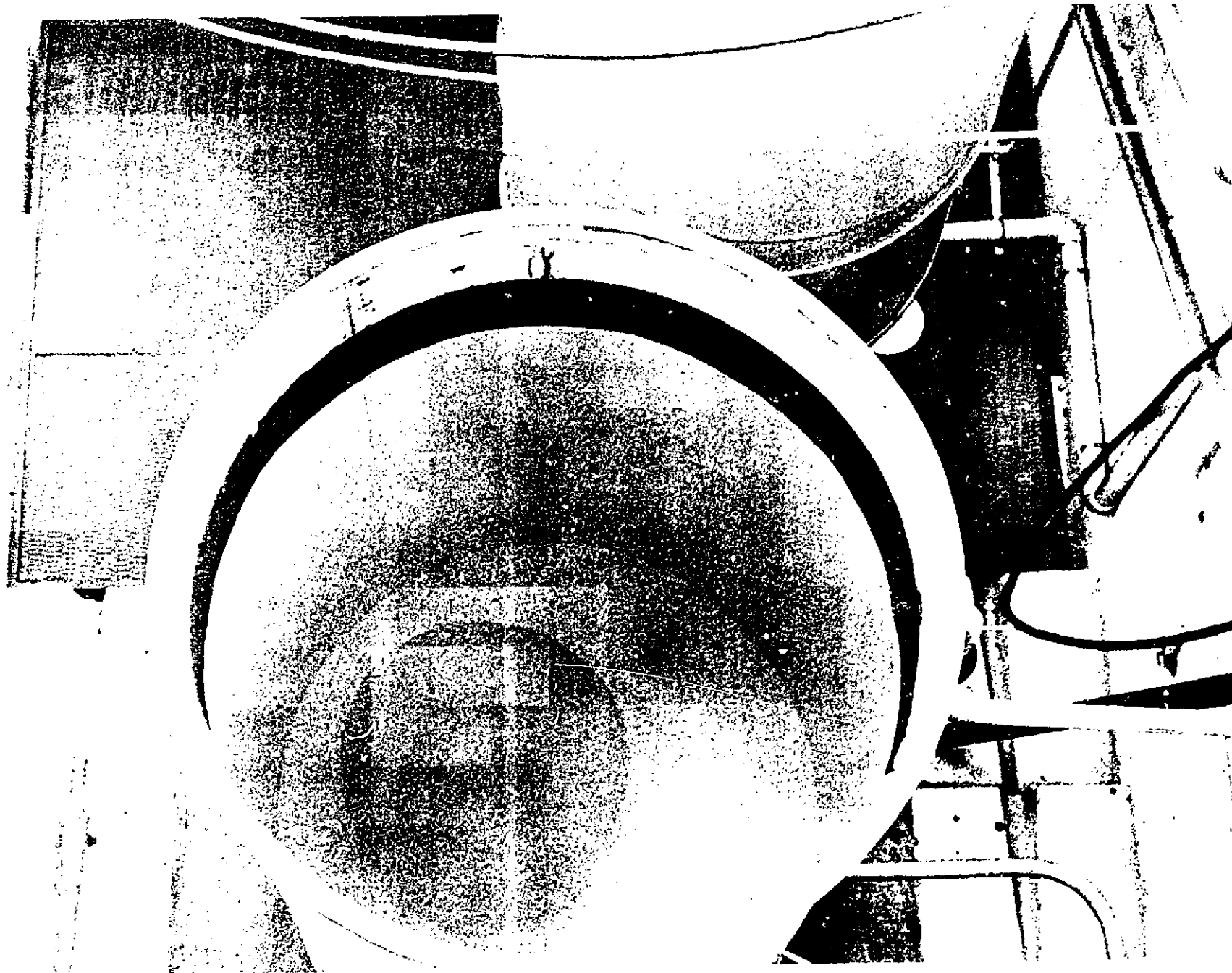
Vues extérieures des cuves



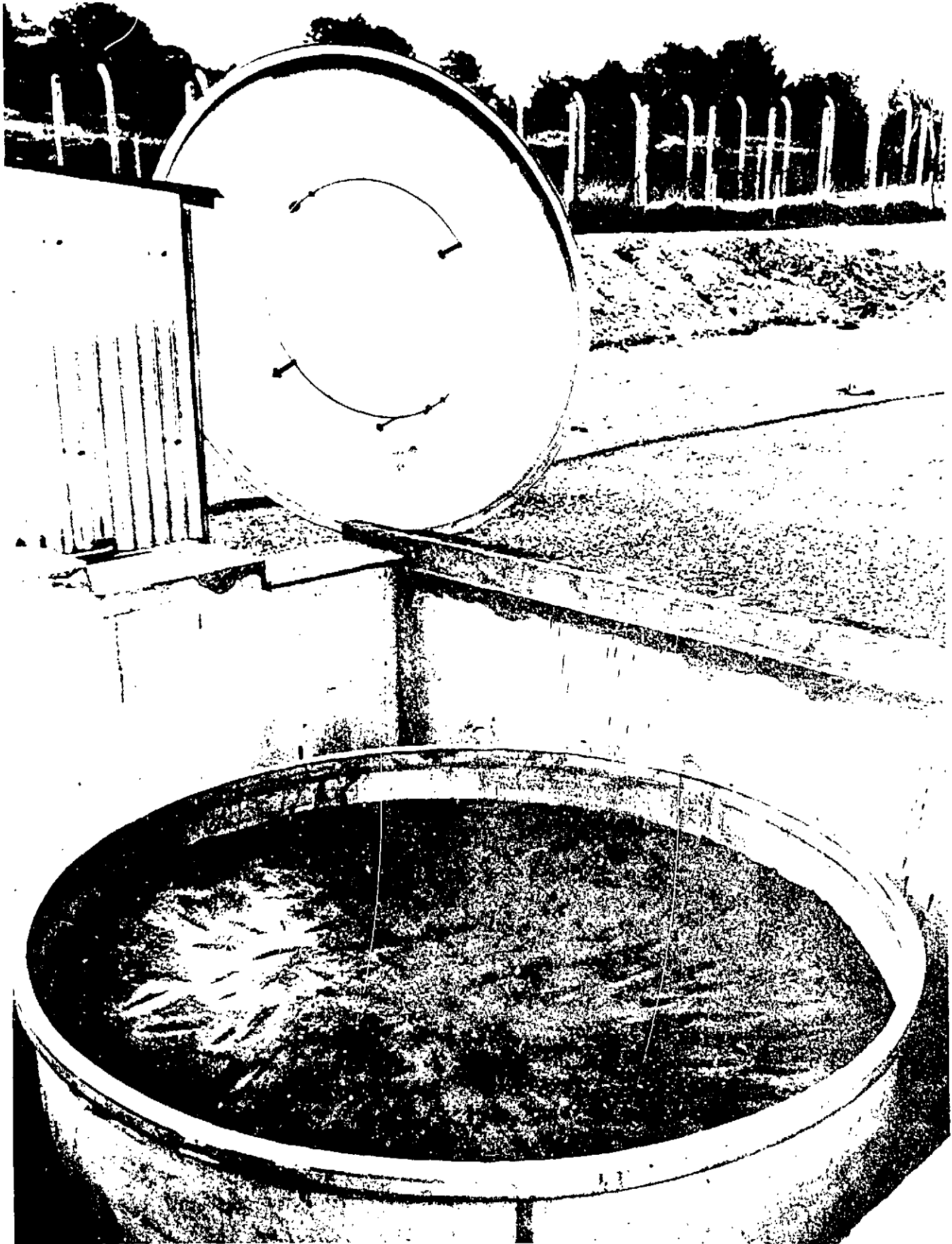
Enrobé retiré de son conteneur.



Enrobé mis en place avant immersion dans
l'eau de mer.



Enrobé immergé dans l'eau de mer.



Cuve d'essai de la diffusion dans le sol.

FIN