

IRID – Mitsubishi Research Institute

Essais pilote laboratoire de faisabilité d'implantation d'une barrière perméable réactive de séquestration du strontium et du césium sur le site de Fukushima Daiichi (Japon)

**AREVA NC – JAPAN – ATOX – ANADEC
SITA REMEDIATION**

INTERSOL, 17 mars 2016

Boris DEVIC-BASSAGET, Directeur Technique Sita Remediation

SUEZ environnement

Recyclage et valorisation des déchets France

Remediation sites et sols pollués

prêts pour la révolution de la ressource



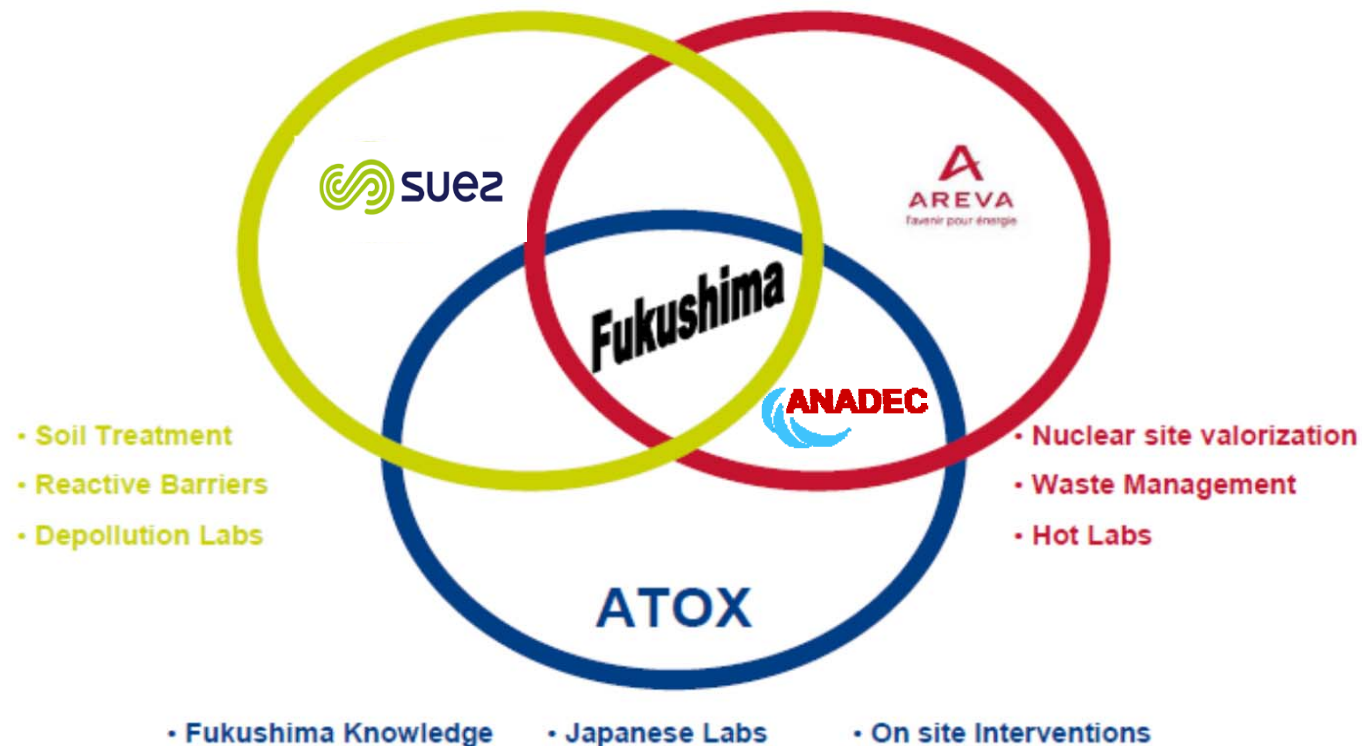
Sommaire

- ❑ Acteurs, Rappel du contexte
- ❑ Impacts sur eaux souterraines
- ❑ Stratégies mises en œuvre
- ❑ Etude de faisabilité de séquestration in situ du Strontium et du Césium en milieu salin
- ❑ Essais pilote non actifs (Suez)
- ❑ Essais pilote actifs (AREVA)
- ❑ Essais de confirmation (ATOX)
- ❑ Eléments de dimensionnement
- ❑ Modélisation et entretien
- ❑ Faisabilité et conclusion

Acteurs



A Complementary Organization



Contexte de l'étude

- ❑ Accident d'immersion de la centrale cause tsunami 11/03/2011
- ❑ Panne de courant / Groupes électrogènes submergés
- ❑ Défaut de refroidissement des réacteurs
- ❑ Fusion des réacteurs (unités 1, 2 et 3). Refroidissement d'urgence par motopompes 500 m³/j par réacteur.
- ❑ Réduction fin 2011 à 400 m³/j d'eau pompées dans les sous-sol (ruissellement + refroidissement). Entrée probable d'eau de mer (salinité équivalente à 5% en volume)
- ❑ Stockage des eaux de ruissellement + eaux pompées dans les sous sol dans des tanks en amont hydraulique, fuyards, et eaux au contact des cœurs en fusion → Infiltrations des eaux dans la nappe. impact des eaux en strontium ⁹⁰Sr, du césium ¹³⁷Cs et ¹³⁴Cs et du tritium.
- ❑ Impacts sur pompages sur puits en aval du site (> 2000 Bq/l pour autorisation rejet milieu naturel <30 Bq/l). Principalement Strontium
- ❑ Rex USA sur PRB apatite en eau douce
- ❑ Object de l'étude : séquestration en milieu salé (5 – 10% eau de mer)



Gestion globale des eaux de Fukushima

Fukushima Daiichi NPS Map



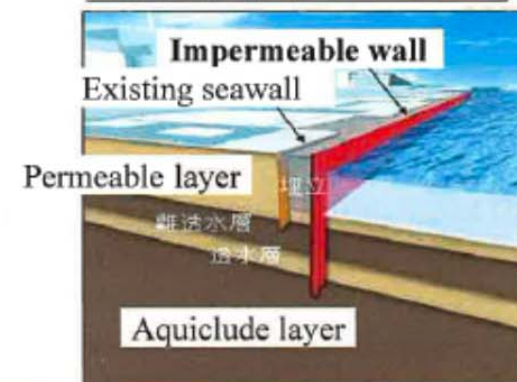
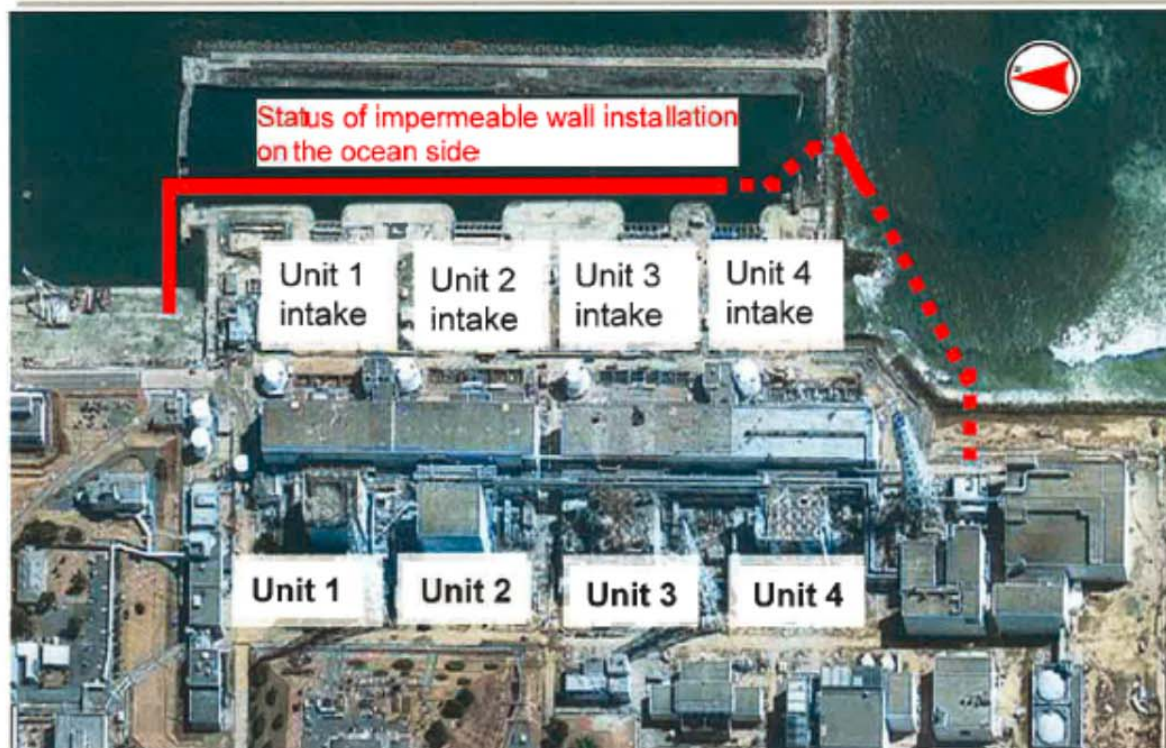
Stratégies mises en œuvre

3. Countermeasures for contaminated water

21

Measure ① “Stopping outflow into the ocean” --- Installation of a sea-side impervious wall.
[Preventing leaks]

- An impermeable wall is installed on the ocean side to suppress the outflow of groundwater to the seawall.
- The impermeable wall has been installed up to Unit 4’s intake channel (see below). It is expected to be completed by September next year.



Stratégies mises en œuvre

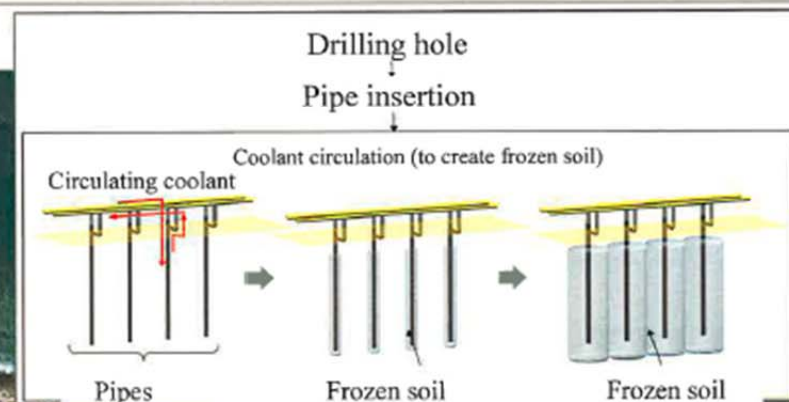
3. Countermeasures for contaminated water

22

Measure ②

“Suppressing increase of contaminated water and preventing outflow into the port” --- Installation of a land-side impervious wall (by soil freezing method).
[Keeping away from contamination] [Preventing leaks]

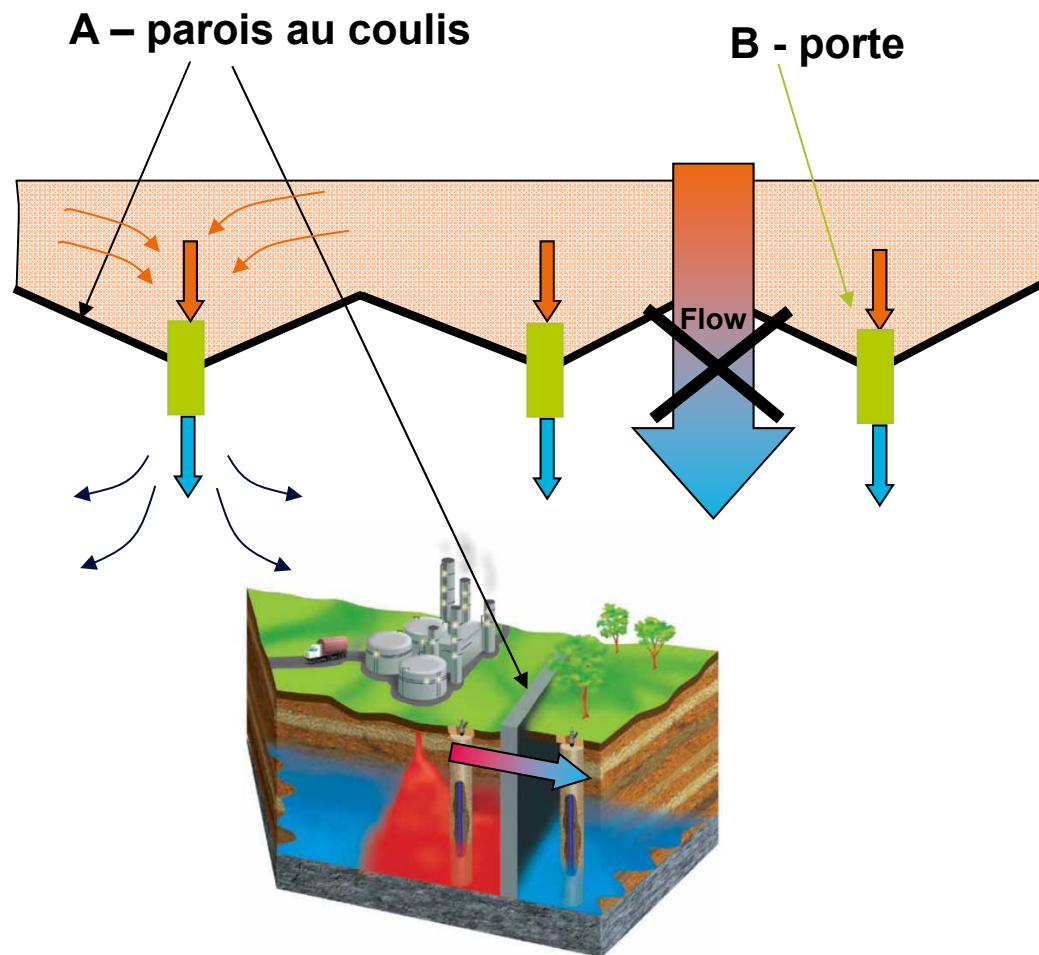
- Impermeable walls are installed on the mountain side of the NPS buildings to suppress the increase of contaminated water attributable to groundwater inflow.
- Feasibility study is conducted by the end of this fiscal year for the commencement of their use in H1 FY2015. [Project assisted by the Ministry of Economy, Trade and Industry]



Actif pour 2016

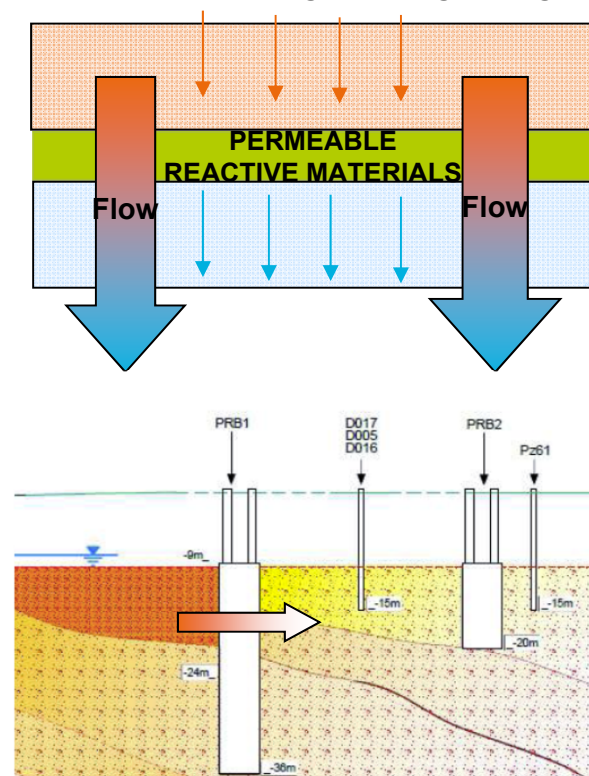
Types de PRB

Portes filtrantes



PERMEABLE REACTIVE BARRIER (PRB) or BIO-BARRIER

Reactive drain implementation or chemical / biological soil grouting



Types de PRB

Portes filtrantes

Ecrans étanches

Pelle mécanique / pieux / soil mixing / hydro haveuse



Porte Filtrante

Cartouches



Avantages :

- Possibilité multi traitement (# cartouches)
- Changement cartouche facile
- Haute étanchéité

Inconvénients :

- Terres/spoils contaminés en grande quantité
- Réactifs à cinétique rapide (concentration des flux dans les cartouches)
- Limite en profondeur

PRB injectée

Injection basse pression de coulis de suspensions réactives au tubes à manchettes



Avantages :

- Non destructif (pas d'altération géotechnique)
- Equipement réutilisables (réinjections)
- travaux profond possibles (80m)
- pas de modification de perméabilité (< 5% d'injection en masse)
- Possibilité de cinétiques lentes
- - dimensionnement pour de longue durée
- Atténuation naturelle des impacts (Temps de demie vie du 90Sr = 30 ans)

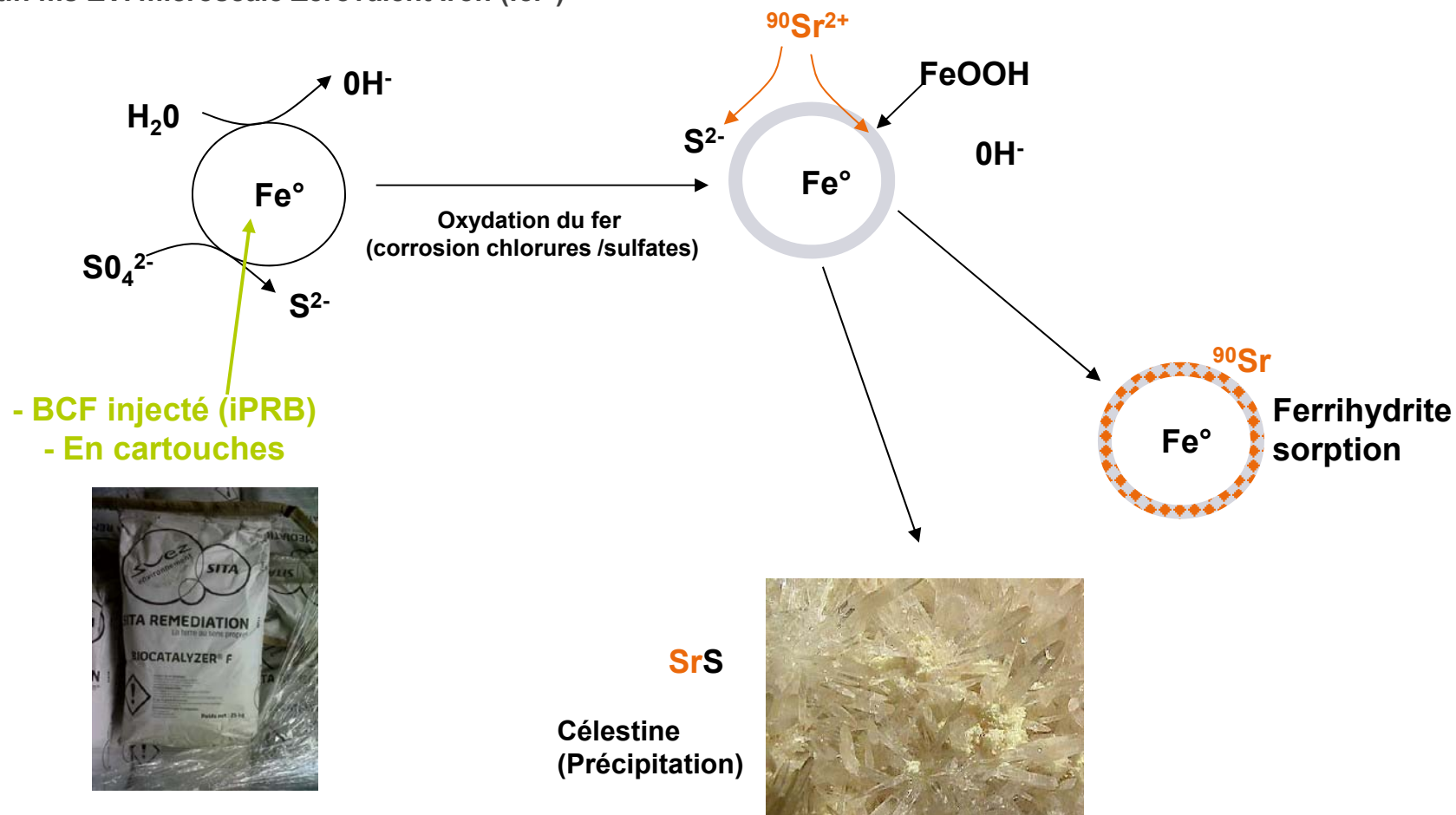
Inconvénients :

- Perméabilité minimale $K > 10^{-5}$ m/s
- Rayons d'action limités de 1 à 2 m pour l'injection particulière (effets de filtration, etc.)

Réactions étudiées

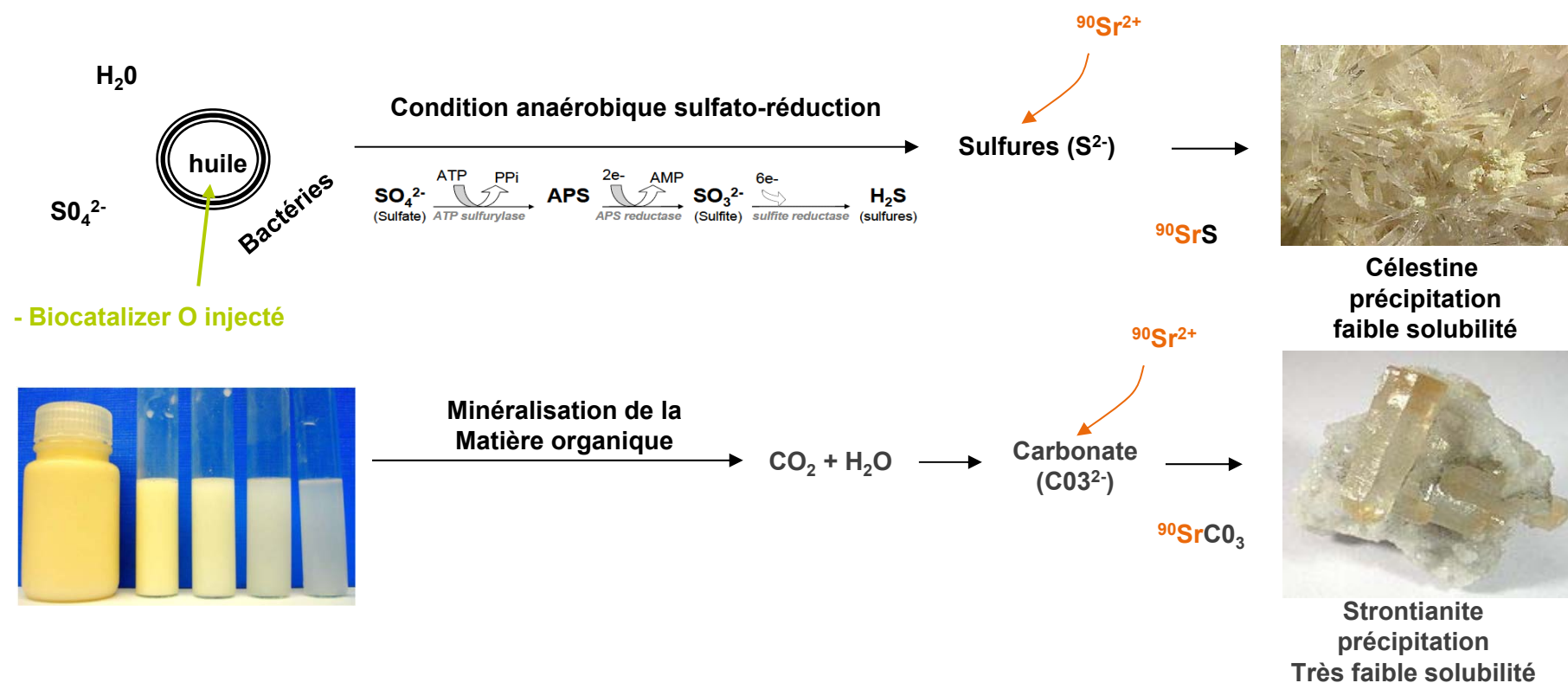
Réduction / sorption

Réactif: ms-ZVI microscale Zerovalent Iron (Fe^0)



Réactions étudiées

BIOWALL : réduction sulfato-réduction (eau de mer) / minéralisation MO
réactif: source de carbone (émulsions huile végétale / lactate / Chitine)

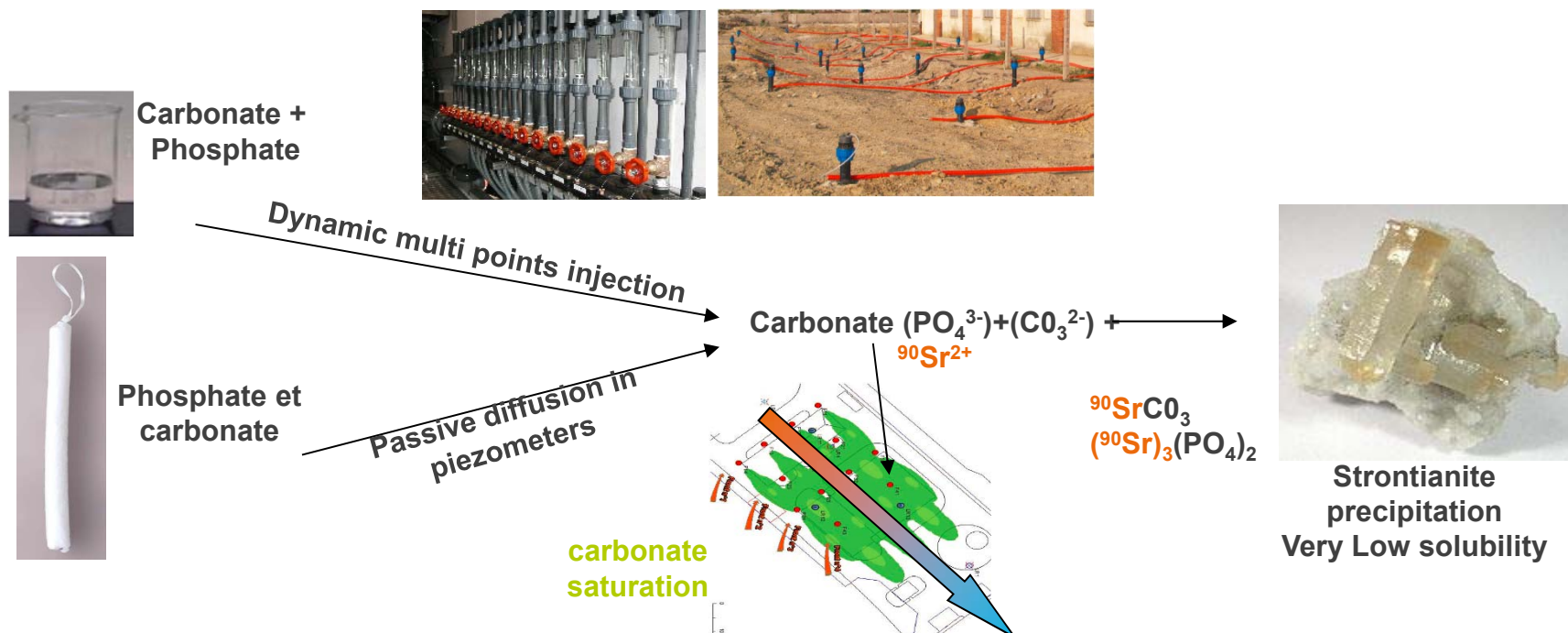


Réactions étudiées

PRB chimique : Carbonate + Phosphate précipitation

Réactifs: sels de carbonate et de phosphate,

- Injection continue
- Diffuseurs passifs dans piézomètres



Réactions étudiées

APATITE (échange ion)

Réactif: full mineral apatite

Apatite en granulés
en cartouches



Apatite précipitée amorphe injectée

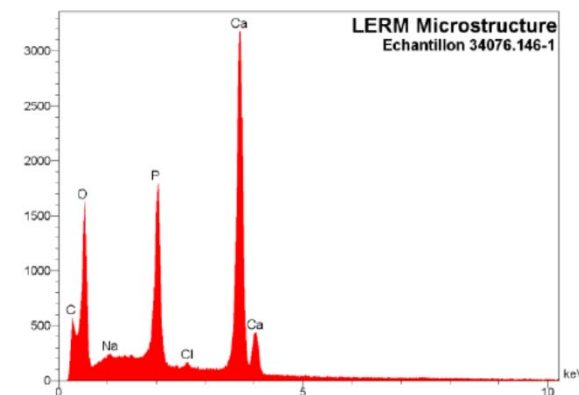
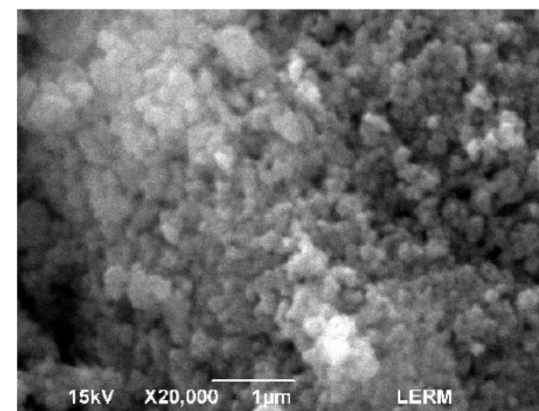


Calcium
Part A



Phosphate +
Carbonate
Part B

Injection
Simultanée
(nano/micro scale)



¹³¹I Apatite
 $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_x(\text{CO}_3)_y(\text{OH}, \text{Cl})$

Ca – Sr échange



$(\text{Ca}, ^{90}\text{Sr})_5(\text{PO}_4)_x(\text{CO}_3)_y(\text{OH}, \text{Cl})$

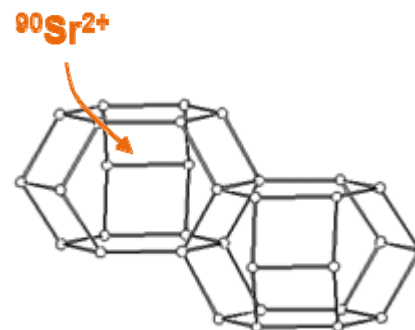
⁹⁰Sr²⁺

Ca²⁺

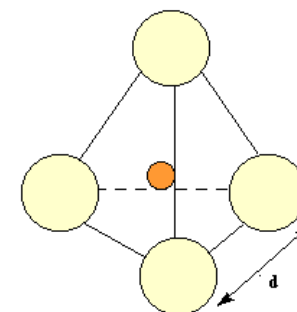
Réactions étudiées

ZEOLITES Artificielles (séquestration)

- Tamis moléculaire,
- spécifique du Sr et du Cs

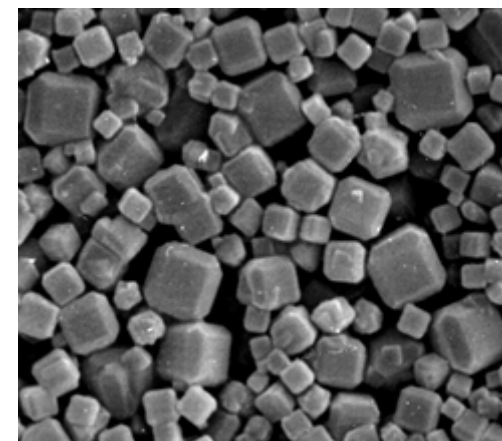
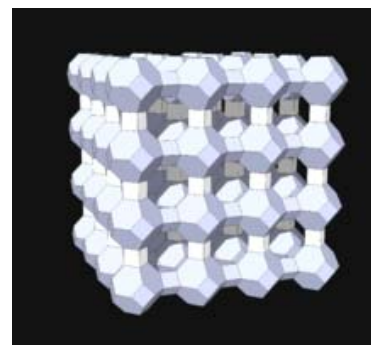


AlO₄/SiO₄ tétrahédriques



● Si ou Al
● Oxygène

Injection
(nano scale)



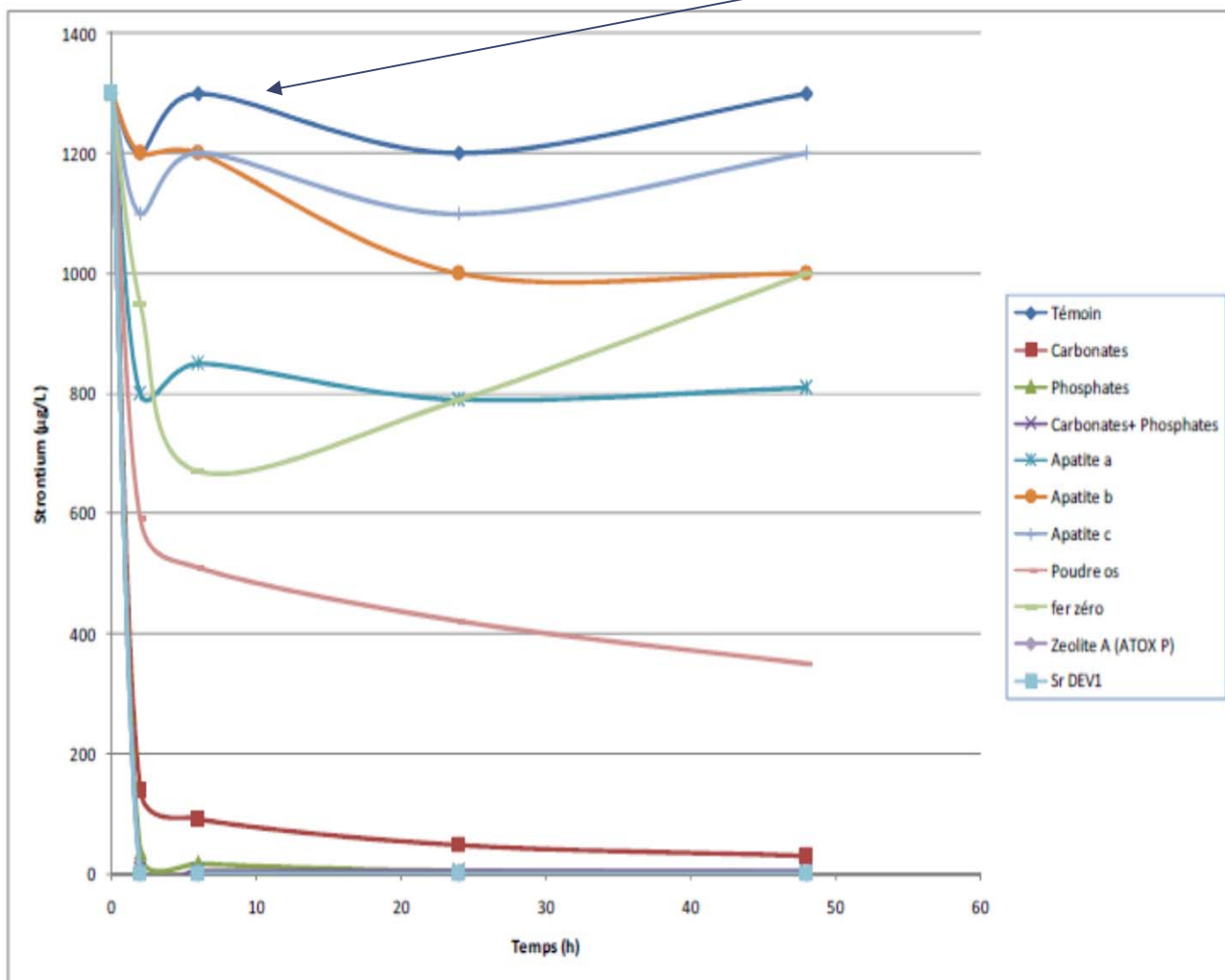
Autres réactifs

- Poudre d'os...

Résultats labo inactif (Suez)

Co = Eau Vittel + 5% sels de mer =
1200 µg/l de strontium (naturel)

Essais de faisabilité par batches



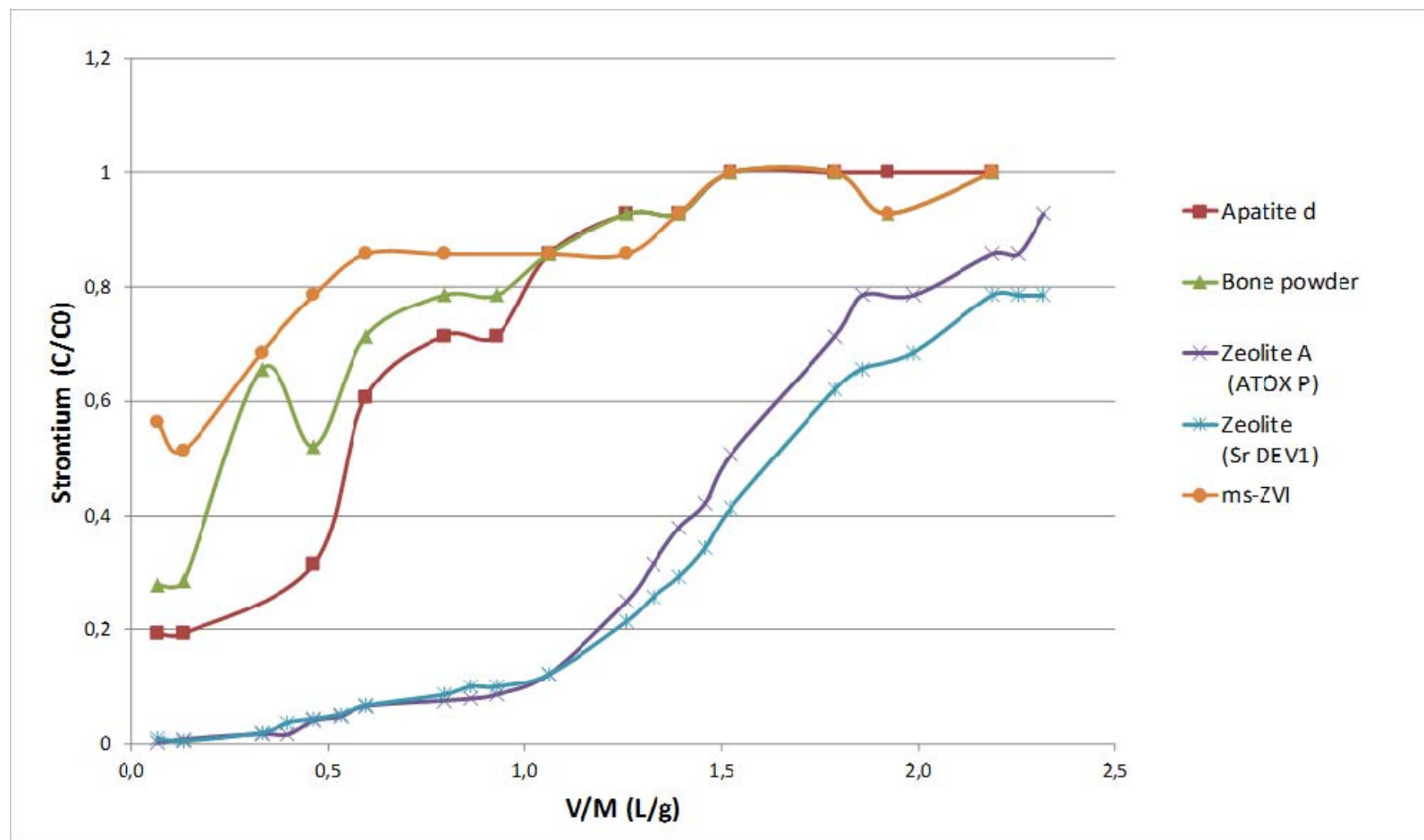
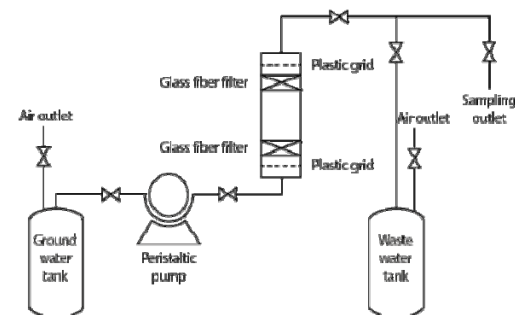
Analyse chimique par ICP

	Efficiency (%)
Zéolite Sr DEV1	100.00
Zeolite A4	100.00
Phosphate	99.85
Carbonate+Phosphate	99.69
Carbonate	97.69
Poudre os	73.08
Apatite a	37.69
Iron powder	23.08
Apatite b	23.08
Apatite c	7.69

Figure 1 : Evolution de la teneur en strontium au cours du temps

Résultats labo inactif (Suez)

Essais de faisabilité en colonnes (Mix réactif à 0,5% - 2,5% dans un sable 0/4 mm pour simuler le sol injecté)



Résultats labo actif (AREVA)

Essais de faisabilité en colonnes (Mix réactif à 0,5% - 2,5% dans un sable 0/4 mm pour simuler le sol injecté)

Le facteur de décontamination DF en fonction du rapport V/M se mesure par l'activité radioactive:

$$DF(V) = \frac{A_{initial}}{A(V)}$$

Avec

A_i = activité initiale en entrée

$A(V)$ = activité en sortie colonne

V = Volume de pore

M = masse de réactif

Radionucléides de labo:

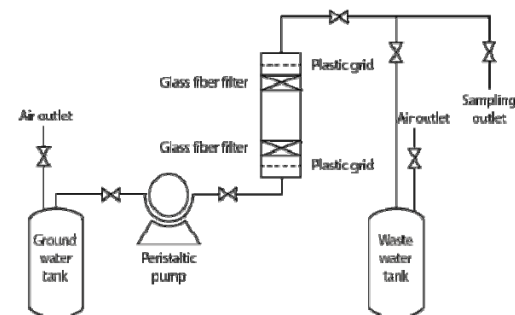
Sr-85 et Cs-137.

A_i Sr = 100 kBq/L

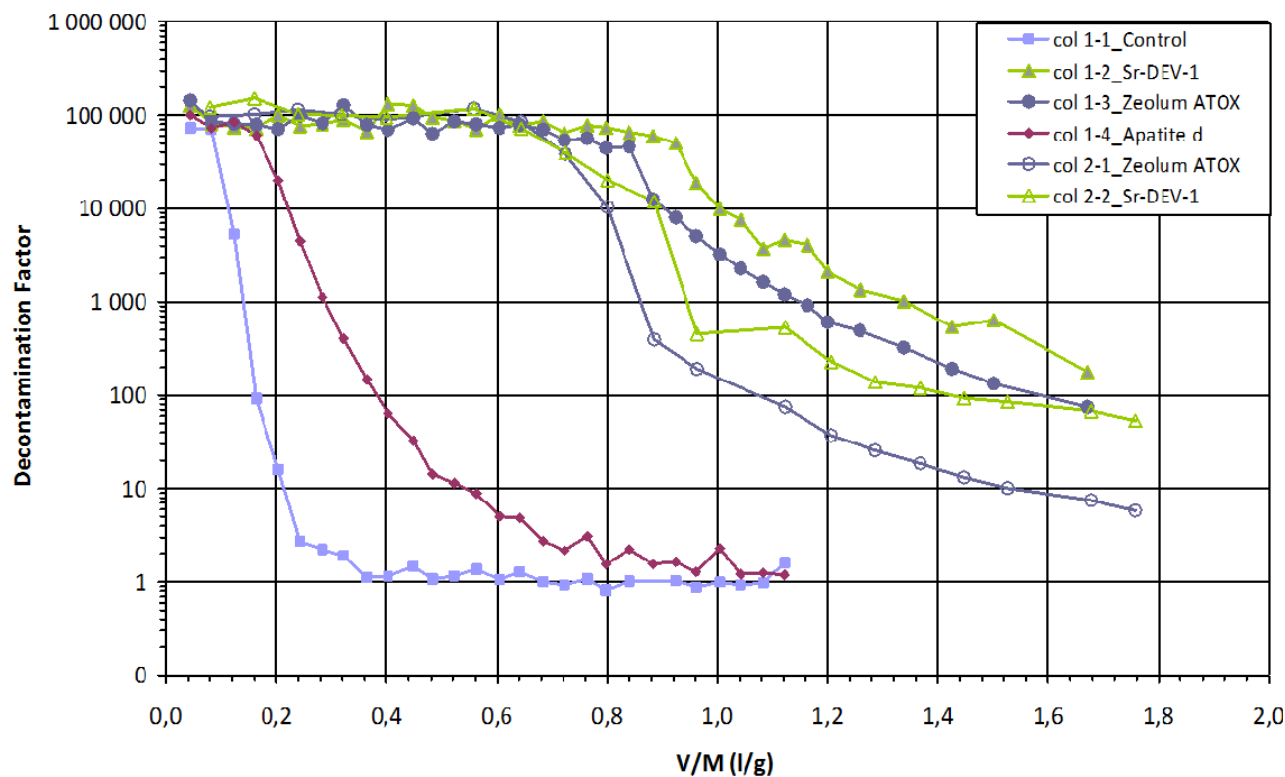
A_i Cs = 100 Bq/L

Résultats:

- les zéolites ont un fort DF malgré la présence d'eau de mer.
- les apatites amorphes ne sont pas suffisamment efficaces



Decontamination Factor evolution with V/M



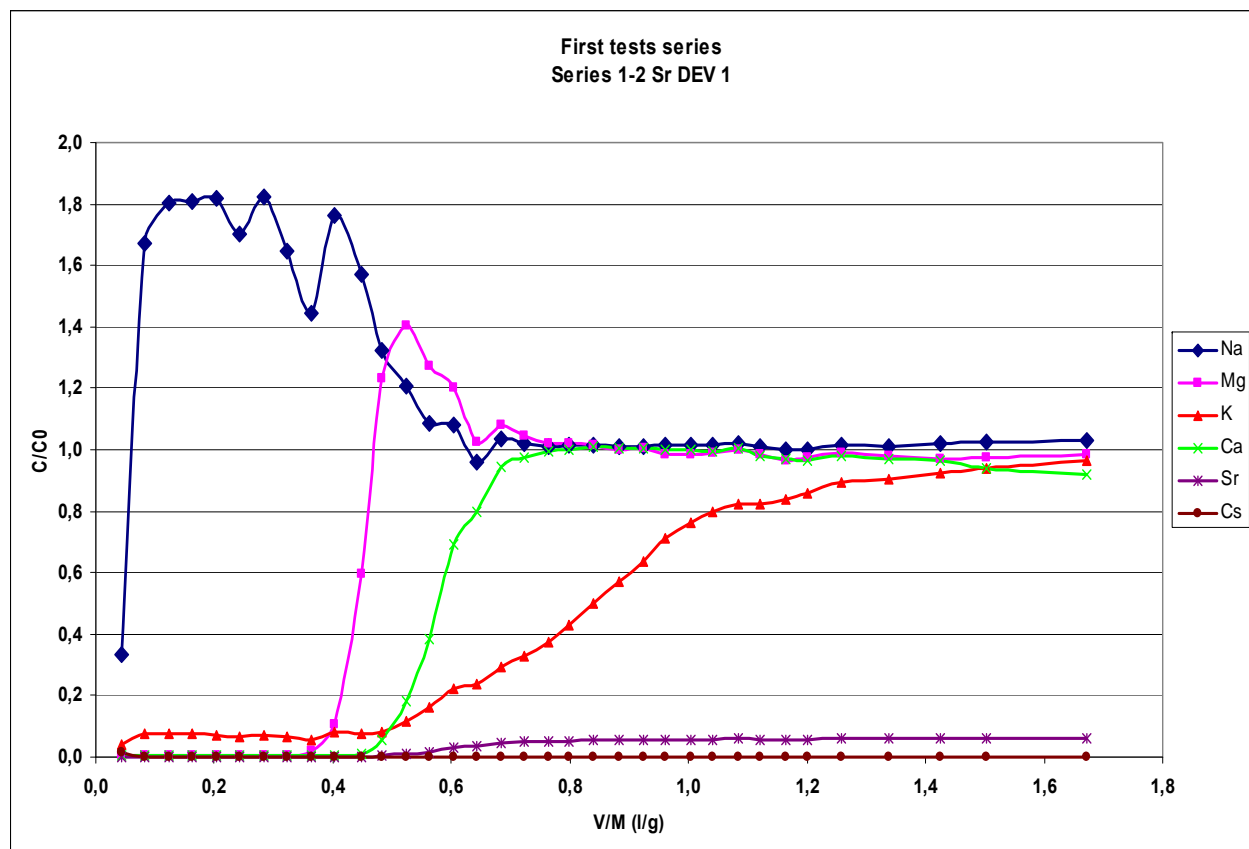
Résultats labo actif (AREVA)

Essais de faisabilité en colonnes (Mix réactif à 0,5% - 2,5% dans un sable 0/4 mm pour simuler le sol injecté)

Evolution des autres éléments cationiques majeurs avec les zéolites :

- Echange ion Na initial
- Echange d'ion Mg secondaire
- Echange d'ion Ca tertiaire
- Echange d'ion K quaternaire

TRES FORTE Sélectivité Sr et Cs

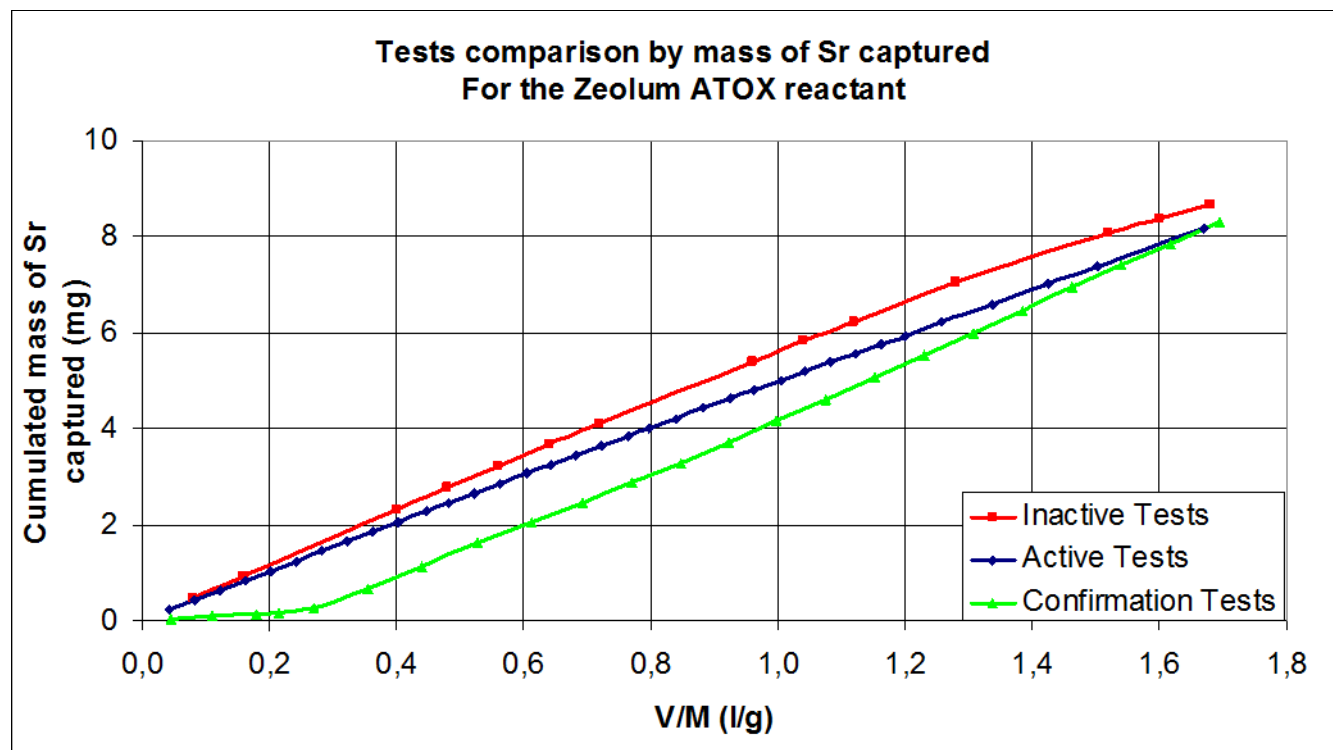


Capacité de chargement des zéolites

Choix du réactif : ZEOLITES artificielles

Synthèse des essais:

1. Inactifs FR (SUEZ)
2. Actifs EU (AREVA)
3. Inactifs confirmation JP (ATOX)



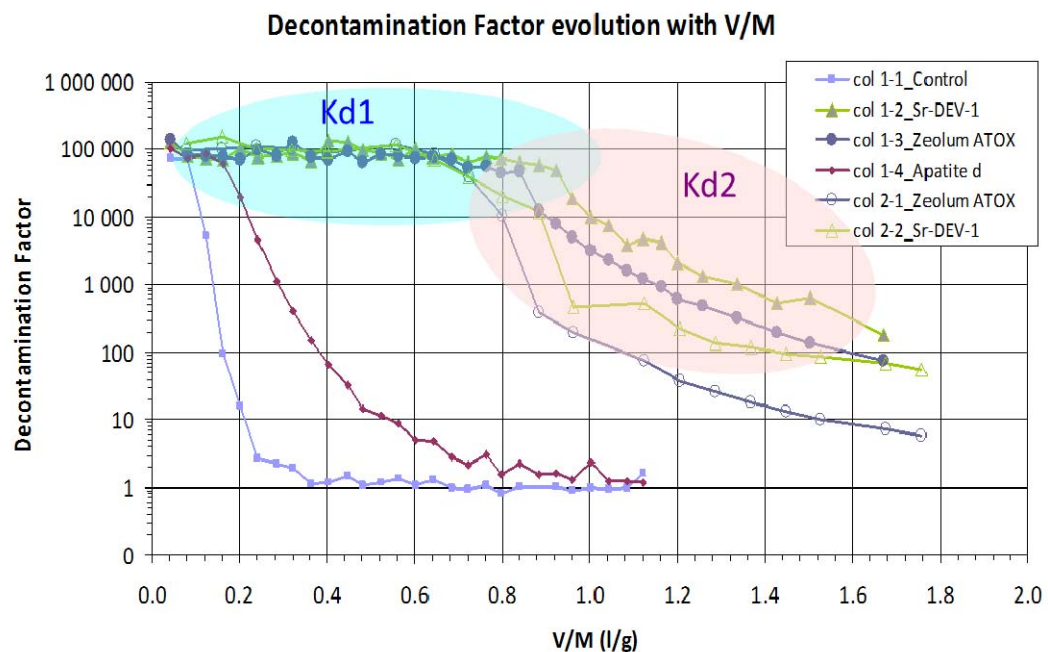
	Captured Sr mass at V/M = 1.7
Inactive Tests	8.6
Active Tests	8.2
Confirmation Tests	8.3

Eléments de dimensionnement

FLUX maximum admissible

Objectif de décontamination 2400 Bq/l → 30 Bq/l

→ DF > 80 (98-99 % abattement)

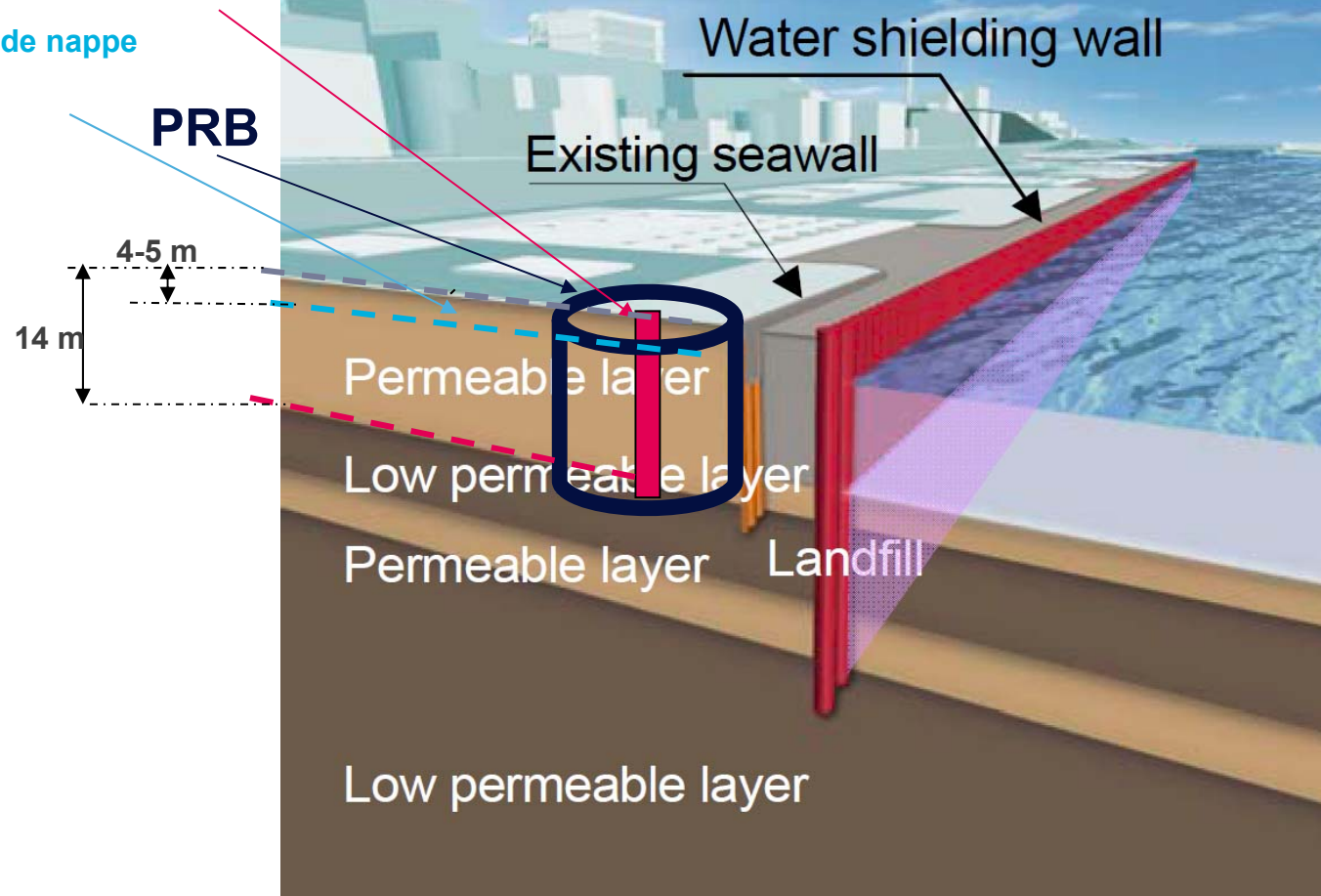


PRB solution	1 st Distribution coefficient (Kd1) DF = 100 000	2 nd Distribution coefficient (Kd2) Df > 80
Zeolite only	1000 ml/g Full effect	+ 500 ml/g residual effect
Apatite	320 ml/g	No significant residual effect
Zeolite after apatite	240 ml/g	2000-2500 ml/g can be expected

Faisabilité sur site

Puits de pompage 2-6 :
Débit (25-100 m³/j)

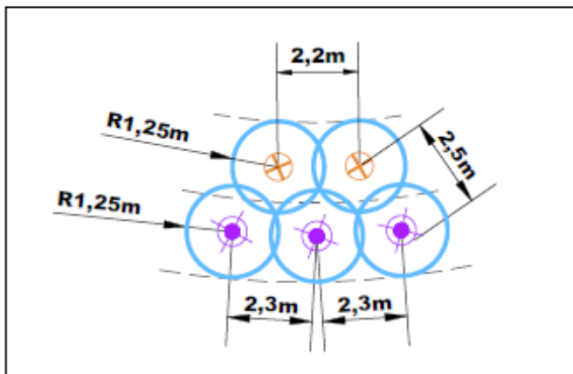
Niveau de nappe



Faisabilité sur site



Faisabilité sur site

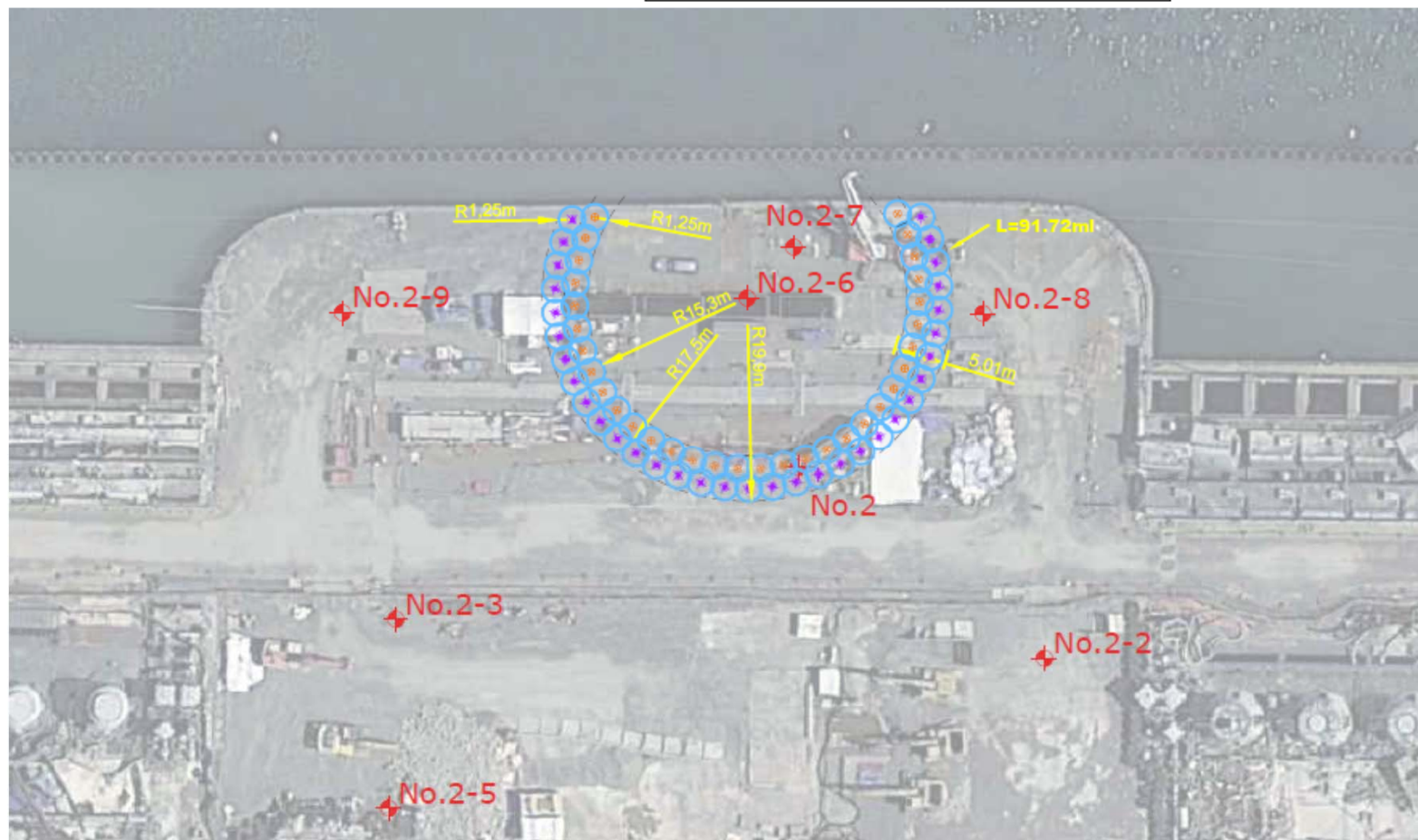


PRB : position pour 40 m³/jour

Distance pour stabilité
des particules nanoscale = 15 m

Injection 1% Zeolite.

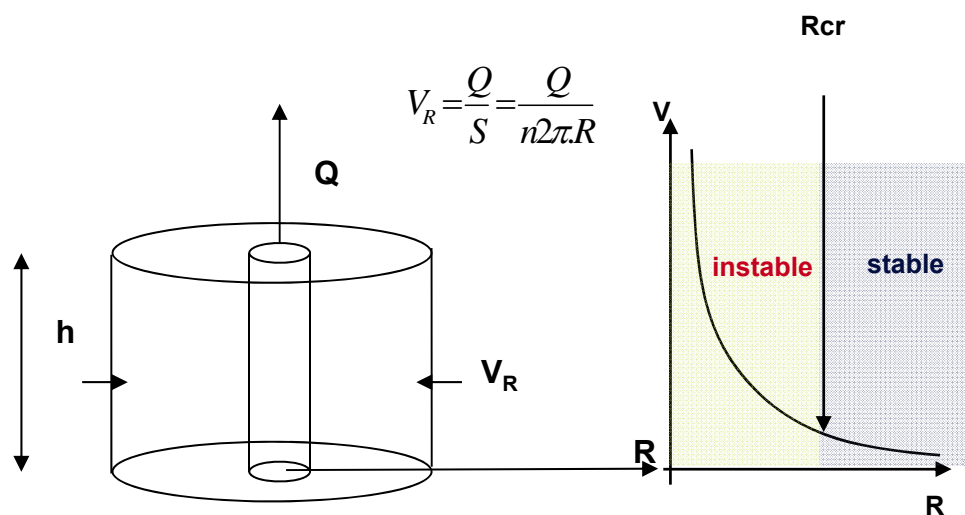
Durée de vie : 5 ans plein effet
Par injection



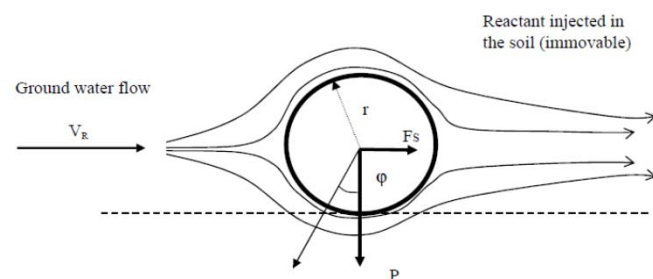
Faisabilité sur site

PRB : conditions de non érosion

non entraînement des zéolites sous pompage = distance de la PRB au puits de pompage



Paramètre	Définition	Unité	Valeur retenue
Q	Débit pompage	m ³ /J	40
Q	Débit pompage	m ³ /h	1.67
n	porosité du sol	%	25%
h	hauteur d'eau pompée	m	9
r	rayon moyen des particules réactives	m	1.00E-06
g	constante gravité	m/s ²	9.81
ρ_s	masse volumique des particules réactives	kg/m ³	2700
ρ_w	masse volumique de l'eau	kg/m ³	1000
φ	angle de frottement du sol	°	35
μ	viscosité dynamique de l'eau	Pa.s	1.00E-03
V_r	Vitesse radiale critique	m/s	2.13E-06
Rcr	Rayon critique	m	15.4



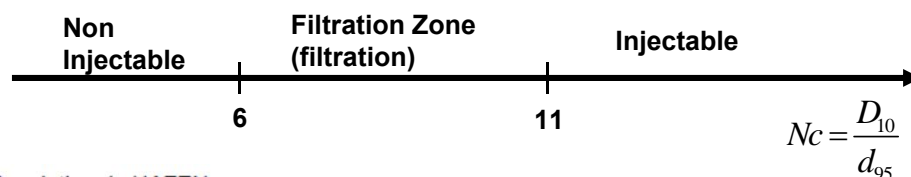
Faisabilité sur site

PRB : Conditions d'injectabilité de particules

D_{10} : Passant à 10% masse du sol

d_{95} : taille des particules injectées passant à 95%

N_c = rapport d'injectabilité (Nb de particules / pore)



On a la relation de HAZEN :

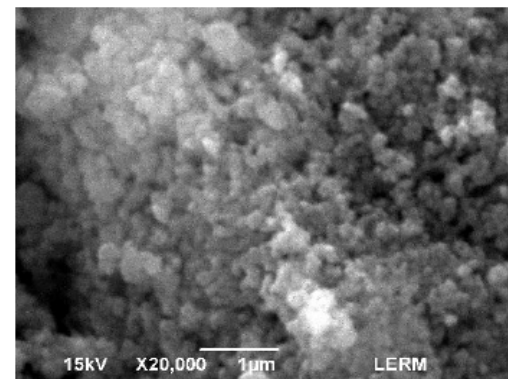
$$K = 10000 \cdot D_{10}^2$$

K en $m \cdot s^{-1}$
 D_{10} en m

$$K = 3 \cdot 10^{-5} \text{ m/s} \rightarrow D_{10} = 54 \mu m$$

$$\rightarrow d_{95} < 54/11 = 5 \mu m$$

→ OK



Apatite D :

$d_{95} < 1 \mu m$ (court terme)

ZEOLITES

ATOX Type A :

- $D_{10}(\mu m)$: 0.5 μm
- $D_{50}(\mu m)$: 0.8 μm
- $D_{90}(\mu m)$: 1.4 μm

AREVA Sr DEV 1

- $D_{10}(\mu m)$: 0.6 μm
- $D_{50}(\mu m)$: 1 μm
- $D_{90}(\mu m)$: 2 μm

→ zéolite $d_{95} < 5 \mu m$

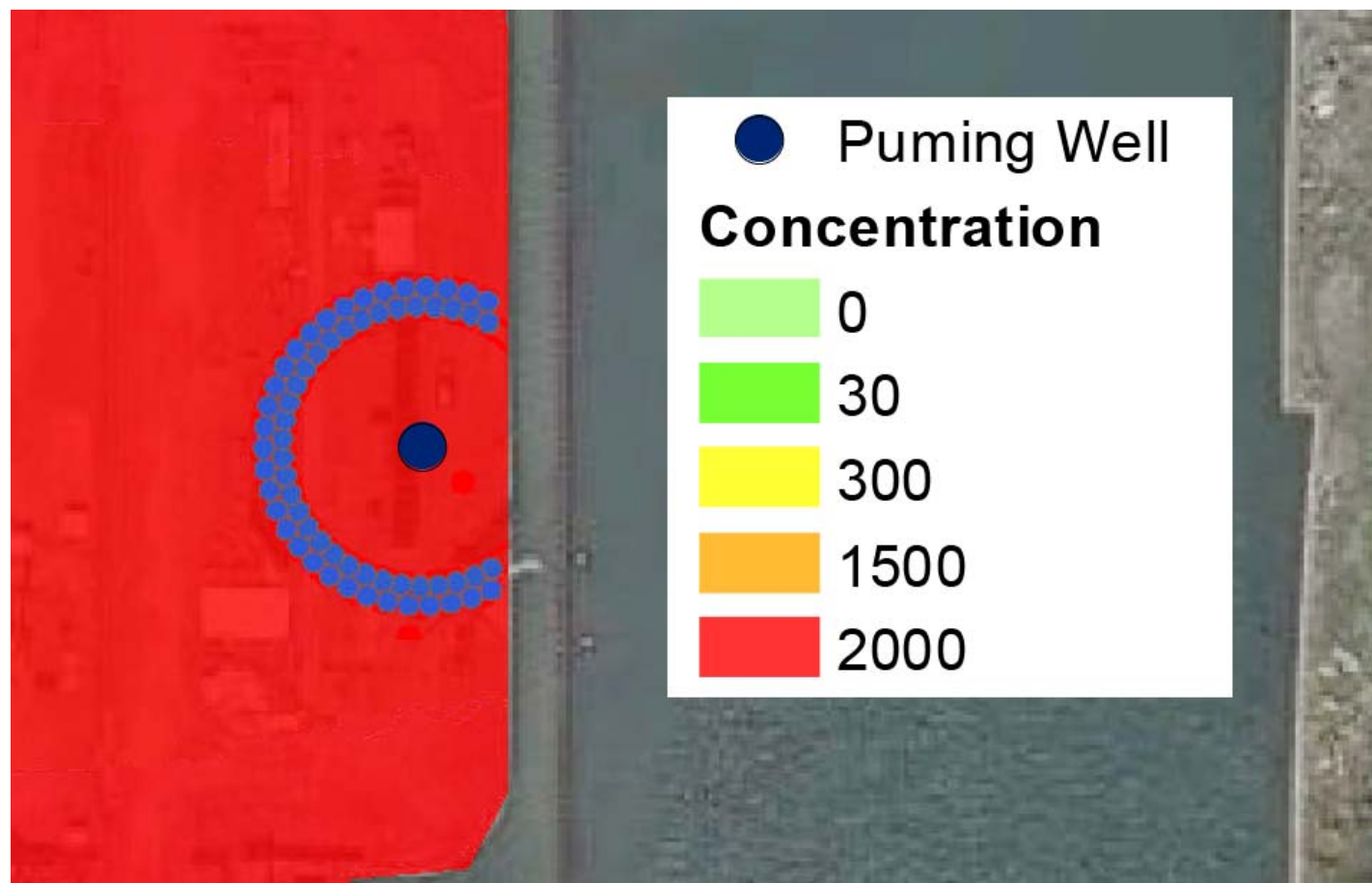
PRB : Autres dimensionnement

→ Conditions de non colmatage (% volumique de masse incorporée)

→ Non claquage du sol (limitation des débits d'injection)

Modélisation hydrodynamique

Installation PRB : avant période d'injection



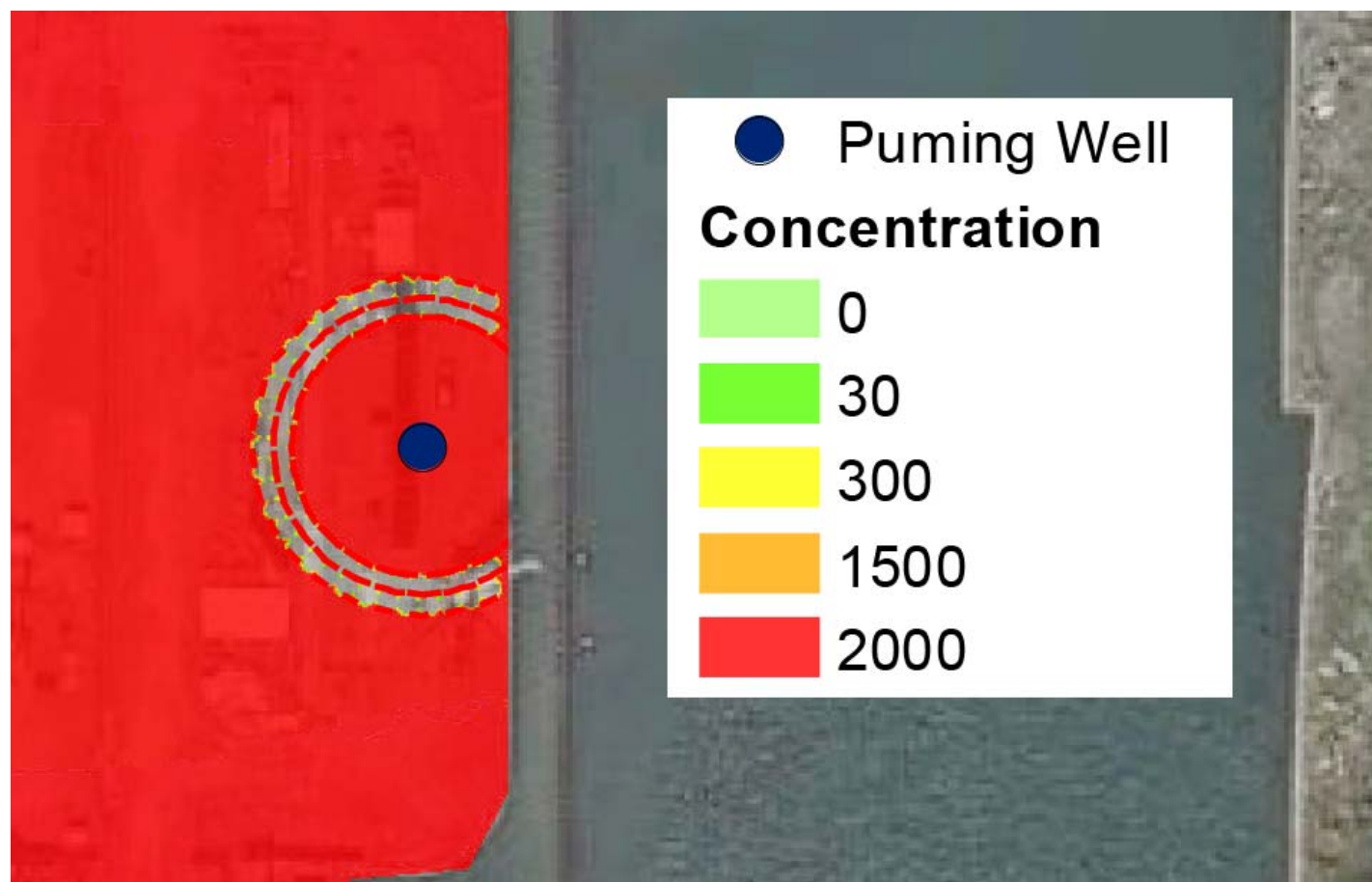
PRB 1% Zeolite

debit : 25 m3/jour

Contamination en Bq/L

Modélisation hydrodynamique

Installation PRB : T0 (injection)



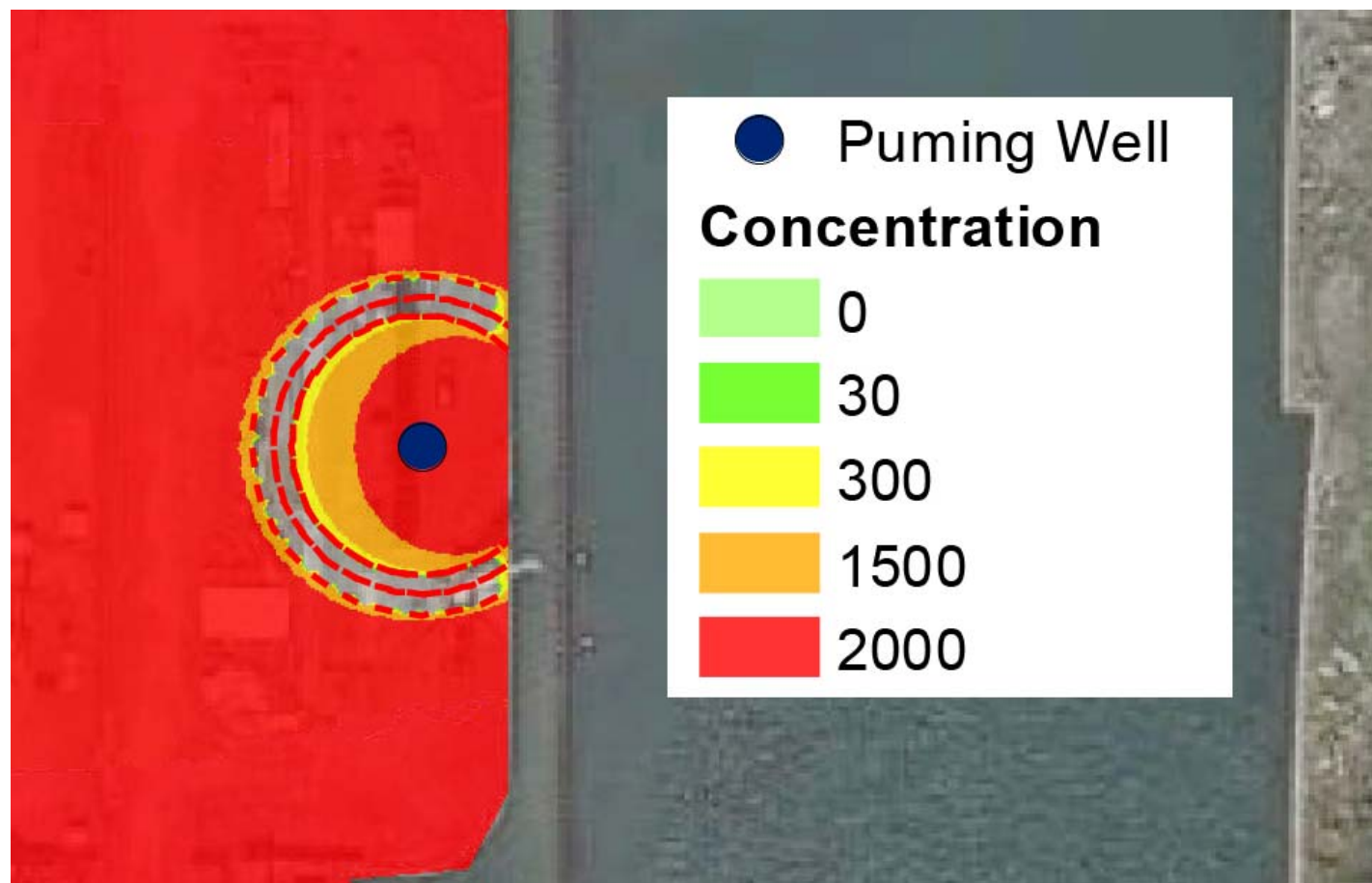
PRB 1% Zeolite

debit : 25 m3/jour

Contamination en Bq/L

Modélisation hydrodynamique

Phase de traitement PRB : T0+ quelques jours



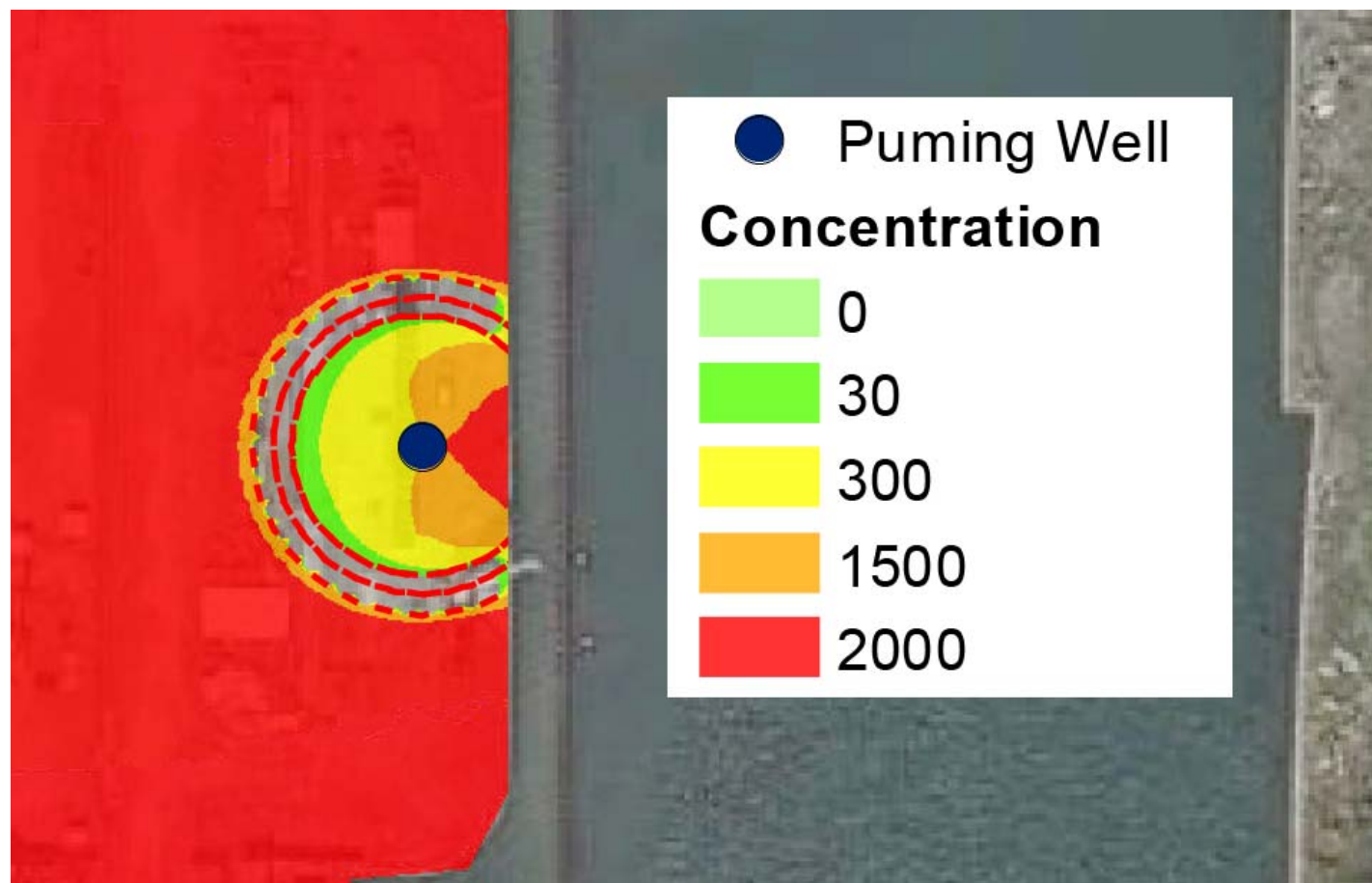
PRB 1% Zeolite

debit : 25 m3/jour

Contamination en Bq/L

Modélisation hydrodynamique

Phase de traitement PRB : T0+ quelques semaines



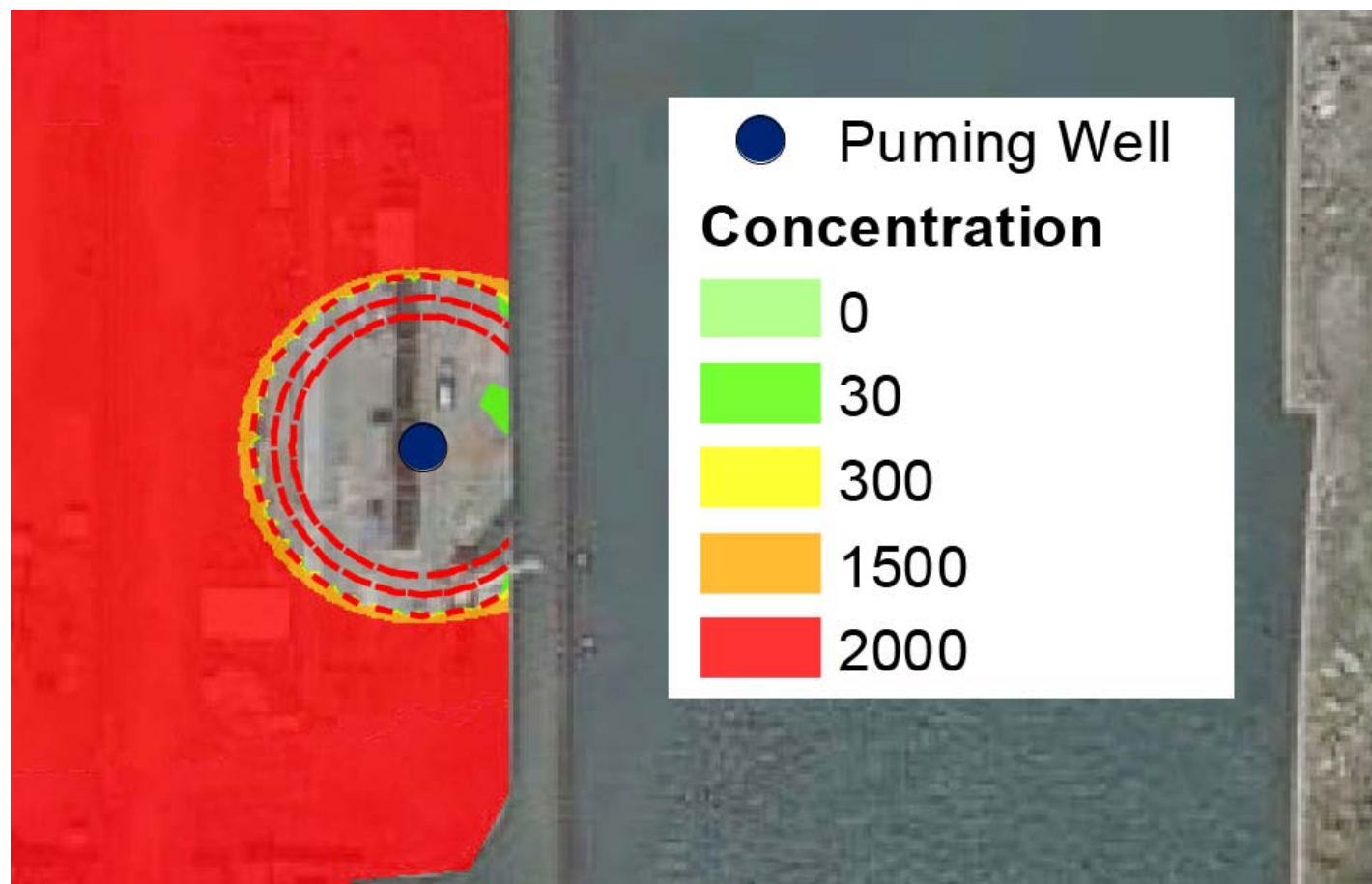
PRB 1% Zeolite

debit : 25 m3/jour

Contamination en Bq/L

Modélisation hydrodynamique

Phase de traitement PRB : T0+ quelques semaines à 5 ans



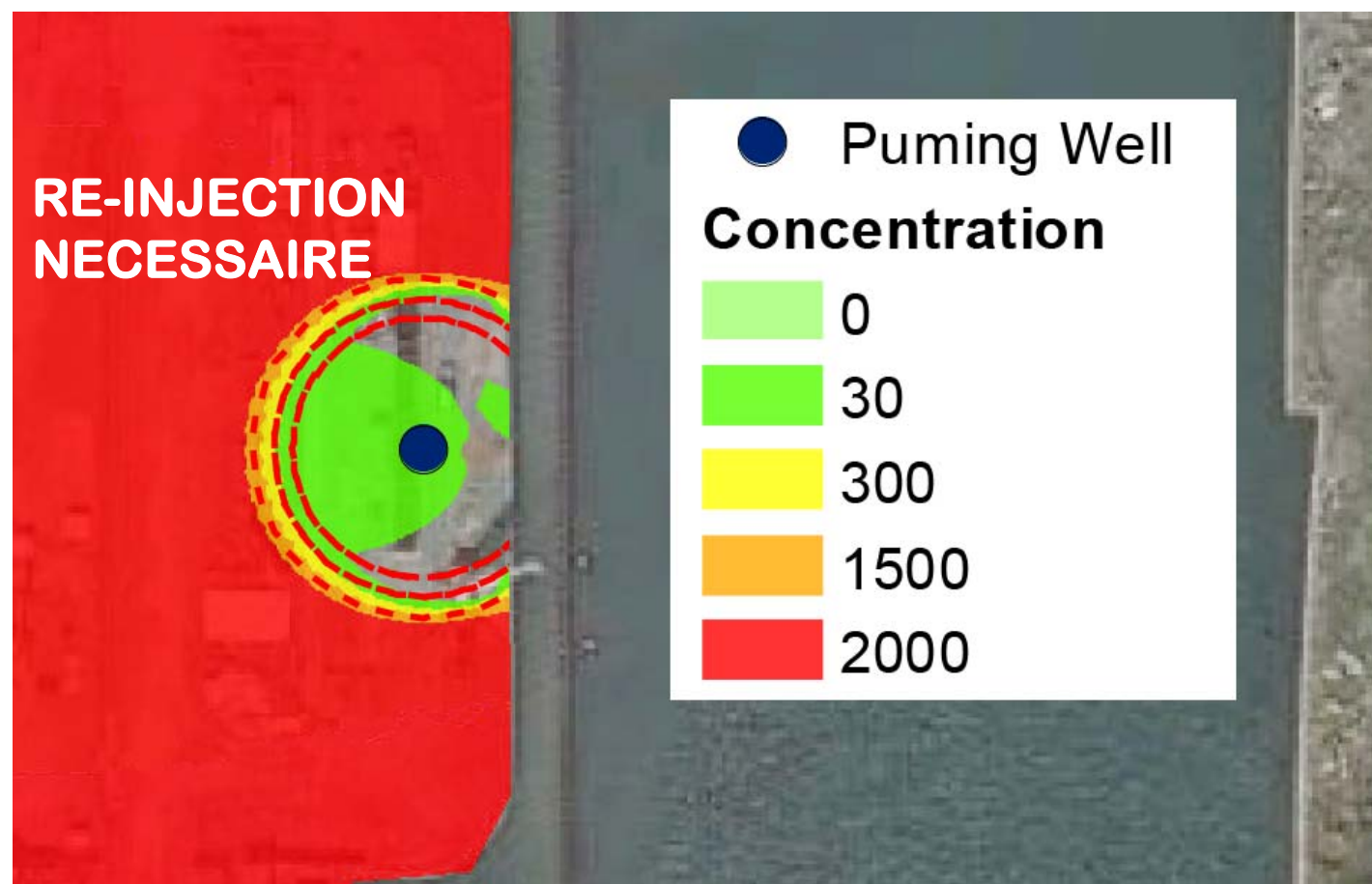
PRB 1% Zeolite

debit : 25 m3/jour

Contamination en Bq/L

Modélisation hydrodynamique

Phase de traitement PRB : T0+ 5 à 8 ans



PRB 1% Zeolite

debit : 25 m3/jour

Contamination en Bq/L

Modélisation hydrodynamique

Version à 75 m³/jour, distance 25 m du puits



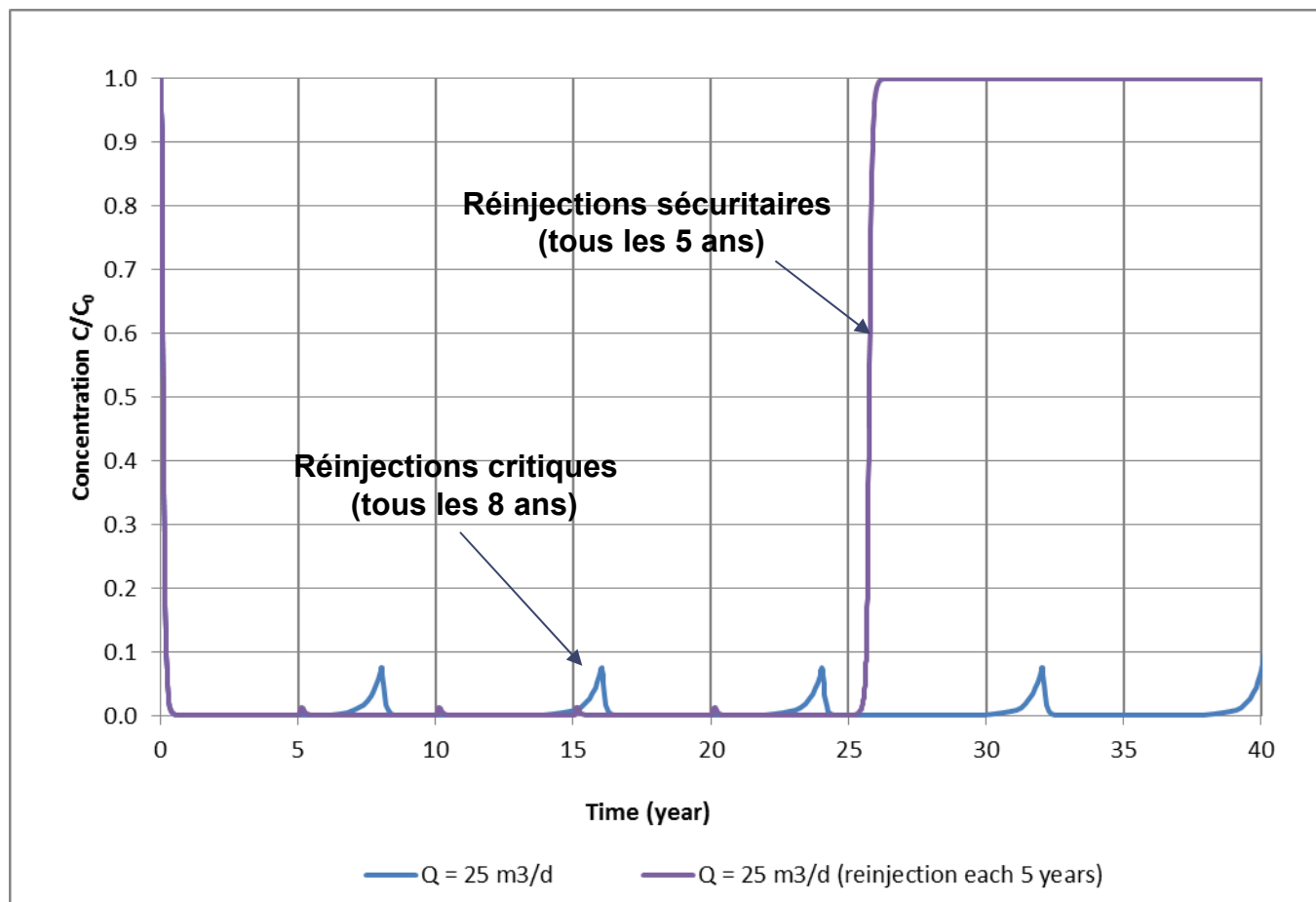
PRB 1% Zeolite

debit : 75 m³/jour

Contamination en Bq/L

ENTRETIEN de la PRB

Phasage des réinjections



Max 5 réinjections ou 5% MS
(colmatage)

Conclusion sur le pilote

Les essais pilotes ont montré que :

- ➔ La **séquestration du Strontium et du Césium est possible en milieu salin**
- ➔ Sur tous les réactifs testés (Fer zéro, Bio BSR, poudre d'os, apatites précipitées), seules **les zéolites artificielles ont un pouvoir de décontamination efficace**
- ➔ Les zéolites artificielles ne sont pas sélectives du strontium stable / radioactif, tout le strontium est à prendre en compte (strontium naturel et isotope radioactif)

La mise en œuvre d'une PRB est possible sur site :

- ➔ En cartouches (portes filtrantes) ou en drains réactifs : avec des zéolites de tailles micrométrique à millimétrique
- ➔ En injection in situ (les sols sont injectables avec des zéolites nanométriques à micrométriques).

Pour la PRB injectée in situ :

- ➔ Le dimensionnement impose une distance minimale des puits de pompage pour éviter l'érosion du réactif
- ➔ La durée de vie théorique est de 5 à 8 ans ans pour une injection de 1%-MS
- ➔ Réinjections possibles mais en nombre limité pour éviter le colmatage
- ➔ La gestion long terme des impacts se fait par atténuation naturelle de la radioactivité (1/2 vie du 90-Sr=30 ans)

Participants



Direction technique des Projets Internationaux Back End

Laurent CHEROUX (chef de projet MRI)

Alexandre RAGOUILLIAUX (R&D méthodes, tests actifs)

Jean-Christophe PIROUX (Directeur Technique)



Shohhei KATO (Directeur des opérations d'urgence)

Tatsuya SAKURAI (Ingénieur R&D, tests de confirmation)



François MANEGLIA (chef de projet PRB)

Daphné OGAWA (chef de projet water treatment)



Direction technique Sita Remediation

Jean-Yves RICHARD (R&D et méthodes, tests non actifs)

Philippe BOTELLA (Modélisation hydrodynamique)

Boris DEVIC-BASSAGET (Directeur Technique)

E-mail = boris.devic-bassaget@sita.fr

Web site = <http://www.sita.fr/solutions/depolluer-les-sites-et-sols-pollues/>

SITA Remediation

17 rue du Périgord - 69330 MEYZIEU - France

Téléphone fixe : +33 (0)4 72 45 02 22

Portable : +33 (0)6 07 52 78 81