

Traiter les terres contaminées de Fukushima

Motivations

Suite à l'accident de la centrale nucléaire de Fukushima Daiichi au Japon en 2011, des aérosols contenant du césium 137 radioactif ont été transportés par le vent puis déposés par l'eau de pluie sur le sol environnant. En contact avec la terre, le césium radioactif se fixe de façon quasi irréversible sur les particules d'argile les plus fines du sol. Cette propriété spécifique du Cs est bénéfique car elle permet de le retenir à une profondeur de 0 à 10 cm et évite ainsi la pollution en profondeur des terres et des nappes phréatiques. Mais pour le retraitement des sols contaminés, cela empêche l'utilisation de techniques simples comme le lavage. Suite à cette contamination, les autorités japonaises ont ratissé un grand volume de terres en vue de décontaminer ces parcelles. Cela a produit jusqu'à 22 millions de m³ de terres agricoles et résidentielles contaminées qui sont en attente de solution de traitement. Aujourd'hui, il existe plusieurs technologies de décontamination du sol telles que le lavage du sol, les procédés thermiques ou de phytoremédiation, mais aucune ne permet de réduire les déchets secondaires tout en permettant de réduire significativement le volume de déchets ultimes.

Dans le cadre du projet « DEMETERRES », le CEA, Orano et Veolia ont étudié et développé un procédé innovant de

mousse de flottation particulière qui permet de séparer directement et sélectivement les particules les plus fines d'une suspension de terre. Ces particules, qui retiennent la majorité de la contamination en Cs, vont permettre de la concentrer dans un volume ou une masse réduits. En novembre 2017, le CEA, Orano et Veolia, en collaboration avec la société japonaise ANADEC, ont testé ce nouveau procédé sur des terres réelles radiocontaminées en césium fournies par la préfecture de Fukushima. Cette opération de traitement des terres par flottation a été effectuée avec le soutien du ministère de l'Environnement du Japon dans le cadre d'un « Plan de démonstration testant les technologies de réduction du volume des terres contenant des matières radioactives Cs générées par des travaux de décontamination ».

Des bulles d'air pour séparer les particules contenant le césium

Le CEA a breveté en 2013 ce procédé innovant basé sur l'extraction sélective de ces plus petites particules d'argile contenant du césium dans une colonne de flottation [1-2]. La terre est mise en suspension dans l'eau (5 à 10 % en masse) avec une faible quantité de tensioactif cationique (< 3 kg pour une tonne de terre) qui agit comme un « collecteur » : celui-ci



Figure 1 - Collecte de la mousse sur le pilote de flottation utilisé au Japon. © J.-L. Sida/CEA.

s'absorbe sur les particules d'argile pour augmenter leur hydrophobicité et leur fixation à la surface des bulles d'air injectées par le bas de la colonne de la flottation. Ces bulles d'air, recouvertes de particules d'argile, remontent en tête de colonne pour former une mousse stable enrichie en argiles contenant le ^{137}Cs et qui est ensuite aspirée. Le résidu de mousse sèche à température ambiante en quelques heures et constitue le déchet ultime contenant la majeure partie des argiles du sol traité. Le bas de colonne contient la suspension décontaminée de terre qui peut alors être récupérée par une séparation solide-liquide (par exemple par décantation), ce qui permet également de recycler la phase aqueuse du procédé. Le volume de terre initialement contaminée est ainsi divisé en deux parties :

- un volume de terre fortement radiocontaminé qui se réduit au volume du résidu d'argile après séchage de la mousse ; il représente 15 à 30 % du volume initial selon le type de sol et contient la majorité du collecteur (tensioactif cationique) ;
- un volume de terre non flotté récupéré au bas de la colonne de flottation, qui représente 70 à 85 % du volume initial, contenant des traces de collecteur, et une radioactivité inférieure permettant d'envisager, selon le niveau d'activité initiale, la décatégorisation des sols avec un objectif de les réutiliser si leur activité est inférieure au seuil japonais (< 8 000 Bq/kg).

En 2016 et 2017, un pilote de flottation des terres iD20 (colonne 20 cm) permettant un débit de traitement de 20 kg de sol/heure et le recyclage de la phase aqueuse a été conçu et construit à Marcoule (France).

Les mousses en situation à Okuma

C'est en novembre 2017, après son envoi au Japon et sa mise en service à Okuma près de Fukushima Daichi-Power Plant, que le pilote iD20 a été testé sur plusieurs centaines de kilogrammes de sols réels contaminés (figure 1).

Ce pilote de flottation a montré une stabilité dans le temps très satisfaisante sans colmatage grâce au prétéamaisage automatique de la suspension de terre à 1 mm. Pour la majorité des sols testés, des mousses d'une hauteur de 60 à 70 cm ont été facilement obtenues et aspirées dans la colonne. Ces mousses contiennent sélectivement les particules d'argile inférieures à 30 μm (figure 2).

Ces premiers essais ont notamment permis d'obtenir une réduction du volume de terre contaminée d'un facteur entre 3 et 7 dans le cas de sols contaminés résidentiels, pour lesquels la proportion de particules d'argile est la plus faible, à savoir pour deux « big bags » (1 m^3 chacun). Des facteurs de décontamination compris entre 2 et 3 ont été obtenus à partir de ces sols très fortement contaminés (140 000 et 200 000 Bq/kg).

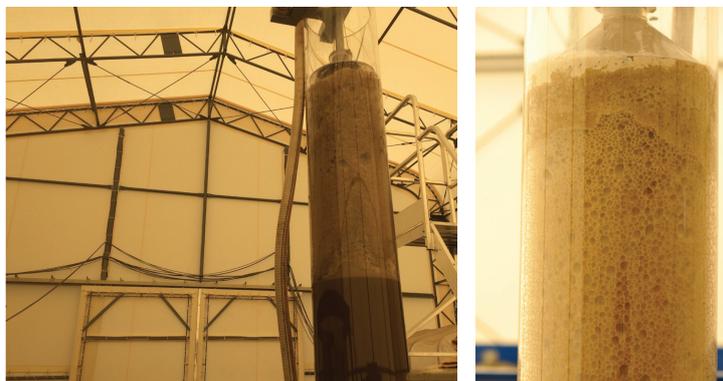


Figure 2 - Exemples de mousses de flottation contenant de l'argile radioactive (hauteur de mousse : 60 cm). © J.-L. Sida/CEA.

Ainsi par extrapolation, il peut être envisagé de déclasser des sols contaminés entre 16 000 et 24 000 Bq/kg. Ces essais sur le terrain ont également permis de pointer les pistes d'amélioration, et notamment l'intérêt d'optimiser l'étape de préparation du sol (séchage, émiettement, prétéamaisage et dispersion dans l'eau). À partir de ces résultats présentés aux autorités japonaises, ce nouveau procédé pourra être évalué à une échelle semi-industrielle sur plusieurs dizaines de tonnes de terres contaminées lors d'un prochain appel d'offres.

Le CEA remercie particulièrement Frédéric Thurin (Orano), Marc Messalier et Alain Vinas (Veolia) pour la mise en œuvre au Japon, ainsi que le Programme d'Investissements d'Avenir (ANR-11-RSNR-0005 DEMETERRES) et le ministère de l'Environnement du Japon pour leur soutien financier.

[1] Faure S., Messalier M., Method for the radioactive decontamination of soil by dispersed air flotation foam and said foam, Patent WO2013167728, 2013.

[2] Chapelain J.C.M., Faure S., Beneventi D., Clay flotation: effect of TTAB cationic surfactant on foaming and stability of illite clay microaggregates foams, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2016, 55, p. 2191.

Sylvain FAURE est expert senior et **Agnès GRANDJEAN** est directrice de recherche, chef du Laboratoire des Procédés Supercritiques et Décontamination (LPSD) du CEA Marcoule.

* Courriels : sylvain.faure@cea.fr ; agnes.grandjean@cea.fr