



## Radioactive waste management: optimization of the mechanical property of cemented Ion Exchange Resin

**Z. Faiz<sup>1</sup> ; S. Fakhi<sup>1</sup> ; A. Bouih<sup>2</sup> ; A. Idrissi<sup>1</sup> ; M. Mouldouira<sup>2</sup>**

(1) *Unité de Radiochimie laboratoire subatomique et applications (L.R.S.A) Université Hassan II Mohammedia-Casablanca, Faculté des Sciences Ben M'Sik, Maroc.*

(2) *Centre National de l'Energie, des Sciences et des Techniques Nucléaires (CNESTN- Maroc), CEN de MAAMOURA.*

Received 28 March 2012, Revised 25 July 2012, Accepted 25 July 2012

\* Corresponding author : E-mail : [faiz.zineb@gmail.com](mailto:faiz.zineb@gmail.com).

### Abstract

Radioactive waste produced in Morocco had low and medium activity; the treatment supported to this kind of waste is the cementation, an ensured method with low cost used to confined and stabilized radioactive elements inside the package of cement. For insuring the sustainability of this management of cemented radioactive waste packages, they must have a long life during the storage and have a very good compression and bending resistivity. The aim of our study is increasing the mechanical resistivity properties of cemented waste packages and decreasing the volume occupied by the barrels of wastes, to realize this goal we studied the impact of the used sands size and the amounts of confined waste.

Keywords: cement; the Ion Exchange Resin; stabilization; mechanical resistivity.

### Résumé

Les déchets radioactifs produits au Maroc sont des déchets de faible et moyenne activité de ce fait le traitement pris en charge est la cimentation, une méthode assuré et de faible cout qui sert à confiné et stabilisé les éléments radioactifs a l'intérieur du colis de ciment. Pour assuré la durabilité de cette gestion les colis de déchet radioactif cimenté doivent avoir une long durée de vie au cour de l'entreposage, ainsi avoir une très bonne résistivité à la compression et à la flexion. Dans cette distribution on vise l'amélioration des propriétés de la résistivité mécanique des colis de déchets cimentés et la réduction de volumes occupés par les fûts des déchets en étudiant l'impact de la granulométrie des sables utilisés et de la quantités des déchets confinés.

### 1. Introduction.

La gestion des déchets radioactifs produites par des diverses activités nucléaires est devenue un défi majeur à relever les scientifiques et les utilisateurs des techniques nucléaires. Pour protéger l'homme et son environnement des risques causés par l'exposition aux rayonnements ionisants, une bonne gestion des déchets radioactifs pour toute promotion des activités nucléaires s'impose. Pour la réalisation de cet objectif, la gestion doit répondre aux principes majeurs de la gestion des déchets radioactifs posés par IAEA, parmi lesquels, il convient de citer:

- Protection de la santé humaine.
- Protection de l'environnement.

Une bonne gestion des déchets radioactifs ne suffit pas pour minimiser les risques relatifs à leur radioactivité, elle doit au même temps assurer la continuité de l'immobilisation des déchets à l'intérieur des

colis. Ce qui pose une problématique de taille, vus le risque qu'encours les colis entreposés tels que la perméabilité, la fissuration qui peuvent causer la filtration et le transfert de la radioactivité à l'extérieurs, et provoquer par conséquent des contaminations des écosystèmes de l'environnement [1].

Ce travail consiste à caractériser le colis de ciment destiné à confiner les résines échangeuses d'ions produites au niveau du réacteur nucléaire du Centre Nucléaire MAAMOURA dans le but d'avoir un colis qui peut être entreposé dans des conditions conformes aux exigences de la sureté et de la sécurité déterminés par IAEA.

On a travaillé sur plusieurs formulations pour améliorer les caractéristiques mécaniques des fûts, y compris la résistance à la compression et à la flexion. Pour la réalisation de cet objectif, on a étudié l'impact de plusieurs facteurs sur les propriétés de la résistance mécanique telles que les quantités des résines échangeuses d'ions inclus dans les formulations, l'utilisation de sable, et son granulométrie.

## 2. Caractérisation des propriétés Résines échangeuses d'ions.

Les résines échangeuses d'ions utilisés dans le module réacteur est de type PUROLITE NRW 37, se sont des résines échangeuses de cations fortement acide de type gel.

L'échange d'ions est procédé par lequel les ions contenu dans une solution sont éliminés pour être remplacés par une quantité équivalente d'autres ions de même charge électrique.

➤ Propriétés physico-chimique de la résine :

Squelette :	Polystyrenique croisé au DVB de type gel
Groupe fonctionnel :	$R-SO_3^-$
Aspect physique :	Billes ambre foncé, translucides
Forme ionique à la livraison :	$H^+$
Teneur en humidité :	51-55 % (forme $H^+$ )
Gonflement maximum :	$Na^+ - H^+$ : 5%
Limite de température :	120°C
Limite de PH :	De 0 à 14
Densité apparente :	Environ 800 g/l
Densité réelle :	1,20 (forme $H^+$ )
Capacité totale d'échange :	Min 1,7 eq/l (forme $H^+$ )

➤ La granulométrie de la résine :

Inférieure à 0,315 mm :	0,2 max
0,4<X<1,0 mm :	80% min
Supérieure à 1,25 mm :	3% max

## 3. Matériels et méthodes.

### 3.1. Les appareils.

Les matériels utilisés au cour de ce travail soit pour la préparation de la pate des résines échangeuses d'ions REI cimentés soit pour la réalisation des essais de la résistance mécanique a savoir la résistance à la compression et la résistance à la flexion sont les suivants :

➤ **La tamiseuse de sable**

➤ **Malaxeur.**

#### Description de malaxeur :

- Capacité malaxeur automatique mortier 5 litres
- Introduction automatique du sable
- Malaxeur automatique mortier fourni avec bol inox capacité 4,7 litres
- Alimentation : 380 V 50 HZ
- Dimensions : 340 x 460 x 700 mm
- Poids : environ 28 kg

➤ **Les appareils de contrôles de flexion et compression.**

Ces appareils sont connectés entre eux avec un système informatique.

#### a) Pupitre de commande automatique.

- Pupitre de commande automatique piloté par ordinateur industriel.
- Logiciel de pilotage avec compte rendus, archivage et échéancier.

- Télémaintenance du pupitre de commande automatique par modem
- b) Appareil de contrôle de flexion et de compression.**
  - Flexion et compression sur prismes 4x4x16 cm.
  - Force de flexion: 8 à 20kN, compression: 40 à 500 kN.
  - Châssis double ou triple (selon modèle) entièrement usiné.
  - Plateaux traités et rectifiés dureté 600 HV.
  - Dispositifs de centrage rapide des éprouvettes.
  - Encombrement réduit.
  - Hauteur de travail ergonomique.
- c) L'appareil de contrôle de compression des éprouvettes 11\*22 cm.**
  - Compression pour éprouvettes cylindriques et cubiques.
  - Force 2000 ou 3000 kN.
    - Châssis haute résistance entièrement usinée - conforme à la norme EN 12390-4
  - Plateaux de compression en acier traité et rectifié haute résistance.
  - Grilles de protection en inox avec asservissement électrique.
  - Pieds ajourés et anneau de levage pour manutention aisée.
  - Hauteur de travail ergonomique.
  - Poids net : de 1200 kg à 1900 kg (selon force maxi).

### 3.2. Protocole de la préparation des éprouvettes.

Avant d'être utilisé pour les différents essais de compression, de flexion et de lixiviation on mélange les composants de la formulation pendant 120 seconde, la durée de malaxage doit être optimum, afin d'obtenir une pâte mortier homogène et régulière qui répond au norme (EN196-1)[1].

- Introduire le sable normé en premier dans l récipient du malaxeur ; y verser ensuite le ciment puis les résines mélanger le tous manuellement en versant progressivement des petites quantités de l'eau pour aider à son absorption, ainsi pour éviter le débordement de mélange dans le malaxeur ; après mettre le malaxeur en marche à vitesse moyenne.
- Après 30 s de malaxage, introduire régulièrement la quantité de l'eau restante et laisser le tout s'agiter dans le malaxeur pendant les 30 s suivants.
- Arrêter le malaxeur. enlever au moyen d'une raclette en caoutchouc tout le mortier adhérent à la paroi et au fond du récipient en le repoussant ensuite le malaxage vers le milieu de celui-ci.
- Reprendre ensuite le malaxage à grande vitesse pendant 60s.
- Pendant toutes les étapes de malaxage un contrôle visuel s'impose pour suivre l'homogénéité de mélange.
- On verse le mélange dans les moules 4x4x16 cm et les moules 11x22 cm
- On conserve les moules dans les normes à une température de 20°C qui correspond à la température ambiante.

Remarque : le ciment utilisé dans les essais est de classe 35MPa.

### 4. Préparation des essais.

Pour que la préparation les essais passe dans des bonnes conditions il nous faut s'assurer que les sables utilisés sont des sables normalisées et pour cela on a réalisé un tamisage électronique des sables et calculé son taux de l'humidité

#### 4.1. Séchage de sable :

Pour calculer l'humidité de sable, on l'a mis dans une étuve à une température de 80°C pendant 48 heures

- La masse de sable avant le séchage a l'étuve : 3 Kg
  - La masse de sable après le séchage à l'étuve : 2,964 Kg
- L'humidité se sable ne dépasse pas 1,2%, donc on peut le considère comme des sables sèches.



#### 4.2. Tamisage de sable :

Les résultats de tamisage sont représentés dans les figures suivantes :

- **Interprétation des graphes.**

D'après les résultats de tamisage et selon la norme NM 10.1.020 (EN 196-1), le sable utilisé dans les essais est normalisé parce qu'il est composé d'une grande partie des grains de tailles moyennes.

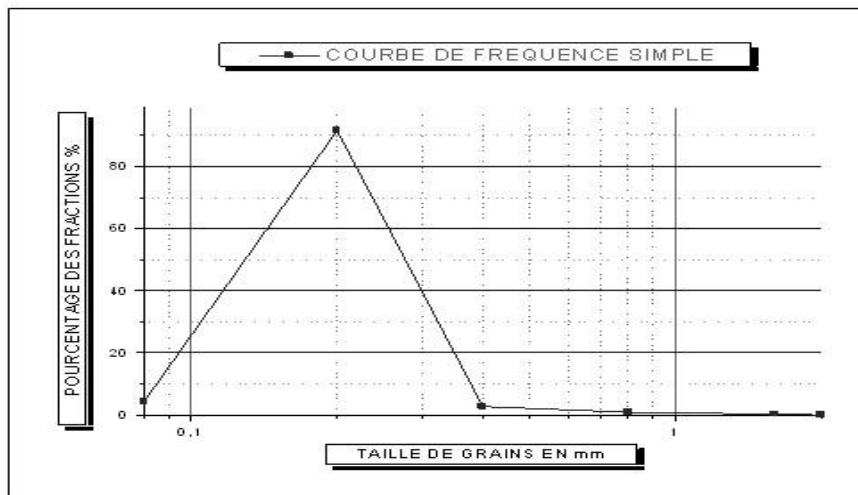


Figure 1 : courbe de fréquence simple

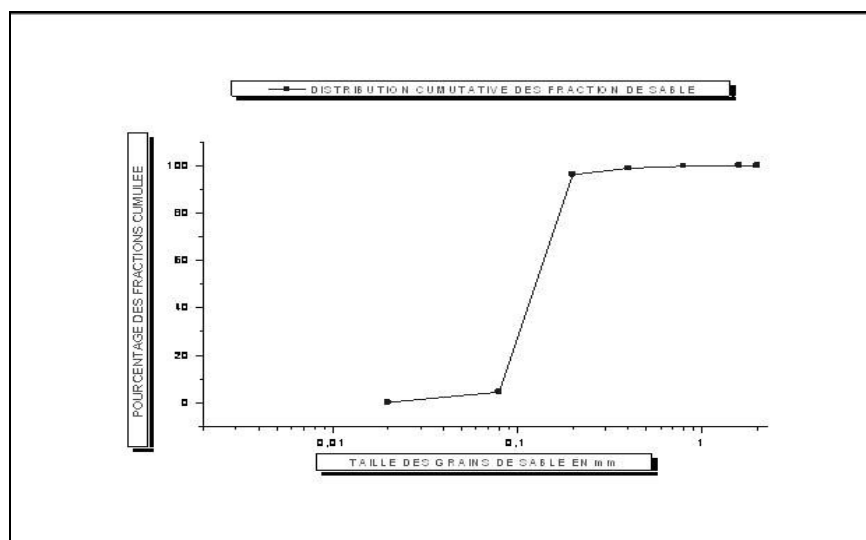


Figure 2 : courbe de fréquence cumulée.

#### 4.3. Formulations des essais.

- Tous les essais sont préparés avec le ciment portland 35 qui répond aux normes NM 10.1.004 et NM 10.1.005.

- Essais 1

Cet essai est préparé avec la formulation 1 (Tableau 1) qui contient 10% de résines échangeuses d'ions, ou il n'y a pas eu d'ajout de sable.

Tableau 1: Formulation 1.

Les ingrédients	Le pourcentage	La masse(Kg)	La date de préparation
Ciment	67,92%	0,453	13/05/2010 10h15min
Résine	10%	0,066	
Eau	22,19%	0,148	

- Essais 2

Cet essai est préparé avec la formulation 2 (Tableau 2) qui comporte 8,3% de résines.

**Tableau 2** : Formulation 2.

Les ingrédients	Le pourcentage	La masse(Kg)	La date de préparation
Ciment	51%	2,721	13/05/2010 11h20min
Résine	8,3%	0,442	
Sable	20,5%	1,094	
Eau	20%	1,072	

• **Essais 3**

Il s'agit d'un essai des éprouvettes témoins sans résine (Tableau 3) qui nous permettra de faire la comparaison de l'effet de sable et le pourcentage de ciment sur la capacité de confinement des matrices et leurs résistances à la compression et la flexion.

**Tableau 3** : essai 3.

Les ingrédients	Le pourcentage	La masse(Kg)	La date de préparation
Ciment	50%	2,668	17/05/2010 11h20min
Sable	25%	1,334	
Eau	25%	1,334	

• **Essais 4**

Il s'agit de même essai que l'essai 2 avec la même formulation 2.

• **Essai 5 et 6**

L'objectif de ces essais est de démontrer l'effet des quantités des résines confinées sur la caractérisation de la résistance des colis de déchets cimentés, et préciser les quantités limites que les formulations peuvent contenir sans apporter de changements aux propriétés mécaniques des colis.

En plus d'essai 2 qui contient 8,3% de la résine, on a préparé deux autres essais avec 15% et 20% de résine (Tableaux 4 et 5). Les deux essais sont préparés avec la formulation 2 de telle façon que les quantités ajoutées de résines étaient réduites de la quantité de l'eau.

**Tableau 4** : essai 5.

Les ingrédients	Le pourcentage	La masse (Kg)	La date de préparation
Ciment	51%	2,721	13/05/2010 11h20min
Résine	15%	0,799	
Sable	20,5%	1,094	
Eau	13,4%	0,735	

**Tableau 5**: essai 6.

Les ingrédients	Le pourcentage	La masse (Kg)	La date de préparation
Ciment	51%	2,721	13/05/2010 11h20min
Résine	15%	1,065	
Sable	20,5%	1,094	
Eau	8,4%	0,469	

• **Essai 7 et 8**

Pour illustrer le rôle que joue le facteur de la granulométrie des grains de sable sur la définition de la résistance mécanique des colis, on a varié la granulométrie de sable, de telle sorte que dans l'essai 7, on gardé tous les grains qui on des diamètres qui varie entre 1,6mm et 0,08mm- comme le montré les courbes de la granulométrie (figure 1- 2), et dans l'essai 8 on n'a gardé que ceux entre 0,2mm et 0,08mm

**Remarque :**

- Pour les essais 1, 2, 3, et 4 on a préparé 5 moule, deux de 4×4×16 et trois de 11×22.
- Les moules 4×4×16 sont pour les contrôles de flexion et de compression par le pupitre de pilotage pour presses.
- Les moules 11×22 sont pour les contrôles de compression.
- On a préparé les essais 5, 6, 7, et 8 avec la formulation 2.

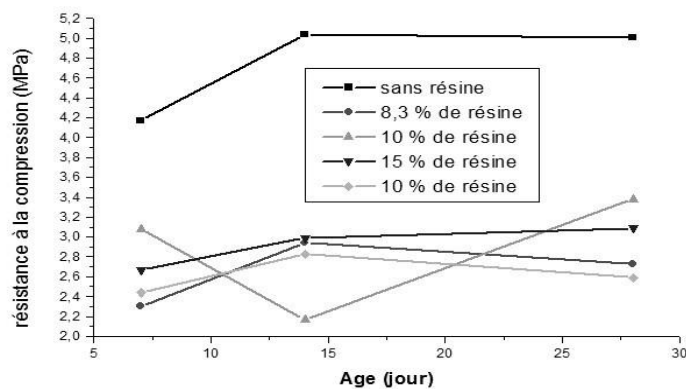
**5. Résultats et discussions**

Les résultats des essais de la compression et la flexion des éprouvettes en fonction de l'âge (7 jours, 14 jours, et 28 jours) [2-3] sont rassemblés dans les figures suivantes :

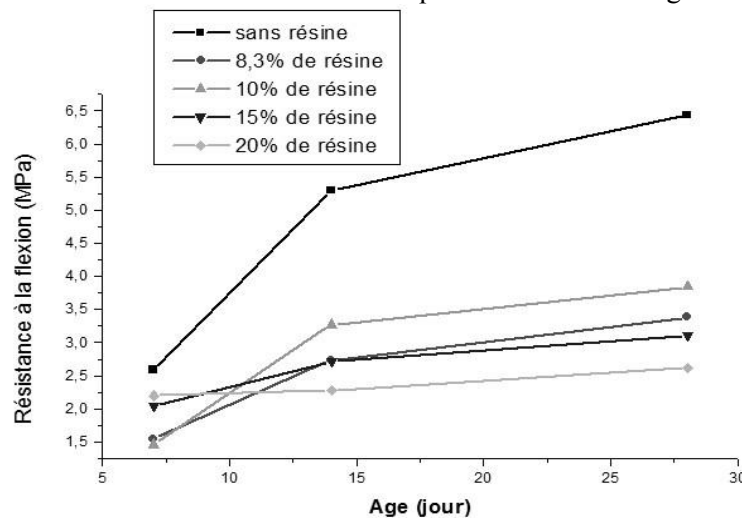
On utilise des éprouvettes normalisées de 4×4×16 cm qui sont d'abord soumises à l'essai de flexion, puis l'on récupère chaque demi prisme pour les essais de compression.

Pour les essais de compression on a préparé 2 éprouvettes 4×4×16 cm pour chaque essai.

Pour matérialiser la différence de croissance les éprouvettes de mortier entre les différents pourcentages des résines incorporées dans la formulation. On a rassemblé les résultats de la résistance à la compression dans le graphe (figure 3), et ceux de la résistance à la flexion dans le graphe (figure 4).

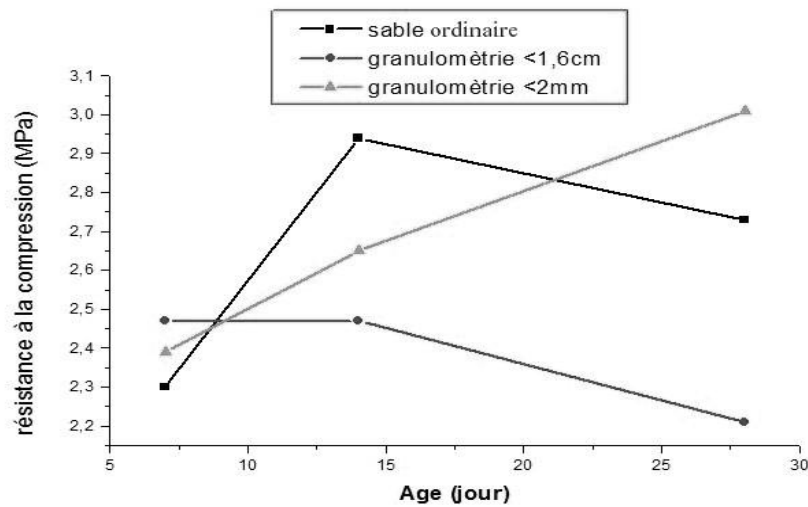


**Figure 3:** Les courbes de la résistance mécanique en fonction de l'âge des éprouvettes.

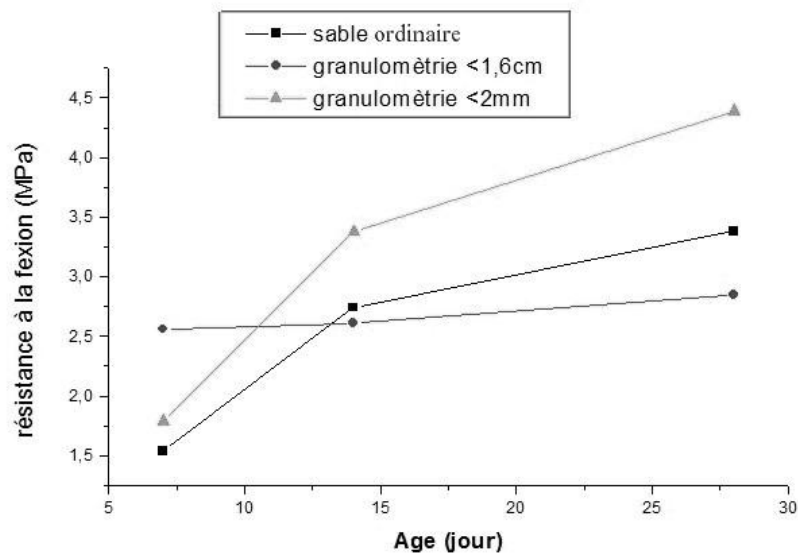


**Figure 4 :** Les courbes de la résistance flexion en fonction de l'âge des éprouvettes.

Pour illustrer le rôle du facteur de la granulométrie sur la variation de la résistance mécanique des colis des résines cimentés, on donne les graphes de la figure (figure 5) et (figure 6) qui représentent de suites les courbe de la résistance à la compression et à la flexion.



**Figure 5** : résistance à la compression en fonction de l'âge des éprouvettes.



**Figure 6** : Les courbes de la résistance à la flexion en fonction de l'âge des éprouvettes.

Les éprouvettes 11×22 ont été effectuées pour faire une comparaison entre une étude ultérieure faite en collaboration avec Laboratoire Public d'Essais et d'Etudes (LPEE) (Tableau 6), les deux résultats s'affairent en harmonie. Donc on peut conclure que les préparations et les contrôles ont été dans le bon sens.

**Tableau 6** : résultats des essais LPEE.

Pourcentage de résines (%)	Date		Résistance à la compression (MPa)
	Fabrication	Essai	
8, 3%	18/06/2008		6,7
0%			7,2

- d'après les courbes (figure 3,4), on constate que le maximum de la quantité des résines qu'on peut incorporer dans une formulation sans que les colis perdent leurs résistances, varie entre 10% et 15%, à l'extérieur de cet intervalle, on assiste à une diminution de la résistance des éprouvettes.
- La granulométrie de sable a un impact très important sur la résistance mécanique, de telle façon à ce que plus le diamètre des grains diminue plus la résistance augmente (figure 5,6), ce qui est dû au fait que les grains de sable fins assurent plus compactibilité sans les colis, parce que la cohésion entre les différents éléments de la formulation est plus élevée, ils éliminent aussi les poches de vides.
- La formulation 1 (Tableau 1) qui contient 10% de résines, a une résistance plus importante que les autres pourcentages de la formulation 2 (Tableaux 2, 3, 4, 5), mais le contrôle visuel a montré l'apparition de plusieurs fissurations qui sont dû au pourcentage très élevé de ciment ajouté dans les colis, on a eu une chute brusque dans la valeur de la résistance à la compression. ce qui nous a amené à ne prendre en considération que les résultats de la formulation 2 ou on n'a pas eu ce problème des fissures, de la même façon, on a remarqué aussi une répartition homogène de différents éléments à l'intérieur des éprouvettes.

### **Conclusion.**

On conclue à la fin de ce rapport, que la formulation de la cimentation des résines échangeuses d'ions que la CNESTEN pouvait appliquer pour le conditionnement de ce type de déchets radioactifs, peut encore supporter des quantités plus élevées de résines.

Les résultats de cette étude ont prouvé que le pourcentage des résines immobilisées dans les colis de ciments peut être augmentés jusqu'à un maximum qui doit être compris entre 10%, et 15%. Les essais ont montrés que dans cet intervalle la résistance à la compression et à la flexion augmentent de manière importante, mais chute une fois qu'on dépasse les extrémités de cet intervalle. Ils ont illustré l'impact de la granulométrie des grains de sable, de telle sorte que les sable qui contiennent des grains de diamètres inférieurs à 0.2mm apporte un ajout supplémentaire à la résistance mécanique des colis de résines cimentés, et ont prouvé la nécessité de l'utilisation de sable pour éviter le problème de la fissuration des colis, ainsi l'entreposage passe dans des conditions plus favorables qui minimisent le risque de l'affaissement de ces colis.

Ainsi la formulation 2 qui contient 51% de ciment, 8,3% de résine, 20,5% de sable, et 20% d'eau, est la plus apte pour le conditionnement des résines, mais on doit y introduire des nouvelles modifications, à savoir l'augmentation des quantités de résines, et l'élimination des grains de sable de diamètres supérieur à 0.2 mm

### **Références**

1. International atomic energy agency, Vienna, Technical Reports Series No. 408: Applications of ions exchange processes for de treatment of radioactive waste and management of spent ion exchanges (2002).
2. Céline Cau Dit Caumes: Cement encapsulation of low-level radioactive slurries of comple chemistry, DESD / SEP / LEMC, CEA Cadarache, 13108 Saint-Paul-Lez-Durance cedex, France.
3. Maria A. C.Gollmann, Marcia M. Da Silvia and all: Stabilization and solidification of Pb il cement matrices (2010) Brazil.
4. Chen Xu: The Research on Ion Exchange Resin of Cement Solidification Treatment, *Energy Procedia* 11 (2011) 4085-4088.

(2012) ; <http://www.jmaterenvironsci.com>