
Study of radioactive strontium capture by crown ether on a solid support in acidic medium level activity effluents

Auteur : Fortin, Cyril

Promoteur(s) : Toye, Dominique

Faculté : Faculté des Sciences appliquées

Diplôme : Master en ingénieur civil en chimie et science des matériaux, à finalité spécialisée

Année académique : 2020-2021

URI/URL : <http://hdl.handle.net/2268.2/11548>

Avertissement à l'attention des usagers :

Tous les documents placés en accès ouvert sur le site le site MatheO sont protégés par le droit d'auteur. Conformément aux principes énoncés par la "Budapest Open Access Initiative"(BOAI, 2002), l'utilisateur du site peut lire, télécharger, copier, transmettre, imprimer, chercher ou faire un lien vers le texte intégral de ces documents, les disséquer pour les indexer, s'en servir de données pour un logiciel, ou s'en servir à toute autre fin légale (ou prévue par la réglementation relative au droit d'auteur). Toute utilisation du document à des fins commerciales est strictement interdite.

Par ailleurs, l'utilisateur s'engage à respecter les droits moraux de l'auteur, principalement le droit à l'intégrité de l'oeuvre et le droit de paternité et ce dans toute utilisation que l'utilisateur entreprend. Ainsi, à titre d'exemple, lorsqu'il reproduira un document par extrait ou dans son intégralité, l'utilisateur citera de manière complète les sources telles que mentionnées ci-dessus. Toute utilisation non explicitement autorisée ci-avant (telle que par exemple, la modification du document ou son résumé) nécessite l'autorisation préalable et expresse des auteurs ou de leurs ayants droit.

Faculty: Applied Sciences
Section: Chemical and Materials
engineering
Academic year: 2020-2021

Author: Cyril FORTIN
Advisor: Christophe WYLOCK
Advisor: Dominique TOYE

Study of radioactive strontium capture by crown ether on a solid support in acidic medium level activity effluents

Abstract

IRE, National Institute for Radioelements, has developed a chemical production process that enables the extraction of three radionuclides: ^{99}Mo , ^{131}I and ^{133}Xe .

This production generates acidic medium-level nuclear waste (acid MLW). This waste is characterised by sodium, aluminium and nitric acid concentrations of 1.25M, 0.5M and 1M respectively and long half-life radioactive contaminants such as ^{137}Cs (30.1 years) and ^{90}Sr (29.1 years) at concentrations of 10^{-5}M and 10^{-6}M .

An internal project at the IRE comprises being able to isolate ^{137}Cs and ^{90}Sr from the acidic MLW on site to improve the safety of the effluents and to reduce their transfer cost.

This master's thesis presents a systematic evaluation of two commercially available strontium-specific extraction resins based on crown ether: SR and TK-100 resins from Triskem International.

A protocol consisting in passing through a resin column a solution of physico-chemical composition equivalent to MLW with an injection of a radioactive tracer (^{85}Sr) is set up. The effluents at the exit of the column are split in 20mL vials and analysed by γ -ray spectrometry to establish from the residual activity in radioactive strontium, the breakthrough curve.

It was shown experimentally that increasing the concentration of nitric acid, decreasing the flow rate, and decreasing sodium ions will increase the capture efficiency. In addition, a modelling stage using the Thomas model will enable results to be extrapolated to get the resin mass required to treat a 2700L tank. Finally, a pre-study on the possibility of regenerating SR resin was carried out, showing its effectiveness on three successive captures.

The method was shown not to be fit-for-purpose. The strontium capture study by SR and TK-100 resins in the dynamic pathway will have to be the subject of new studies to demonstrate their effectiveness.

Etude de la capture du strontium radioactif par une éther couronne sur un support solide dans des effluents acides de moyenne activité

Résumé

IRE, Institut des Radioéléments, a développé un procédé chimique de production permettant d'extraire trois radionucléides: ^{99}Mo , ^{131}I et ^{133}Xe .

Cette production génère des déchets nucléaires acides de moyenne activité (MLW acides). Ces déchets sont caractérisés par des concentrations en sodium, aluminium et acide nitrique de 1.25M, 0.5M et 1M respectivement et de contaminants radioactifs de long temps de demi-vie tel que ^{137}Cs (30.1 ans) et ^{90}Sr (29.1 ans) a des concentrations de 10^{-5}M et 10^{-6}M .

Un projet interne à l'IRE consiste sur site à pouvoir isoler ^{137}Cs et ^{90}Sr des MLW acides afin d'améliorer la sécurité des effluents et réduire leur coût de transfert.

Ce travail présente une évaluation systématique de deux résines d'extraction spécifique au strontium, disponible dans le commerce, basées sur un éther couronne: les résines SR et TK-100 de chez Triskem International.

Un protocole consistant à faire passer au travers d'une colonne de résine une solution de composition physico-chimique équivalente au MLW avec une injection d'un tracer radioactif (^{85}Sr) est mis en place. Les effluents en sortie de la colonne sont fractionnés dans des vials de 20mL et analysées par spectrométrie γ afin d'établir à partir de l'activité résiduelle en strontium radioactif, la courbe de percée.

Il sera montré expérimentalement que l'augmentation de la concentration en acide nitrique, la diminution du débit, la diminution en ions sodium permettront d'augmenter l'efficacité du captage. De plus, une étape de modélisation par application du modèle de Thomas permettra d'extrapoler les résultats afin d'obtenir la masse de résine nécessaire au traitement d'une cuve de 2700L. Enfin, une pré-étude sur la possibilité de régénération de la résine SR est menée montrant son efficacité sur trois captages successives.

La méthode s'est avérée non adaptée au captage du strontium dans les conditions opératoires. L'étude du captage du strontium par les résines SR et TK-100 en voie dynamique devront être sujet à de nouvelles études afin de démontrer leur efficacité.

Study of radioactive strontium capture by crown ether on a solid support in acidic medium level activity effluents

Illustrations taken from the thesis

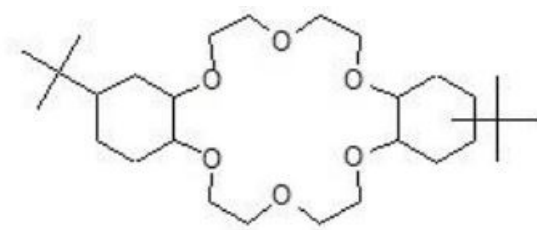


Figure 1: 4,4'(5')-di-t-butylcyclohexano-18-crown-6 (DtBuCH₁₈C₆)



Figure 2: Sampling.

Study of radioactive strontium capture by crown ether on a solid support in acidic medium level activity effluents

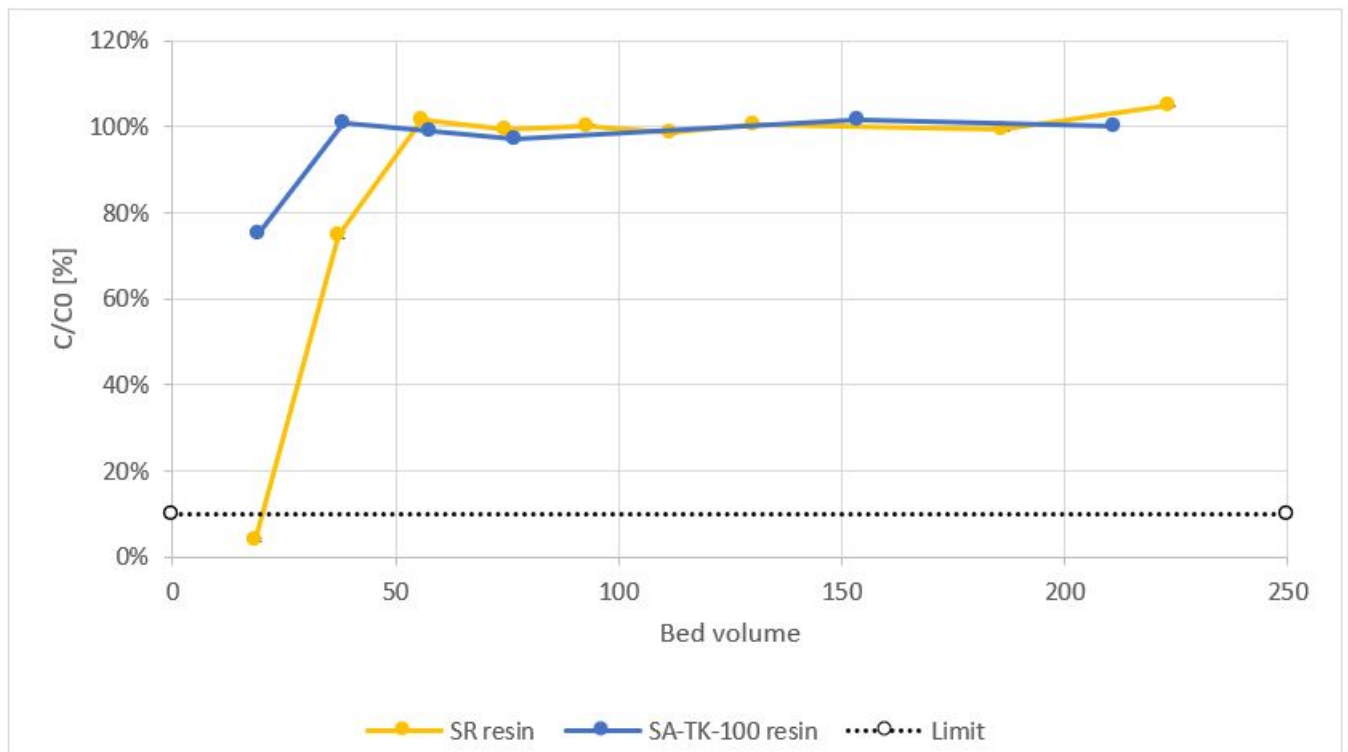


Figure 3: Evolution of C/C_0 as a function of the number of bed volumes passed through the column. SR and TK-100 resins (yellow and blue); $[HNO_3]=1M$; $Q_r=10BV/h$; $V_b=1mL$, MLW solution.

Study of radioactive strontium capture by crown ether on a solid support in acidic medium level activity effluents

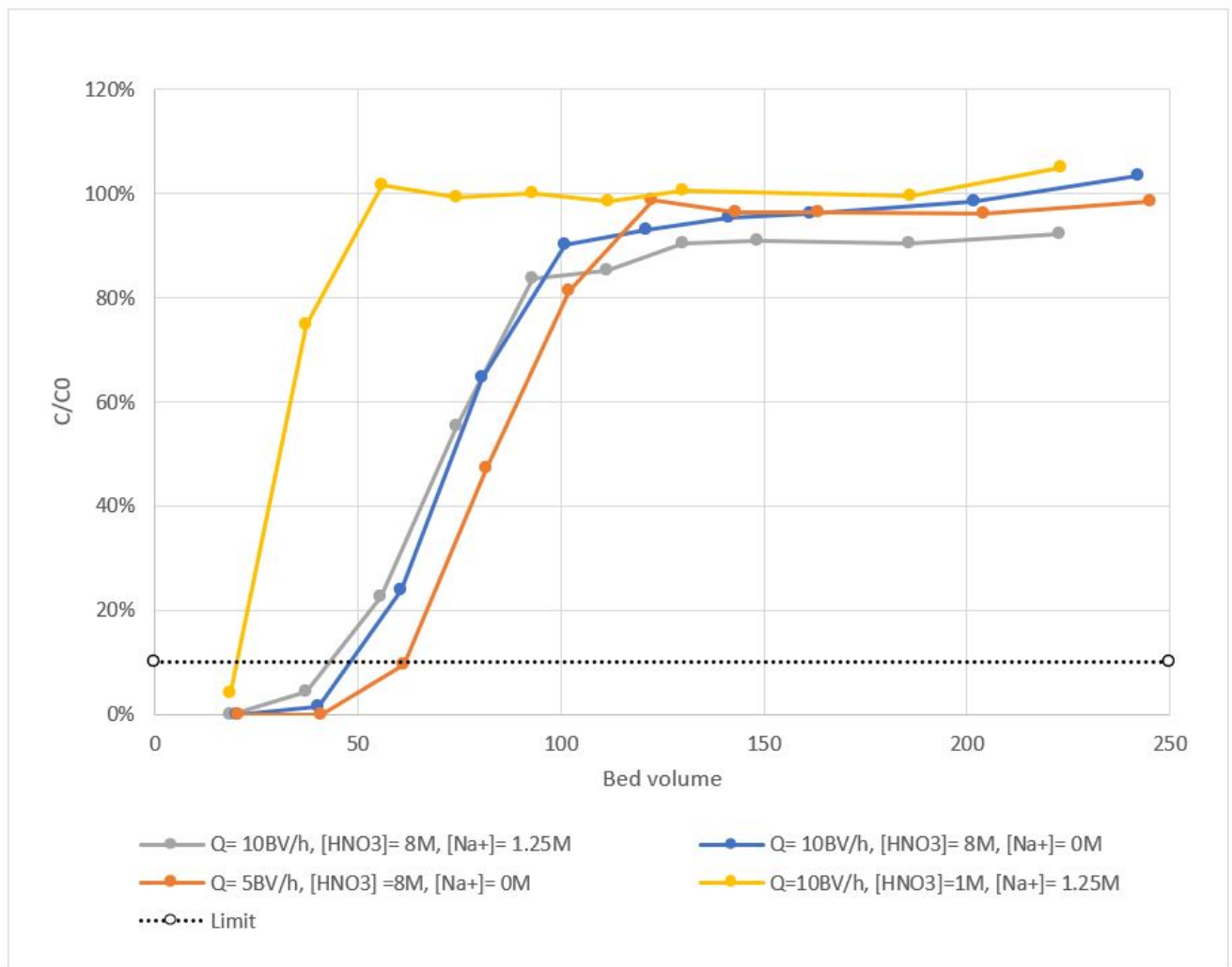


Figure 4: Evolution of C/C_0 as a function of the number of bed volumes passed through the column. SR resin; $V_b=1\text{mL}$; Initial case (yellow); $[\text{HNO}_3]$ variation (grey); $[\text{Na}^+]$ variation (blue); Optimal case (red).

Study of radioactive strontium capture by crown ether on a solid support in acidic medium level activity effluents

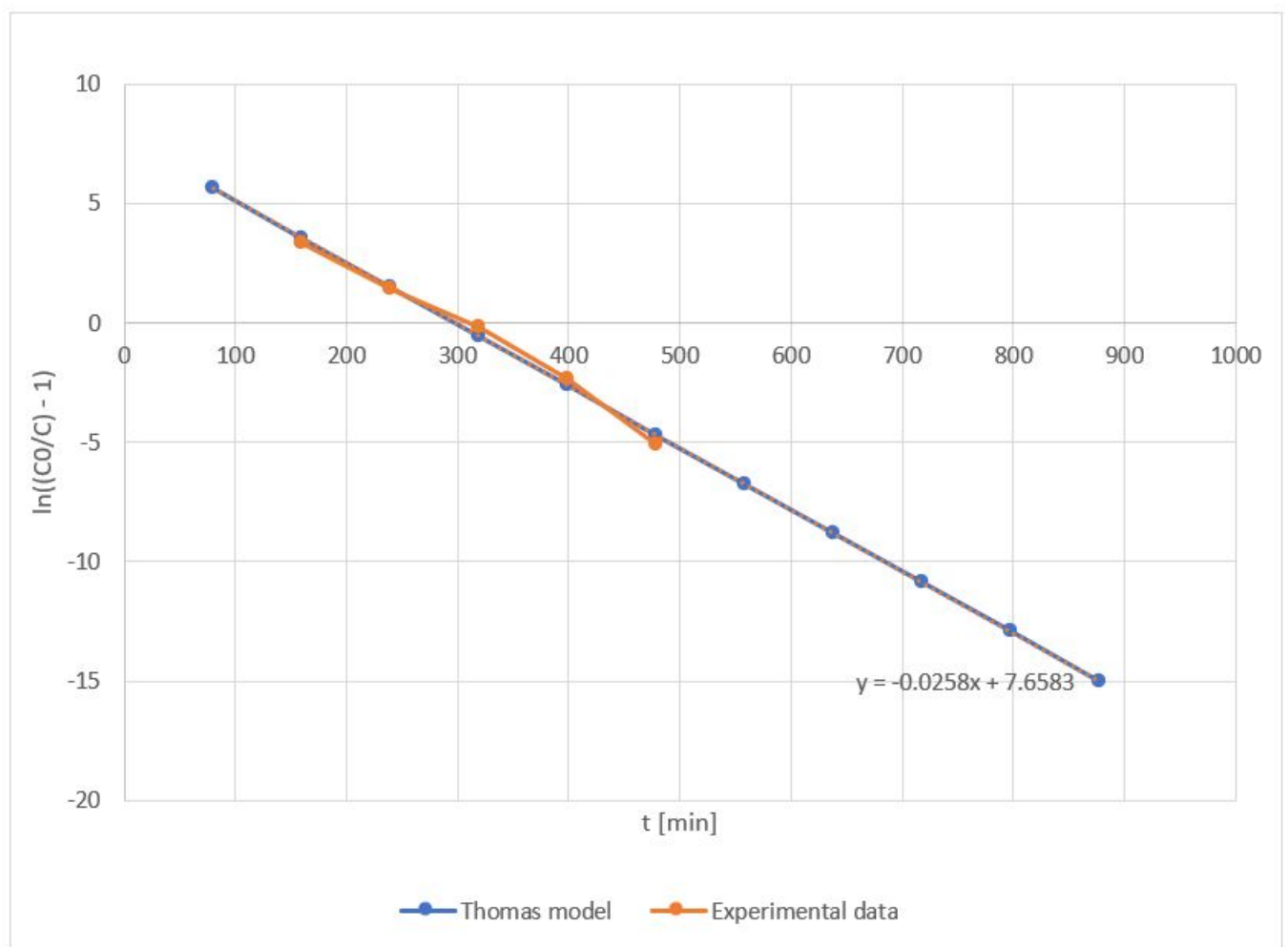


Figure 5: Evolution of $\ln\left(\frac{C_0}{C} - 1\right)$ as a function of time ($t=V_{\text{eff}}/Q$). Experimental data (red) and Thomas model (blue); SR resin; $[\text{HNO}_3]=1\text{M}$; $Q_r=10\text{BV/h}$; $V_b=1\text{mL}$; $[\text{Na}^+]=1.25\text{M}$; $[\text{Al}^{3+}]=0.5\text{M}$; $[\text{Cs}^+]=10^{-6}\text{M}$ and $[\text{Sr}^{2+}]=10^{-5}\text{M}$.

Study of radioactive strontium capture by crown ether on a solid support in acidic medium level activity effluents

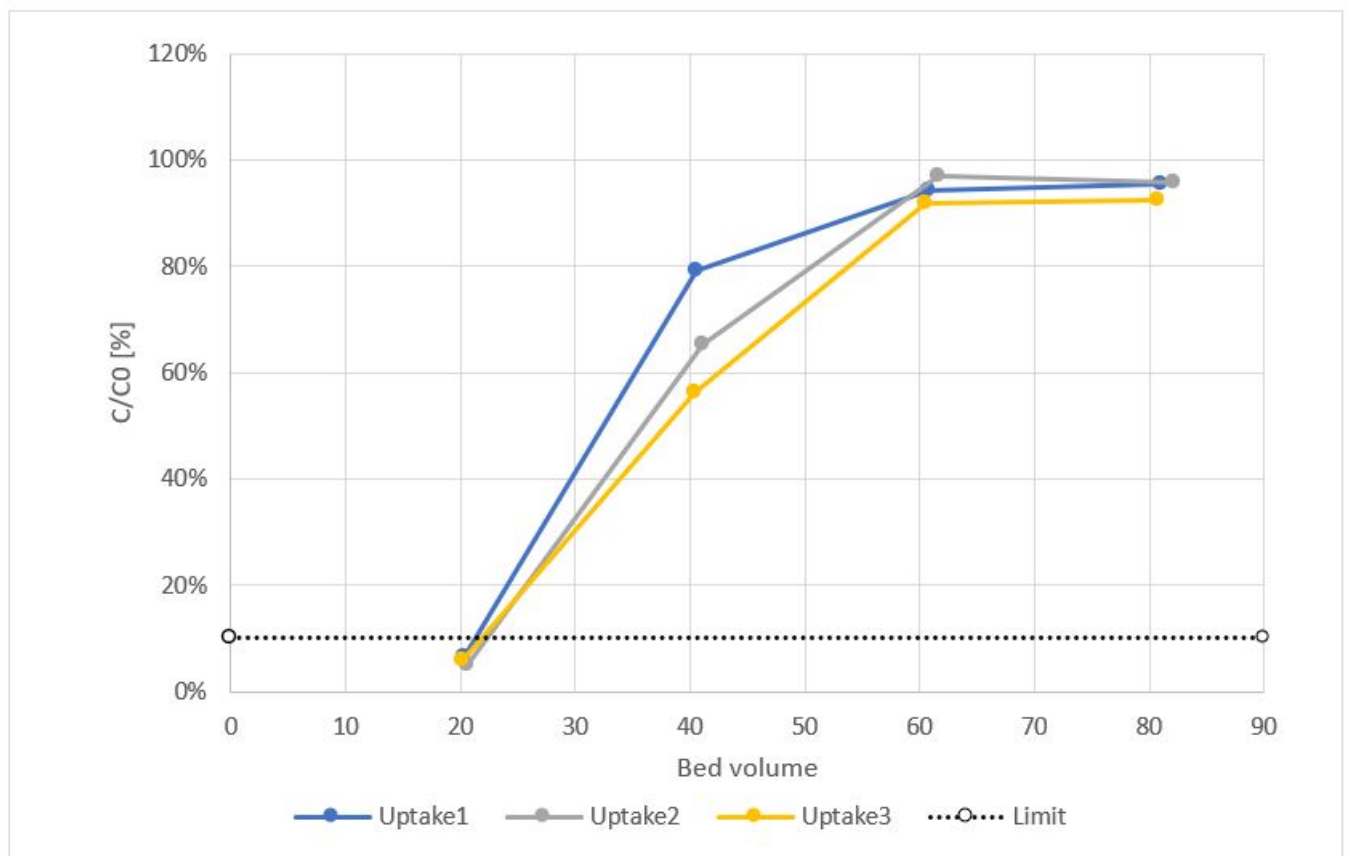


Figure 6: Evolution of C/C_0 as a function of the number of bed volumes passed through the column. SR resin; $[HNO_3]=1M$; $Q_r=10BV/h$; $V_b=1mL$; $[Na^+]=1.25M$; $[Al^{3+}]=0.5M$; $[Cs^+]=10^{-6}M$ and $[Sr^{2+}]=10^{-5}M$.