

Fontenay-aux-Roses, le 20 juillet 2016

Monsieur le Président de l'Autorité de Sûreté Nucléaire

Avis IRSN n° 2016-00245

Objet : CEA : Evaluation technico-économique d'un procédé de traitement d'enrobés de boues bitumées par incinération/vitrification

Réf. : Lettre CODEP-DRC-2016-014266 du 20 mai 2016

Par lettre citée en référence, vous sollicitez l'avis de l'IRSN sur le rapport intitulé « *Rapport PNGMDR 2013-2015 : Évaluation technico-économique d'un procédé de traitement d'enrobés de boues bitumées par incinération / vitrification* » transmis par le CEA au ministre chargé de l'énergie. Ce document a été établi dans le cadre de l'article 19 II 3° du décret n°2013-1304 du 27 décembre 2013 pris pour application de l'article L. 542-1-2 du code de l'environnement et établissant les prescriptions du Plan national des matières et déchets radioactifs 2013-2015, stipulant que : « *Le CEA remet aux ministres chargés de l'énergie, de la sûreté nucléaire et de la défense, pour le 31 décembre 2013, un rapport sur l'analyse technique et économique concernant l'évaluation du traitement chimique ou thermique de composés bituminés pour tenter d'immobiliser dans d'autres matrices les déchets radioactifs qu'ils contiennent. Dans ce rapport, les capacités futures d'entreposage nécessaires sont précisées par le CEA en tenant compte des résultats d'étude des différents scénarios de gestion envisagés pour ces déchets et des données fournies par l'ANDRA.* ».

Adresse courrier
BP 17
92262 Fontenay-aux-Roses
Cedex France

Siège social
31, av. de la Division Leclerc
92260 Fontenay-aux-Roses
Standard +33 (0)1 58 35 88 88
RCS Nanterre B 440 546 018

Conformément à votre demande, le présent avis de l'IRSN restitue son analyse de « *l'importance des verrous technologiques identifiés par le CEA et leur caractère bloquant pour le traitement des bitumes* ».

1. Éléments de contexte

L'inventaire total des colis d'enrobés bitumés de responsabilité CEA représente à ce jour environ 62 000 fûts, produits par le Station de Traitement des Effluents Liquides (STEL) du CEA de Marcoule depuis 1966. Ces effluents radioactifs de diverses provenances, sont traités par ajout de sels de co-précipitation puis bitumage des boues obtenues, dont :

- environ 29 000 fûts de catégorie Moyenne Activité à Vie Longue (MAVL), inscrits dans l'inventaire du Programme Industriel de Gestion des Déchets de l'installation de stockage souterrain en projet (intégrant la production restant à venir à la STEL de Marcoule) ;
- environ 33 000 fûts de catégorie Faible Activité à Vie Longue (FAVL) pour lesquels un stockage en sub-surface dans une future installation dédiée est envisagé.

Ces fûts, entreposés sur le site du CEA de Marcoule, font actuellement l'objet d'un reconditionnement en surfût, suite au débordement d'un grand nombre d'entre eux (gonflement de la matrice bitumineuse induit par la production interne d'hydrogène de radiolyse).

2. Description de l'étude menée par le CEA

Le rapport du CEA « *Rapport PNGMDR 2013-2015 : Évaluation technico-économique d'un procédé de traitement d'enrobés de boues bitumées par incinération / vitrification* » porte sur l'analyse de la faisabilité industrielle et le rapport coût/bénéfice d'une solution de conversion des enrobés bitumés en un déchet vitrifié par un procédé d'incinération/vitrification.

Quatre essais ont été réalisés sur l'installation SHIVA du CEA (Système Hybride d'Incinération Vitrification Avancé), entre 2003 et 2005. Ce dispositif expérimental consiste en un four de fusion chauffé par induction (creuset froid), équipé d'un système de torches jumelées à plasma d'oxygène. Les torches à plasma d'oxygène permettent d'oxyder la matière organique à haute température (le plasma atteint des températures supérieures à 6000°C). Chacun des quatre essais a mis en jeu une quantité maximale de 20 kg d'enrobé bitumé reconstitué, sur une durée maximale de 8 heures environ. Pour chaque essai, le four contenait un volume de 50 kg de fritte de verre chauffée par induction entre 1200°C et 1400°C, avant le début de l'alimentation progressive de l'enrobé bitumé entre les 2 torches à plasma d'oxygène. Le premier essai visait à tester l'efficacité de la combustion de la matrice bitume ne contenant que le sel BaSO₄ et la diatomée, principaux composés minéraux des enrobés de boues bitumées. Le second essai visait à tester l'efficacité de l'incorporation du BaSO₄ dans la fritte de verre en fusion. Le troisième essai visait à tester le comportement d'un enrobé contenant l'ensemble des principaux sels d'une famille considérée représentative d'enrobés bitumés produits à la STEL de Marcoule. Le quatrième essai visait à tester, d'une part le comportement d'une seconde famille de composition

chimique représentative de la production de la STEL de Marcoule, d'autre part à évaluer les quantités de poussières entraînées vers le dispositif de traitement des gaz.

Sur la base du retour d'expérience de ces quatre essais, le CEA identifie dans son rapport les verrous technologiques ou de procédés, synthétisés ci-dessous :

- Alimentation du four : l'alimentation de l'enrobé dans le cœur de procédé au niveau des torches à plasma a été réalisée par chauffage préalable vers 50-60 °C de l'enrobé, en dehors du four, pour permettre un entraînement gravitaire dans le four. L'assistance d'un dispositif mécanique (- vis sans fin) a été nécessaire. Ce système ne s'est pas révélé performant du fait de colmatages entraînant des variations du débit d'alimentation entre les torches à plasma. Il a été conclu à la nécessité d'un broyage mécanique préalable de l'enrobé à une taille inférieure au centimètre. Cela ne peut s'envisager selon le CEA qu'avec une étape de cryotraitement préalable (congélation des fûts à -60 °C) puis concassage, dont la faisabilité en environnement nucléaire n'a pas été étudiée par le CEA ;
- Rendement de combustion : la combustion du bitume au cours des essais technologiques n'a pas été complète. Des résidus (plusieurs pourcents) organiques se sont déposés sur les pièces internes du dispositif SHIVA ;
- Traitement des gaz : le traitement des gaz nécessite un dimensionnement conséquent en regard des poussières et éléments volatilisés tels que les SO_x, NO_x, CO/CO_x issus de la décomposition des sels et du bitume, ainsi que ceux issus de la réduction des éléments métalliques volatiles. Le dispositif actuel n'a pas permis d'évaluer la faisabilité d'un recyclage continu des poussières, en régime stationnaire. Un dispositif nouveau, différent du pré-filtre testé, serait à concevoir. Par ailleurs, l'acceptabilité environnementale des rejets de ce type de gaz potentiellement radioactifs n'a pas été étudiée ;
- Décomposition des sels et intégration dans la matrice vitreuse : Les schémas de décomposition des sels de co-précipitation enrobés dans les bitumes (sulfates, nitrates, ...) sont complexes au niveau des torches à plasma, ainsi qu'à la surface et dans le bain de verre. Le sel prépondérant est le BaSO₄ et dimensionne la décomposition en température (nécessité théorique de monter à 1900 °C). L'objectif à atteindre est en effet de faire entrer l'oxyde prépondérant BaO (ainsi que les oxydes des autres sels), ainsi que tous les radionucléides sorbés sur les sels, dans le verre fondu, afin d'obtenir in fine une matrice homogène, caractérisée par une insertion des radionucléides dans le réseau vitreux silicate. Les sulfates SO₄²⁻ décomposés en température à partir du sel BaSO₄ sont alors à évacuer sous forme gazeuse, vers le dispositif de traitement des gaz du procédé, à des fins de piégeage. Le sulfate de baryum se décompose spontanément à environ 1900 °C en SO₂ et BaO. Si ce sulfate est mis en présence de silice (le verre fondu), la température de décomposition est abaissée à environ 1300 °C. Dans un traitement visant à l'incorporation de la charge minérale BaO dans un bain de verre, la silice, qui permet la formation de silicate de baryum, est apportée par le verre en fusion. La possibilité d'amener une quantité de chaleur suffisante dans un bain de

verre peut être assurée par la mise en place de torches à plasma en surface. Le contact optimal entre le plasma, l'enrobé et la fonte verrière est indispensable pour assurer conjointement l'apport thermique en vue de la dissociation du sel, et les conditions chimiques favorables à cette dissociation. Un tel contact ne semble pas avoir été obtenu dans les essais présentés, selon le CEA ;

- Gestion du flux de matières fissiles : un autre aspect particulièrement dimensionnant pour le fonctionnement de l'installation est celui relatif à la gestion des matières fissiles. Chaque fût d'enrobé bitumé peut contenir en moyenne 370 g d'U (de 0,7 à 1,65% de ²³⁵U) et 1,2 g de Pu, avec des valeurs extrêmes égales à respectivement 7000 g d'U/fût et 16 g de Pu/fût. Il est par conséquent impératif d'évaluer la capacité à maîtriser en ligne le bilan des matières au cours du fonctionnement du procédé.

En regard de ces arguments, le CEA conclut que « *la faisabilité d'une incinération/vitrification des enrobés bitumés n'est pas démontrée* », et que pour lever ces verrous, dix années de R&D seraient nécessaires.

3. Avis de l'IRSN

L'IRSN convient que les difficultés identifiées par le CEA pour le traitement par incinération/vitrification des enrobés bitumés nécessitent des investissements conséquents pour être résolues. L'IRSN observe toutefois que ces difficultés relèvent de l'industrialisation du procédé et non de sa faisabilité physico-chimique. A cet égard, l'IRSN rappelle qu'à l'issue des premières études portant sur ce procédé, qui comprenaient la réalisation de certains des essais dans l'installation SHIVA décrits précédemment, le CEA concluait que l'incinération/vitrification de matrices bitumées apparaissait « complément faisable » avec de bons résultats obtenus sur l'intégration des sels dans le verre (cf. *Bituminous media processing by incineration vitrification*, C. Girold, O. Pinet, Conférence ATALANTE 2004, Nîmes, 21-25 juin 2004). Concernant l'industrialisation de ce type de procédé, l'IRSN note qu'une installation d'incinération/vitrification, basée sur la technologie des torches à plasma, est opérationnelle depuis 2001 en Suisse (installation ZWILAG). Cette installation traite des déchets de faible activité, dont des déchets organiques, par incinération sous une torche à plasma à une température de 20 000°C puis vitrification. Pour cette installation, la maîtrise de l'émission de gaz issus de la décomposition thermique de déchets radioactifs organiques apparaît résolue. En outre, l'IRSN estime qu'il conviendrait d'examiner si les verrous identifiés par le CEA concernant l'atteinte de températures suffisantes pour la décomposition des sels et l'obtention d'un verre homogène puissent être contournés en développant la capacité thermique du plasma à l'instar de l'installation suisse. Enfin, l'IRSN rappelle que le CEA participe au développement avec AREVA NC d'un procédé d'incinération/vitrification de déchets technologiques contaminés alpha (procédé PIVIC) pour lequel la perspective d'une industrialisation ne présente pas d'obstacle technologiques majeurs à ce stade. **Aussi, l'IRSN estime que le retour d'expérience ne montre**

pas d'obstacle rédhibitoire à la mise en œuvre industrielle d'un procédé thermique pour le traitement de déchets radioactifs organiques.

S'agissant des perspectives de mise au point d'un procédé permettant de traiter les déchets bitumés, l'IRSN observe que des investigations sur les possibilités de traitements chimiques préalables au traitement thermique, pourtant évoqués dans la demande du PNGMDR, ne figurent pas dans l'étude remise par le CEA. Seule l'existence d'une étude exploratoire au SCK/CEN belge, portant sur un traitement d'extraction des sels après dissolution des enrobés bitumés dans un solvant organique est mentionnée, sans qu'en soient tirés des enseignements particuliers. L'IRSN estime que ce type de procédé pourrait faire l'objet d'étude en tant que pré-traitement visant à contourner certains verrous identifiés par le CEA. Il conviendrait à cet égard d'examiner si la dissolution des enrobés bitumés dans un solvant adéquat pourrait favoriser l'alimentation du four d'incinération et la complétude de la combustion, sans générer de risques majeurs pour la sûreté de l'installation. En outre, un traitement chimique sur l'enrobé dissout pourrait également être recherché pour favoriser la décomposition des sulfates de baryum et autres sels. A cet égard, l'IRSN estime que si la meilleure intégration possible des sels décomposés dans le verre est souhaitable, une tolérance sur la qualité de l'incorporation peut a priori être admise, compte-tenu du bénéfice qu'une matrice vitreuse, même de moindre homogénéité, pourrait apporter par rapport à une matrice bitumineuse, eu égard à la maîtrise des risques en situation de stockage.

L'IRSN rappelle enfin que l'objectif principal d'un traitement des enrobés bitumés vise à rendre le déchet inerte en vue de limiter au mieux les possibles dégradations des barrières de confinement dans l'installation de stockage qui pourrait les recevoir, du fait du caractère réactif, thermiquement activable, des enrobés bitumés (les réactions entre sels, ou entre les sels et le bitume sont exothermiques et peuvent ainsi mener à une inflammation du bitume). Du point de vue de l'IRSN, l'avantage recherché par l'usage d'autres matrices de blocage des sels radioactifs que le bitume, comme évoqué dans la demande du décret du PNGMDR, tient dans limitation la plus drastique de risques (débordement, inflammation...) induits par ces déchets, dans des opérations de transport, d'entreposage, ou de stockage en phase d'exploitation. Par ailleurs, en situation de stockage et à long terme, une matrice carbonée comme le bitume peut favoriser la complexation des radionucléides sous des formes plus mobiles dans le milieu géologique, et constituer un réservoir de nutriments pouvant favoriser les mécanismes de bio-corrosion des aciers dont les conséquences restent difficiles à évaluer.

Compte-tenu d'une part de la capacité d'un traitement thermique à neutraliser la réactivité des déchets, et en conséquence à éliminer la quasi-totalité des risques précités pour leur stockage, d'autre part de l'absence d'obstacle rédhibitoire identifié à ce stade pour sa mise en œuvre, l'IRSN estime que les études relatives à l'industrialisation d'un tel procédé doivent être poursuivies, en intégrant le cas échéant la possibilité de pré-traitements chimiques, ainsi que mentionné précédemment. L'IRSN rappelle néanmoins que les boues bitumées ne sont pas les seuls déchets réactifs existants ou continuant d'être produits, et note que les estimations actuelles des coûts associés à la réalisation d'une installation

d'incinération/vitrification sont conséquentes. Aussi, l'IRSN recommande que les efforts soient mutualisés, notamment entre le CEA et AREVA, pour la mise au point d'un procédé permettant d'accueillir la gamme la plus large possible de déchets réactifs, notamment organiques, et offrant l'opportunité d'une solution durable pour le traitement de ces déchets dans l'hypothèse d'une poursuite de la production d'électricité d'origine nucléaire et de retraitement du combustible irradié.

Pour le Directeur général et par ordre,

François BESNUS

Le Directeur des déchets et de la géosphère