

Plan national de gestion des matières et déchets radioactifs 2016-2018

Article 49 de l'arrêté PNGMDR du 23 février 2017

Rapport d'étape présentant l'état d'avancement à fin 2018 des travaux de développement du procédé d'incinération / vitrification (PIVIC) visant à conditionner les déchets MA-VL organiques riches en émetteurs alpha

Note technique référence DM2D NT 2018-077

Rapport d'étape
présentant l'état
d'avancement à fin 2018
des travaux de
développement du
procédé d'incinération /
vitrification (PIVIC) visant
à conditionner les déchets
MA-VL organiques riches
en émetteurs alpha

17 décembre 2018

Sommaire

Glossaire	3
1. Demande du PNGMDR	4
2. Contexte	4
2.1. Déchets	4
2.1.1. Origine	4
2.1.2. Nature	5
2.1.3. Flux	6
2.2. Procédé	7
3. Procédé thermique PIVIC	9
3.1. Descriptif du procédé	9
3.2. Etude d'industrialisation	11
3.3. Risques liés au procédé	11
3.3.1. Dispersion des matières radioactives	11
3.3.2. Exposition radiologique	12
3.3.3. Criticité	13
4. Thématique de R&D	14
4.1. Descriptif des principaux éléments et des attendus de R&D	14
4.1.1. Procédé, Matériaux, Durabilité	14
4.1.2. Descriptif des prototypes / maquettes et finalités	15
4.1.3. Mesures nucléaires	17
4.2. Résultats de R&D déjà acquis et perspectives	18
4.2.1. Procédé	18
4.2.1.1 Incinération des organiques sur le pilote SHIVA	18
4.2.1.2 Gestion des chlorures métalliques	19
4.2.2. Colis	20
4.2.2.1 Matériaux	20
4.2.2.2 Connaissance colis vis-à-vis du comportement à long terme	22
4.2.3. Résultats de la R&D sur les mesures nucléaires	22
4.3. Descriptif préliminaire du colis	24
4.3.1. Principe	24
4.3.2. Dimensions	25
4.3.3. Contenu du can	25
5. Calendrier du projet	26
6. Conclusion	27

Glossaire

APS : Avant Projet Sommaire

APD : Avant Projet Détaillé

can : Creuset d'élaboration, siège de la fusion-vitrification

CLT : Comportement à Long Terme

D/E-EB : Désentreposage / Extension - Entreposage fûts de Bitume

DOC : Dossier d'Options de Conditionnement

DOS : Dossier d'Options de Sûreté

EP : Enquête Publique

IN CAN : Procédé de vitrification en pot de fusion perdu reposant sur l'utilisation du conteneur final comme creuset de traitement

LCV : Laboratoire Commun de Vitrification

MIVE : Maquette Incinération Vitrification Evolutive

MOx : Mixed Oxyde

N3S : Non Susceptible d'un Stockage en Surface

PACT : Plasma Arc Centrifugal Treatment

PIVIC : Procédé d'Incinération Vitrification In Can

Pu : Plutonium

SHIVA : Système Hybride d'Incinération Vitrification Avancé

STE3 : Station de Traitement des Effluents Liquides 3 (INB 118)

1. Demande du PNGMDR

Pour la période 2016-2018, l'arrêté du 23 février 2017 pris en application du décret n° 2017-231 du 23 février 2017 pris pour application de l'article L. 542-1-2 du code de l'environnement et établissant les prescriptions du Plan national de gestion des matières et des déchets, demande à son article 49 :

« Areva, en lien avec le CEA et l'ANDRA, poursuit les travaux de développement du procédé d'incinération/vitrification (PIVIC) visant à conditionner les déchets MA-VL organiques riches en émetteurs alpha en vue d'une mise en service à l'horizon 2030.

Areva fournit au ministre chargé de l'énergie avant le 31 décembre 2018 un rapport d'étape sur ces travaux.

L'ASN est saisie pour avis sur ce rapport. »

En l'état actuel du projet de R&D associé au développement et à la qualification du procédé PIVIC associant fusion de métal, destruction par torche plasma des organiques et vitrification des cendres, la présente note technique constitue le rapport d'étape présentant l'état d'avancement à fin 2018 des travaux de développement du procédé d'incinération / vitrification (PIVIC) visant à conditionner les déchets MA-VL organiques riches en émetteurs alpha.

2. Contexte

2.1. Déchets

2.1.1. Origine

Ces déchets technologiques contenant des matières organiques et riches en éléments émetteurs alpha, non susceptibles d'un stockage en surface et appelés simplement N3S par la suite, proviennent :

- Des usines françaises de fabrication de combustible à base d'oxyde mixte (MELOX, AtPu de Cadarache) ;
- Des ateliers alpha de l'établissement de la Hague (UP2-800 ; UP3-A ; UP2-400).

Ils sont générés par :

- Les opérations d'exploitation et de maintenance principalement ;
- Des opérations de reprise et de conditionnement des déchets (RCD), de cessation définitive d'exploitation et de démantèlement, en cours et à venir.

Ces déchets sont donc majoritairement produits par l'exploitation de l'usine de MELOX, et dans une moindre mesure par les activités liées au démantèlement de l'AtPu à Cadarache et par celles de l'Etablissement de la Hague.

Ces déchets sont actuellement pré-conditionnés en fûts de 118 ou 120 L, et sont entreposés pour la majeure partie dans D/E-EB, une des installations de l'atelier STE3 implanté sur le site de la Hague.

2.1.2. Nature

Les déchets N3S, objets de ce document, sont essentiellement des déchets actifs « riches » provenant des boîtes à gants. Ces déchets font l'objet d'un tri à la source et sont collectés de manière sélective en différentes familles, principalement :

- Les organiques : gants de boîte à gants, chiffonnettes, tapes, hublots, plastique... ;
- Les déchets métalliques et divers : équipements électriques et mécaniques défectueux, organes mécaniques d'usure, outillages liés à la production ou à la maintenance ;
- Les filtres : 1^{ère} barrière, 2^{ème} barrière, pré-filtres des rectifieuses, filtres de laboratoire, filtres d'aspirateurs mobiles et filtres d'instrumentation de boîte à gants.

Dans le rapport DIRP NT 11-00189 remis en février 2012 dans le cadre du PNGMDR 2010-2012, une autre famille était citée : celle constituée par les boîtes vides de dioxyde de plutonium en acier inoxydable. Depuis mai 2013, l'usine de MELOX a mis en œuvre la décontamination de ces boîtes et ces déchets ne sont donc plus N3S. Il est à noter, toutefois, que les boîtes produites jusqu'à mai 2013 sont à conditionner en tant que déchets N3S.

D'autre part, il convient de mentionner que des organiques sont présents dans tous les fûts. En effet, les prescriptions techniques des ateliers produisant ces déchets imposent de sortir les déchets de boîtes à gants dans un double-sachet soudé (en PVC) pour assurer le confinement des matières et la protection des travailleurs.

2.1.3. Flux

D'après les estimations actuelles, le nombre prévisionnel de fûts N3S est d'environ 28 000 fûts.

Ce nombre de fûts inclut :

- L'inventaire des déchets produits jusqu'à fin 2018 ;
- Le prévisionnel des déchets produits à partir de 2019.

Les inventaires et prévisionnels pourront être ajustés.

La masse d'un fût de 120 L est d'environ 55 kg.

L'estimation du gisement est susceptible d'évoluer à la baisse notamment grâce aux actions visant à limiter les déchets N3S d'une part et d'autre part de densification entreprises par Mélox. En effet, l'usine de MELOX a mis en œuvre des actions de progrès pour réduire le nombre de fûts N3S collectés, qui reposent notamment sur le nettoyage systématique des postes de travail et sur un remplissage optimisé des fûts de déchets.

A titre d'illustration, alors que l'usine de MELOX a produit environ 700 fûts N3S en 2010, elle n'en a produit que 450 en 2013 et environ 350 en 2017. Ainsi, le ratio de fûts N3S collectés par tonne de produits MOx était d'environ 17 en 1996, il était inférieur à 4 en 2012 et a été ramené à 3 fûts par tonne de produits MOx en 2013. Ce ratio reste proche de 3 pour l'année 2017.

Parmi les actions opérationnelles, on peut citer :

- L'optimisation de la pré-filtration des boîtes à gants de rectification, en remplaçant les filtres actuels par des filtres métalliques en fibres inox frittées à longue durée de vie (optimisation réalisée en 2014-2015 pour les unités de rectification et tri d'aspect PRX/PRY, en 2016-2017 pour l'unité de Traitement des filtres VDR, en 2017 pour l'unité d'Entreposage / Reconditionnement des étuis et l'unité de Rectification / Mise en clayettes PRZ).
- La réduction de la consommation des filtres aérauliques sur les aspirateurs de matière en BâG avec substitution des filtres par des doubles cyclones (action réalisée pour l'ensemble des unités concernées).
- La décontamination des boîtes de dioxyde de plutonium en ligne à l'usine de MELOX (déjà évoqué précédemment). Cette décontamination est réalisée à l'aide d'un dispositif à ultra-sons installé dans une boîte à gants (annexe à la production). Un projet de mise en place d'une sonde identique est en cours sur l'unité de dépotage / dosage NDD afin d'évacuer les boîtes Pu propre à leur sortie de BâG. Cette opération évite le foisonnement lors du traitement à postériori.

- La maintenance de sous-ensembles mécaniques défailants, dans une boîte à gants dédiée, alors qu'auparavant ces équipements étaient évacués directement en déchets (action réalisée pour l'ensemble des unités concernées).
- Le polissage des panneaux des boîtes à gants de l'atelier "Poudres" (action réalisée).

2.2. Procédé

Dans la Décision 2010-DC-0176, l'ASN met en avant la sûreté du stockage, et sous-entend de manière implicite que la présence d'organiques, en particulier dans le cas des déchets contaminés par des émetteurs alpha, nuit à celle-ci.

Ainsi, la R&D initiée en 2010 par Orano suite à la Décision ASN a été orientée vers des procédés détruisant ces organiques, mais acceptant tous les déchets concernés, soit un procédé permettant d'accepter la majeure partie des déchets contaminés en émetteurs alpha produits. Etant donné les contraintes de délai, le procédé de traitement recherché devait être basé sur des éléments technologiques existants, issus à la fois d'études et développements menés par le CEA et d'installations industrielles en fonctionnement.

A l'issue de la phase d'orientation de la R&D, une technologie a été retenue : le procédé d'incinération-fusion-vitrification à l'aide de torches plasma.

Dans la mesure où il n'existe aucune technologie dont la nucléarisation est effective, et industrialisable directement et immédiatement transposable aux déchets technologiques contenant de la matière organique et contaminés en émetteurs alpha, deux approches ont été étudiées :

- L'adaptation et la nucléarisation d'un procédé industriel existant, la technologie à bol tournant type PACT (Plasma Arc Centrifugal Treatment), telle que mise en œuvre par Zwiilag en Suisse, pour traiter des déchets de faible activité, provenant de réacteurs nucléaires ;
- Le développement d'une nouvelle technologie en se basant en partie sur des éléments technologiques existants et bénéficiant de l'expérience du CEA (technologie IN CAN : procédé PIVIC).

Le procédé de type PACT a finalement été écarté pour les raisons suivantes :

- Il impliquait l'utilisation de matériaux réfractaires qui aurait généré des déchets secondaires en quantité importante. Par ailleurs, ces matériaux présentent une certaine porosité qui offre des surfaces sujettes à l'encrassement d'où un taux de rétention de matière très supérieur à celui d'une paroi métallique. Cette situation présenterait un inconvénient important vis-à-vis de la performance d'incorporation des déchets dans le can, sachant que toute rétention pénalise la quantité admissible maximale de matière fissile dans le procédé en raison de la maîtrise du risque criticité.
- Compte-tenu de la présence de plutonium, la phase de coulée peut potentiellement induire un risque de dispersion de matière radioactive.

3. Procédé thermique PIVIC

3.1. Descriptif du procédé

Le procédé aujourd'hui en cours de développement pour le traitement des déchets technologiques mixtes (métalliques et organiques) contaminés en émetteurs alpha N3S, est un procédé IN CAN avec fusion de métal, destruction par torche plasma des organiques et vitrification des cendres.

PIVIC, tel qu'imaginé aujourd'hui, comprend un réacteur qui comporte deux parties (Figure 1) :

- Une partie inférieure constituée d'un can métallique chemisé et inséré dans une enveloppe de refroidissement sectorisée, elle-même entourée d'un inducteur cylindrique basse fréquence ayant pour fonction de chauffer la phase métallique introduite dans le can. Le verre est alors chauffé par la phase métallique grâce au transfert thermique important au niveau de l'interface métal/verre. En paroi interne du can, un revêtement céramique assure sa protection thermique et chimique ;
- Une partie supérieure comprenant, quant à elle, le système d'introduction du déchet à l'aide d'un sas, ainsi qu'au moins une torche à plasma disposée au-dessus du four de fusion-vitrification pour réaliser la combustion de fraction organique sous oxygène (chambre à combustion). La combustion du déchet ne s'opère pas directement sous les flammes des torches mais au-dessus de celles-ci, dans un environnement thermique approprié.

PIVIC est complété par un dispositif de traitement des gaz qui comprend, une dilution à l'air pour abaisser la température des gaz, une pré-filtration à l'aide d'un électrofiltre, une série de filtres THE et une colonne de lavage. La nécessité d'utiliser une post combustion en sortie des gaz du réacteur reste à démontrer par les essais échelle 1.

Les intérêts de ce procédé sont les suivants :

- Les métaux sont fondus directement dans le can renouvelé et retiré du four à chaque batch. On évite ainsi une coulée de phase métallique liquide, toujours délicate, en vue d'améliorer son confinement. Après réalisation d'un can, ce dernier est refroidi puis désaccosté. Des sondes de mesures nucléaires permettent de mesurer la quantité de matière fissile retenue dans la chambre de combustion.

- Les parois de la chambre à combustion sont métalliques et refroidies. L'emploi de matériaux métalliques évite d'utiliser des matériaux réfractaires davantage sujets à l'encrassement, paramètre primordial dans la démonstration de la maîtrise du risque de sûreté-criticité, et permet de limiter la production de déchets induits. De plus, l'état de surface métallique se prête davantage à la décontamination.
- PIVIC (Figure 1) permet de dissocier la partie haute où a lieu la combustion des organiques à l'aide de torches à plasma (chambre à combustion), de la partie basse contenant le four de fusion-vitrification recevant le can qui recueille les matières inorganiques (métaux, cendres, matière fissile).

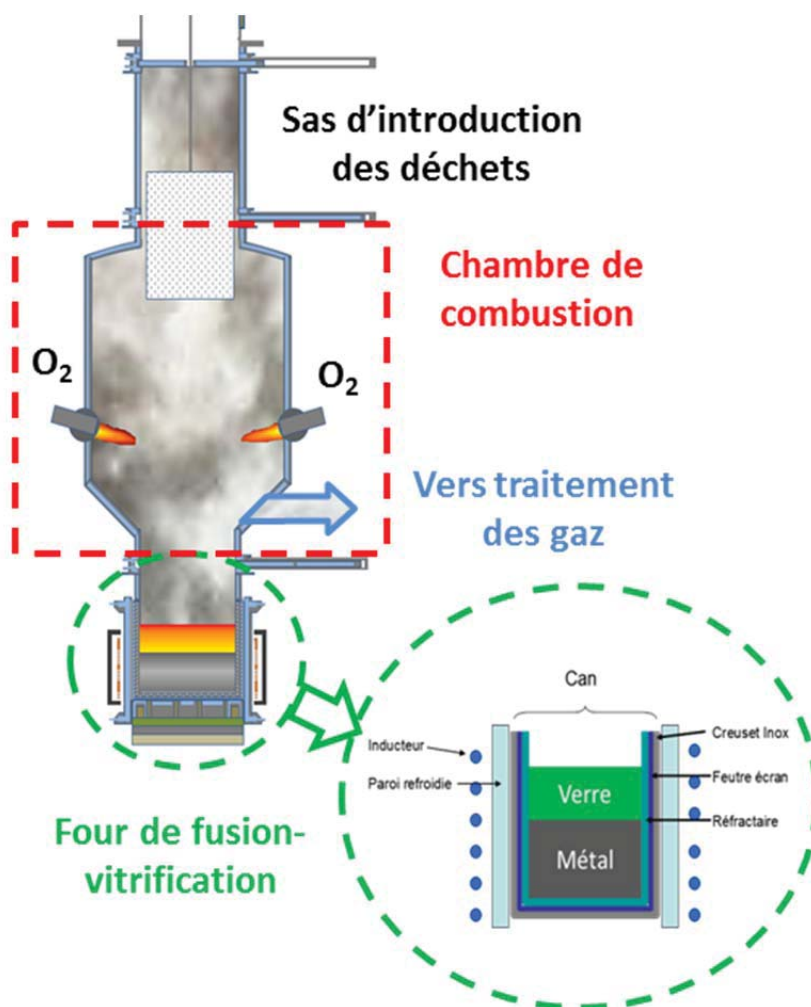


Figure 1 : Schéma de principe de PIVIC

3.2. Etude d'industrialisation

La mise en œuvre du procédé décrit précédemment dans une installation nucléaire de base nécessite :

- Une phase de nucléarisation, c'est-à-dire, d'évolution de la conception pour permettre son implantation dans un local d'un atelier existant sur le site de la Hague, son exploitation ainsi que sa maintenance de façon sûre vis-à-vis des risques nucléaires. Les dispositions utiles pour son démantèlement à termes seront aussi examinées. Les études nécessaires seront menées après la phase de définition et d'expérimentation sur un pilote inactif qui aura permis de fixer les principes et le dimensionnement des équipements transposables dans un environnement nucléaire.
- La prise en compte de la maîtrise des différents risques récurrents à l'exploitation d'un procédé dans lequel sont mises en œuvre des matières radioactives fissiles, ainsi que ceux spécifiques aux technologies ou procédés utilisés : ces risques et les principes envisagés pour leur maîtrise sont présentés ci-après. Ne sont abordés que les risques inhérents à l'exploitation propre du procédé.
- Corrosion / durée de vie des équipements : les études de R&D à mener autour de la définition du procédé et des équipements conduiront à définir les matériaux adaptés à la corrosion en fonction des besoins industriels du procédé et de la maintenance associée.

3.3. Risques liés au procédé

3.3.1. Dispersion des matières radioactives

La prévention des risques de dispersion de substances radioactives est assurée par l'organisation de l'atelier en systèmes de confinement.

Le confinement de la matière radioactive est ainsi assuré selon un principe de barrières multiples constitué par les bâtiments, leur sectorisation par local (zonage), l'enceinte dans laquelle est implanté l'équipement et enfin celui-ci proprement dit. Chacun des volumes ainsi constitué est mis en dépression relative depuis l'extérieur jusqu'à l'intérieur des équipements à des valeurs décroissantes garantissant l'absence de rejet de particules radioactives directement dans l'environnement.

Ces particules contenant potentiellement des matières radioactives dispersables sont arrêtées grâce à un système de ventilation adapté qui assure le traitement des gaz de PIVIC.

Ces principes sont déjà mis en œuvre dans toutes les installations nucléaires, y compris pour des procédés thermiques qui génèrent tous des gaz de combustion dans l'enceinte de la réaction.

Les risques induisant une perte de confinement de la matière et la dispersion des substances radioactives sont :

- les risques de chute de déchets

La maîtrise de ce risque est assurée par un dimensionnement adapté du système d'introduction des déchets qui doit résister aux hautes températures, et par un profil géométrique adéquat du fond de la chambre à combustion qui limitera les conséquences d'une chute sur les parois du can.

- les risques de surpression et d'explosion
 - production d'un mélange de gaz imbrulés pouvant conduire à une explosion
 - arrivée intempestive d'eau sur le magma engendrant une explosion de vapeur
 - une accumulation de gaz de radiolyse dans les fûts de déchets

La maîtrise de ces risques de surpression et d'explosion est assurée par des dispositifs de prévention adéquats et par un dimensionnement adapté du traitement des gaz.

3.3.2. Exposition radiologique

Les matières radioactives, tel que le plutonium et l'uranium, sont majoritairement des émetteurs de rayonnements alpha et neutronique. Compte tenu de l'âge des déchets à traiter, la décroissance du plutonium engendrera un accroissement de la teneur en américium qui augmentera l'émission de rayonnement alpha. Le dimensionnement des protections radiologiques de l'installation prendra en compte les sources de rayonnements précitées pour respecter les exigences réglementaires habituelles du zonage radiologique des bâtiments.

3.3.3. Criticité

La matière radioactive contenue dans les déchets est soit de la poudre d'oxyde de plutonium, soit de la poudre MOx, mélange de poudres d'oxyde de plutonium et d'oxyde d'uranium. Si la poudre d'oxyde d'uranium est appauvrie en isotope 235 et ainsi ne présente pas de risque de criticité, la composition isotopique de la poudre d'oxyde de plutonium ne permet pas d'exclure ce risque.

Plusieurs paramètres régissent la maîtrise du risque de criticité parmi lesquels : la masse de matière rassemblée, la forme géométrique dans laquelle elle est contenue, la modération (c'est dire la quantité d'atome léger comme l'hydrogène contenue dans des matériaux environnant ou bien l'eau qui favorise les réactions de fission) qui lui est appliquée. Pour ce dernier paramètre, la nature même des déchets qui comprend des matières organiques comme des sachets en vinyle ou en polyéthylène, constitue un apport propre de modération.

Ces conditions font qu'il est nécessaire de définir la quantité maximale de plutonium, pour les conditions de géométrie et de modération les plus défavorables, c'est-à-dire aboutissant à la masse critique la plus faible, et de garantir que celle-ci ne sera jamais dépassée dans le procédé, avec les marges suffisantes.

Les études de sûreté déjà menées ont fixé la limite sûre de masse de plutonium admissible à quelques centaines de grammes de plutonium total calculée à l'optimum de modération soit avec du CH₂ (Organiques) présent dans les déchets introduits dans la chambre à combustion. La prise en compte des incertitudes de mesures dont la comptabilité des masses définies en entrée et sortie du procédé, permet de se prémunir contre tout évènement.

Compte tenu de la faible quantité autorisée et des flux envisagés, la précision et la sensibilité des mesures effectuées sont primordiales. En effet, de trop fortes incertitudes nous amèneraient rapidement à limiter les volumes d'incorporation de matières nucléaires dans les cans.

Aussi, les principes envisagés à ce jour sont :

- de réaliser un comptage élémentaire de chacun des fûts de déchets destinés à être traités. Cette mesure (voir § 4.1.3) permet de définir la masse de matière fissile présente dans le fût.
- de vérifier que cette masse, ajoutée à celle déjà introduite dans le can en cours de constitution et à la masse résiduelle dans la chambre de combustion mesurée inter-can, n'excède pas la valeur limite autorisée.

- d'introduire le contenu de ce fût dans le procédé.
- de répéter ces opérations jusqu'à ce que la masse limite soit atteinte et nécessite de constituer un autre can.

A ces principes, s'ajoute la rétention de matière fissile dans la chambre à combustion à prendre en compte dans le bilan matière, nécessitant d'effectuer périodiquement une vacuité pour poursuivre l'exploitation.

4. Thématique de R&D

4.1. Descriptif des principaux éléments et des attendus de R&D

4.1.1. Procédé, Matériaux, Durabilité

- Etudes Procédé : Ces études technologiques visent à mettre au point le procédé PIVIC en intégrant des études de laboratoire mais aussi des études menées sur des prototypes / maquettes dont certains sont à échelle 1 par rapport au procédé PIVIC tel qu'envisagé. Le développement du procédé IN CAN sera notamment réalisé via des essais échelle 1 pour valider les différentes fonctions inhérentes à ce procédé. Des études de modélisation sont également réalisées pour tester différentes configurations procédé. Ces modèles sont bâtis sur des codes simulant les champs thermiques, électromagnétiques et le comportement mécanique.
- Etudes Matériaux : L'objectif de ces études est de définir la formulation du verre et de la fritte de verre du procédé PIVIC. Diverses formulations sont testées à l'échelle laboratoire mais aussi à échelle 1 avant de pouvoir aboutir à une formulation qui puisse répondre aux diverses exigences du procédé, à la variabilité des déchets et aux interactions avec le métal.
- Etude visant à définir l'intégrité du colis en entreposage et phase d'exploitation du stockage et enfin vis-à-vis de son comportement à long terme, c'est-à-dire le relâchement lors de la phase de resaturation du site de stockage afin de décrire le mode d'altération du colis.

4.1.2. Descriptif des prototypes / maquettes et finalités

Pour mener à bien la qualification du procédé, le plan de développement retenu intègre notamment des essais sur prototypes / maquettes dont certains sont à échelle 1. Les différents prototypes / maquettes sont les suivants :

- SHIVA : L'installation SHIVA (Système Hybride d'Incinération Vitrification Avancé - Figure 2) est un prototype à échelle réduite par rapport au prototype industriel visé, conçu par le CEA dans les années 90 pour réaliser l'incinération de divers composés organiques liquides ou solides par torches à plasma de technologie Arc Transféré avec vitrification des cendres dans un bain de verre en fusion dans la même enceinte.

Dans l'attente d'une maquette représentative à échelle 1 du procédé PIVIC, la maquette SHIVA a été utilisée pour trois objectifs :

- L'estimation des cinétiques de combustion pour dimensionner la maquette échelle 1 du procédé PIVIC et estimer la nature et le débit des gaz de combustion formés.
- Le test de solutions innovantes pour contrôler la combustion, limiter la formation de gaz imbrûlés et lisser le débit de gaz de combustion produits.
- L'évaluation des dépôts qui se forment sur les parois du réacteur et dans le traitement des gaz.

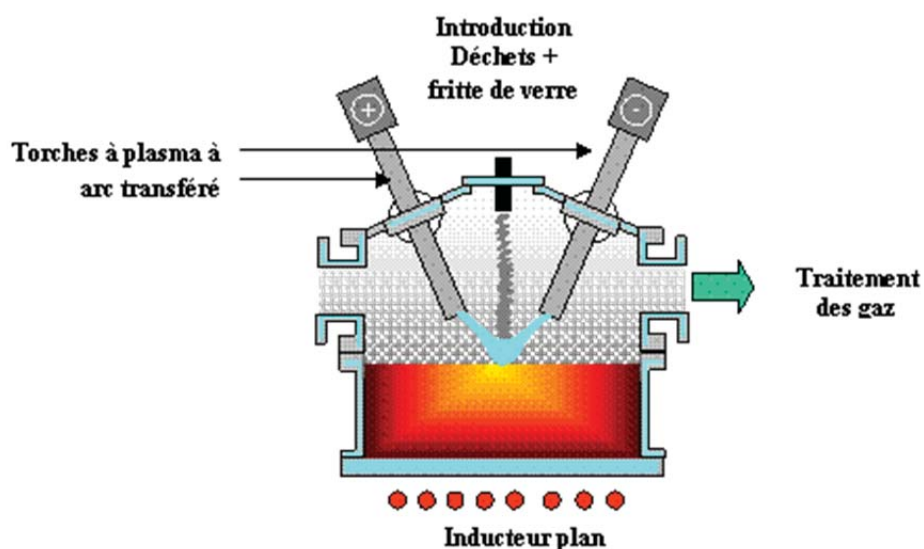


Figure 2 : Maquette SHIVA - technologie torches à plasma à arc transféré et induction par la sole.

Les premiers essais ont débuté dès 2012 sur cette maquette.

- Maquette de fusion-vitrification à échelle 1 (Figure 3) : Cette maquette est un four à induction directe avec une enveloppe refroidie sectorisée, ayant également la caractéristique d'être un four de type IN CAN. La fusion est ainsi réalisée dans un can renouvelé participant au confinement. Les essais de développement réalisés sur cette maquette ont permis d'acquérir les éléments de connaissance sur le fonctionnement de l'équipement, sur le comportement des phases métal et verre au cours de la fusion, et de progresser dans la maîtrise de son pilotage.

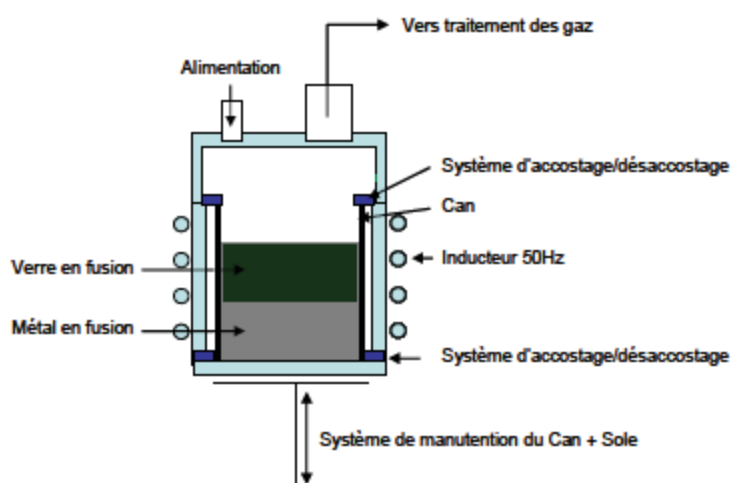


Figure 3 : Schéma de principe de la maquette de fusion-vitrification

Les essais sur la maquette de fusion-vitrification ont commencé en novembre 2014 et se sont terminés en 2017.

- Prototype PIVIC (Figure 1). Il s'agit du prototype inactif échelle 1 de PIVIC. Il servira à démontrer la faisabilité d'un traitement complet des déchets contenant des émetteurs alpha et de la stabilisation des radioéléments dans une matrice solide de confinement. Le prototype PIVIC est réalisé en accostant au-dessus de la maquette de fusion-vitrification (cf. Figure 3) une chambre à combustion contenant des torches à plasma d'induction, un système d'alimentation des déchets, et un traitement des gaz approprié déjà existant sur la plateforme d'essais. Le prototype PIVIC est conçu pour être évolutif, c'est-à-dire qu'il pourra être modifié si les fonctions associées au procédé de traitement ne sont pas remplies avec le design initial. La construction de ce prototype a débutée en 2017 au LCV de Marcoule. Les premiers essais ont débuté au deuxième semestre 2018.

Les essais sont prévus en 2 phases :

- Une phase de développement et tests ayant pour objectif de définir les conditions « procédé de traitement » et de figer la conception de la maquette avant de passer aux essais de qualification. Cette phase est réalisée sur le prototype PIVIC.
- Une phase de qualification dont l'objectif est de réaliser des essais dans diverses conditions de manière à maîtriser le procédé sur toutes les phases de fonctionnement (définition des paramètres de fonctionnement en modes nominaux, transitoires et dégradés ; études de sensibilité). Cette phase de qualification est réalisée sur le pilote PIVIC qui consiste en une amélioration du prototype PIVIC.

Les expertises réalisées sur les cans produits lors de ces phases, permettront d'avoir la meilleure connaissance possible du colis.

Un programme d'essais pour le prototype PIVIC a été défini en 2017 ; ces essais ont débuté au deuxième semestre 2018 et sont prévus jusqu'à fin 2020 pour la phase de faisabilité du procédé PIVIC.

4.1.3. Mesures nucléaires

Le respect de l'exigence de sûreté-criticité (cf. § 3.3.3.) passe par :

- les mesures de la masse de Pu de chacun des fûts introduits dans le procédé,
- les mesures de rétention Pu dans la chambre à combustion après chaque réalisation de can.

Le principe retenu consiste à prédéterminer pour chaque can, le nombre de fûts de telle sorte que la masse totale de plutonium reste en deçà d'un seuil prenant en compte :

- toutes les incertitudes de masse Pu liées à la mesure de chacun des fûts ;
- une rétention conservatoire de masse Pu présente dans la chambre à combustion ;
- une marge supplémentaire de sûreté liée à un éventuel sur-chargement.

L'optimisation de ces trois paramètres permet d'introduire un maximum de fûts lors de la réalisation d'un can, lorsque les mesures sont performantes (incertitudes/pénalisations réduites) et les rétentions faibles. Les procédures d'exploitation disposeront d'une robustesse suffisamment élevée pour limiter le risque de sur-chargement.

La précision des mesures et l'encrassement dans la chambre à combustion (rétention de matières fissiles) conditionne la faisabilité du procédé. Selon leur niveau, le nombre de fûts admissibles par can pourrait être vite limité entraînant un manque d'intérêt du procédé.

Les mesures ainsi que l'aspect rétention dans la chambre à combustion et dans le traitement des gaz, font l'objet d'études de R&D pour se prononcer sur la faisabilité de ces moyens de contrôle du procédé.

Il a été décidé de concentrer les efforts de développement procédé et sûreté sur la chambre à combustion, cœur du procédé présentant le plus de complexité. Les techniques et contrôles pour les autres équipements de l'installation (post-combustion, traitement des gaz, ...) seront étudiés ultérieurement mais ne semblent pas présenter de difficultés majeures.

4.2. Résultats de R&D déjà acquis et perspectives

4.2.1. Procédé

4.2.1.1 Incinération des organiques sur le pilote SHIVA

Entre 2012 et 2013, différents essais procédé ont été réalisés sur la maquette d'incinération SHIVA. Bien que différents sur certains points du procédé IN CAN (PIVIC), les essais SHIVA ont néanmoins permis d'appréhender d'une part les cinétiques de combustion des organiques amenés à être traités par le procédé IN CAN et d'autre part la gestion des bouffées de gaz émis par la combustion de ces organiques. Les résultats de ces essais ont ainsi pu approcher les volumes de gaz produits et permis de dimensionner la chambre de combustion du prototype échelle 1 dénommé PIVIC.

Les essais SHIVA avaient également pour objectif d'avancer sur l'estimation des risques d'encrassement du procédé. Néanmoins le pilote SHIVA étant un pilote à échelle réduite, chauffé par une technologie différente de PIVIC, de fortes incertitudes demeurent quant aux résultats acquis sur l'encrassement.

Ainsi pour estimer au mieux le risque d'encrassement, deux approches ont été abordées en 2015 :

- Une approche bibliographique qui a permis de montrer que les risques d'encrassement des parois du réacteur seraient liés à un mécanisme d'entraînement particulaire plutôt que par volatilisation puis condensation du plutonium dans le réacteur.
- Une approche par modélisation de l'entraînement des particules de plutonium issues des déchets à traiter dans la chambre de combustion. Cette étude débutée en 2015 et finalisée en 2016, a permis d'estimer un encrassement du réacteur inférieur à 3%.

4.2.1.2 Gestion des chlorures métalliques

La présence de métaux et de chlore en quantités importantes dans certaines matières organiques des déchets peut conduire à la formation de chlorures métalliques, produit très corrosif, qui se condense sur les parois froides des organes du traitement de gaz. Par exemple, la présence de zinc dans les déchets peut notamment entraîner la formation de chlorures de zinc ($ZnCl_2$) qui est un chlorure métallique.

La phosphatation des chlorures métalliques est une solution pour les neutraliser. Cette solution a été développée dans les années 90 et mise en œuvre pour le procédé d'incinération de déchets alpha organique du CEA/Valduc. Elle doit être adaptée aux particularités du procédé IN CAN (PIVIC) et notamment des bouffées de gaz générées.

En 2013, des essais de phosphatation ont été réalisés lors des essais sur SHIVA. Une phosphatation par alimentation liquide d'un agent phosphatant a été testée mais sans donner de résultats probants. Une étude bibliographique réalisée en 2015 a permis d'identifier diverses familles d'agents phosphatants solides pour gérer cette problématique du procédé. Une autre solution a également été identifiée pour éviter la formation de chlorures métalliques : Il s'agit du piégeage par une zéolithe. En 2016 et 2017 des essais comparatifs entre diverses zéolithes ont mis en évidence un piégeage conséquent avec certaines zéolithes mais sans atteindre une efficacité de 100%. Au vu de ces résultats, la voie par zéolithe a été abandonnée.

La voie de référence explorée en 2018 consiste à :

- Fonctionner sans phosphatation directe.
- Identifier le matériau interne, adapté vis-à-vis de la corrosion, qui sera utilisé.
- Contrôler la température des parois jusqu'aux électrofiltres du traitement des gaz (maintien à environ 200 °C) et assurer le maintien en atmosphère sec à froid pour éviter le phénomène de condensation des chlorures métalliques.

Les poussières chargées en chlorures métalliques récupérées au niveau des électrofiltres du traitement des gaz, seraient ensuite analysées et dosées en vue de les complexer par ajout d'une quantité stœchiométrique d'agent phosphatant. Ces poussières seraient alors réinsérées en entrée du procédé avec au préalable la réalisation d'une caractérisation par mesures nucléaires.

4.2.2. Colis

4.2.2.1 Matériaux

Le programme de R&D sur les matériaux englobe un certain nombre d'études initiées depuis 2012.

Incorporation des cendres

Les cendres issues de l'incinération de la fraction organique des déchets ainsi que les actinides (U, Pu, Am) contenus dans les fûts primaires, doivent être incorporés dans le verre.

Les études de formulation réalisées ont tout d'abord permis de définir un verre comme possible adjuvant de vitrification pour le procédé PIVIC. Sept verres de travail ont été définis à partir de cette référence. Les compositions de ces verres ont été calculées en faisant différentes hypothèses sur la nature du déchet initial et sur les teneurs en actinides, bore et alumine ajoutées au verre. Des choix ont aussi été faits quant à la simulation des actinides et les élaborations ont été faites en conditions oxydantes dans un premier temps.

Les résultats obtenus à l'échelle du laboratoire sur ces verres de travail démontrent leur faisabilité, en termes d'homogénéité et de viscosité de la fonte verrière. Quelques cristallisations sont toutefois observées dans ces verres après refroidissement lent.

Ces travaux de formulation ont également permis de définir le verre de travail pour les essais technologiques sur la maquette de fusion-vitrification.

Un premier essai d'incorporation des cendres a été réalisé sur la maquette de fusion-vitrification en fin d'année 2015 et un second en 2016. Ces essais n'ont pas mis en évidence de difficulté majeure.

Maîtrise des interactions Verre-Métal

Parmi les différents métaux présents dans les déchets technologiques à traiter, apparaissent majoritairement, le cuivre, l'inox et l'aluminium. Ce dernier est particulièrement réducteur vis-à-vis du verre : des éléments du verre sont réduits par l'aluminium qui, lui-même est oxydé et incorporé dans le verre sous forme d'alumine. Le creuset actuellement choisi pour le procédé IN CAN (C-SiC) est également réducteur, dans une moindre mesure. Afin de contribuer à la connaissance de la qualité finale du verre de confinement et donc du colis, il est indispensable de maîtriser ces interactions. Ainsi des essais à échelle laboratoire ont été menés pour mieux appréhender ces effets de réduction de l'aluminium. Des essais sur cette thématique ont été réalisés avec la maquette de fusion-vitrification en 2015 et montrent une difficulté accrue à traiter des fûts de déchets contenant de l'aluminium. En présence d'aluminium, le verre s'enrichit en alumine et devient plus visqueux lors de son élaboration ce qui rend difficile son brassage et limite la quantité de verre par CAN. Des dispositions devront être prises dans le cadre du fonctionnement du procédé.

Incorporation des poussières

Les poussières, issues de la phosphatation des chlorures de zinc, sont constituées essentiellement de phosphates de zinc dans le cas de l'incinération de polymères riches en zinc (néoprène). Or le zinc est très volatil à l'état métallique à haute température ce qui le rend difficile à incorporer dans un environnement réducteur tel qu'envisagé dans le procédé IN CAN (réducteurs : aluminium provenant de la fraction métallique des déchets et graphite provenant du creuset C-SiC). L'introduction des poussières, prévue en fin de batch, doit donc être réalisée dans des conditions spécifiques de façon à garantir une bonne incorporation du zinc (et du phosphore dans une moindre mesure) dans le verre (cf. § 4.2.1.2 "Gestion des chlorure métalliques").

4.2.2.2 Connaissance colis vis-à-vis du comportement à long terme

Le niveau de connaissance nécessaire ainsi que la démarche à mettre en œuvre restent à définir pour ce colis de déchets MA-VL dont le caractère multiphasique (verre, métal, céramique) et variable, rend sa description complexe. Les caractéristiques à définir dans le cadre des études de R&D, sont notamment la composition chimique globale du colis, la répartition macroscopique des différentes phases ainsi que la localisation des actinides.

Les radionucléides (U, Pu, Am) contenus dans le déchet technologique sont susceptibles de se partager entre différentes phases. Afin d'avoir une bonne connaissance du colis et de son comportement à long terme, il est nécessaire de déterminer l'éventuelle répartition des actinides entre ces différentes phases. Dans un premier temps, une campagne d'essais à l'échelle laboratoire en inactif sera menée avec des simulants. Afin de déterminer les éléments les plus appropriés pour simuler les actinides dans le verre en fonction de leur potentiel redox notamment au degré 0 (forme métallique), une étude bibliographique est en cours portant sur le comportement de ces actinides (état redox, incorporation) dans le contexte d'un verre particulièrement réduit. Une préparation d'essais en actif en U et Pu a également été menée, ces essais ayant pour vocation d'identifier les simulants les plus appropriés pour simuler les actinides lors des essais inactifs sur maquette échelle 1. Les premiers essais actifs en Uranium ont permis d'identifier le hafnium comme meilleur simulant de l'uranium dans la phase verrière.

4.2.3. Résultats de la R&D sur les mesures nucléaires

Le programme R&D s'est articulé autour de trois objets à mesurer : les fûts en entrée (criticité), la chambre à combustion (criticité) et le can (qualité produit). Dans un premier temps, il a été nécessaire de lister l'éventail des différents moyens de mesure et d'en analyser la pertinence, d'estimer la faisabilité, et d'identifier les points de blocage ou d'impossibilité technique (2013).

Ce premier travail a débouché sur une identification des techniques de mesure envisageables pour chaque objet, telle que présentée sur le schéma suivant :

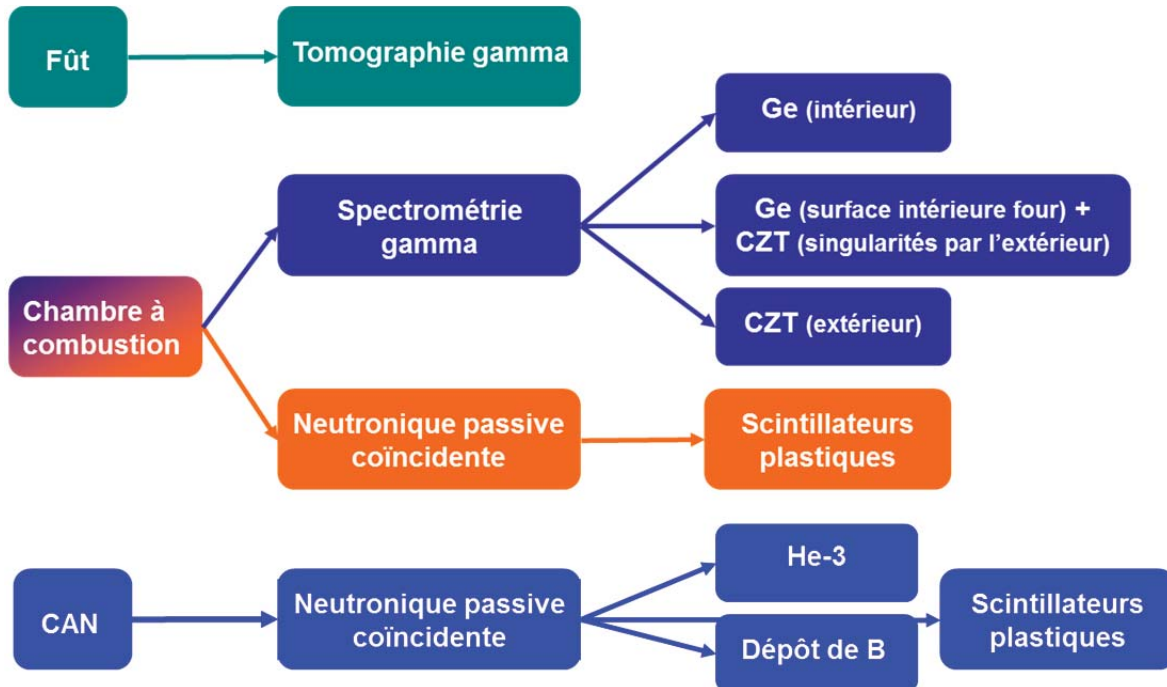


Figure 4 : Programme R&D 2014 mesures nucléaires

Chacune de ces techniques a fait l'objet d'études dans le but de valider sa faisabilité et de donner une première estimation de ses performances et de la précision associée. A l'issue de ces différentes analyses, les orientations pour chacun des postes de mesures sont les suivantes :

- Mesure scanner des fûts en entrée par tomographie gamma : Un tomographe a été acquis en 2015 par l'exploitant de l'usine de La Hague. Son fonctionnement permettra de consolider les incertitudes de mesures envisagées pour le contrôle des fûts à traiter par le procédé PIVIC. Il est à noter que les premières informations sur les mesures effectuées avec le tomographe de l'usine de La Hague sont encourageantes.

- Mesure de la chambre à combustion par spectrométrie gamma avec détecteur au germanium (Ge) complétée par une détection externe de points particuliers. Cette technique, compatible avec le temps de chargement d'un can, pour laquelle la faisabilité a été confirmée, présente de très bonnes performances de détection. La deuxième voie étudiée pour ce poste (scintillation plastique) a été abandonnée pour cet usage faute de résultats satisfaisants.
- Mesure du can par mesure neutronique passive avec compteurs ^3He . L'utilisation de détecteurs ^3He est la voie de référence pour ce poste (faisabilité technique acquise via les actions R&D 2014). Néanmoins, le coût de ces détecteurs nous a fait envisager d'autres alternatives :
 - les compteurs à dépôt de bore abandonnés (au vu de l'insuffisance des performances),
 - les scintillateurs plastiques dont les études sont en cours
 - une solution mixte ^3He et compteurs à dépôt de bore à étudier
- Du fait des précisions de mesures encourageantes des fûts en entrée de l'installation via le tomographe gamma, il est envisagé de construire la caractérisation du can sur la base des mesures de fûts en effectuant un bilan prenant en compte les rétentions dans le four (encrassement de poussières).

4.3. Descriptif préliminaire du colis

4.3.1. Principe

Le principe du procédé à l'étude repose sur l'utilisation du can comme conteneur primaire. Il est composé de trois parties :

- Un pot de fusion en inox (partie extérieure du can) ;
- Un creuset en céramique (partie intérieure du can) dont le rôle est de préserver la peau inox de l'agressivité des phases fondues durant l'étape d'élaboration ;
- Un isolant thermique fibreux entourant le creuset céramique (permettant de compenser la dilatation du pot et d'améliorer le rendement thermique du chauffage).

Une fois que les opérations d'incinération, de fusion et de vitrification sont terminées, le can est refroidi.

En l'état actuel des réflexions, deux cans seront ensuite insérés dans un conteneur qui, après fermeture, constituera le colis final.

Des solutions restent à développer pour maîtriser le taux de vide du colis créé par cet assemblage gigogne, en conformité avec l'exigence actualisée de l'Andra.

4.3.2. Dimensions

Le dimensionnement du diamètre intérieur du can est conditionné principalement par la nécessité d'accueillir le déchet primaire par fût de 120 litres. Le can doit donc présenter des dimensions internes supérieures à celles des fûts de 120 litres, soit un diamètre interne supérieur à 460 mm. Par ailleurs, il existe des contraintes sur le rapport diamètre extérieur-hauteur associé à la mise en œuvre du procédé.

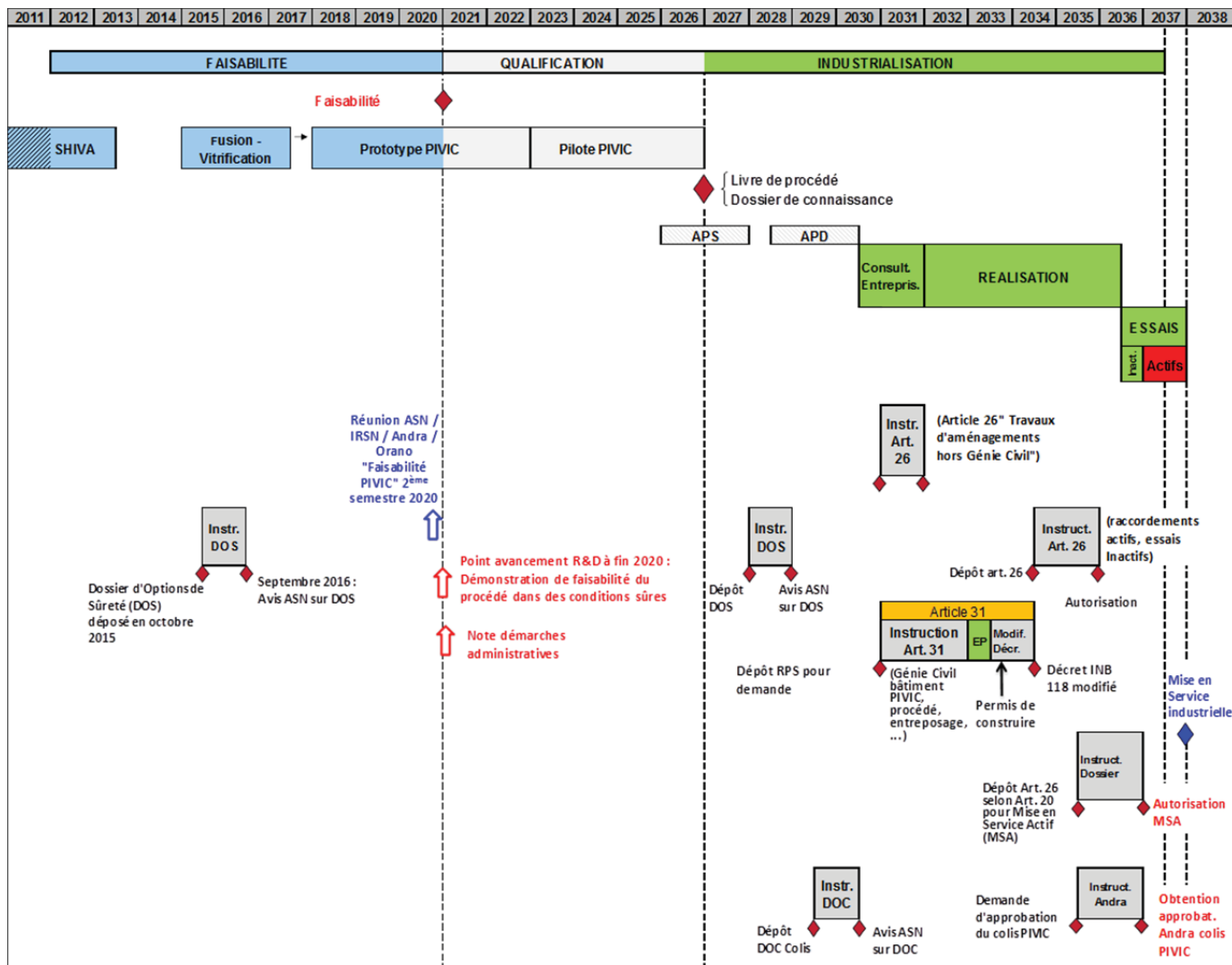
4.3.3. Contenu du can

En sortie du procédé, le contenu du can après refroidissement est multiphasique.

La première phase située au fond du can contient le résultat de la fusion partielle ou globale de la fraction métallique des déchets. La partie supérieure est composée majoritairement d'un vitrifiat résultant de l'intégration des cendres d'incinération, des déchets non métalliques dans une fritte de verre et potentiellement des poussières du traitement des gaz recyclées. On peut s'attendre à ce que le produit présente des phases intermédiaires comme une phase cristallisée ou des métaux non complètement fondus.

5. Calendrier du projet

A fin 2018, le planning actualisé du projet est le suivant :



Le plan de développement de la R&D lié au procédé PIVIC est un plan de développement progressif.

Les jalons de ce projet de R&D associé au développement et à la qualification du procédé d'incinération-fusion-vitrification sont les suivants :

- Fin-2014 : Premiers essais sur la partie basse du procédé (four de fusion vitrification).
- 2016 : Eléments de compréhension sur les points durs (encrassement, phosphatation, explosion et mesure nucléaire). Au vu des résultats satisfaisants, la fabrication de la chambre à combustion pour obtenir la maquette complète PIVIC sera enclenchée.
- 2017 : Validation des fonctions de fusion-vitrification.
- 2020 : Démonstration de la faisabilité du procédé PIVIC sur le prototype échelle 1 PIVIC.

La construction de l'atelier industriel est estimée sur une période d'une dizaine d'année. Selon le calendrier prévisionnel présenté ci-dessus, la mise en service industrielle n'est pas accessible avant 2038.

6. Conclusion

En l'état actuel du projet de R&D associé au développement et à la qualification du procédé PIVIC retenu par Orano pour traiter et conditionner les déchets technologiques (métalliques et organiques) contaminés en émetteurs alpha non susceptibles d'être stockés en surface, la présente note technique constitue un point d'avancement à fin 2018 des études menées en réponse à l'article 3 de la décision ASN n° 2014-DC-0464.

Ce procédé est un procédé IN CAN avec fusion de métal, destruction par torche plasma des organiques et vitrification des cendres impliquant quatre innovations technologiques majeures :

- la mise en œuvre de la torche plasma en milieu nucléaire ;
- la mise en œuvre des opérations de fusion et de vitrification au sein d'un même procédé ;
- un conditionnement final comportant deux phases séparées verre/métal dans un même conteneur ;
- l'utilisation du conteneur de déchet final comme creuset de fusion/incinération.

Sa démonstration repose sur un programme de R&D incluant la conception et la réalisation d'essais sur prototype échelle 1 avec un dimensionnement proche de l'échelle industrielle.

Les premiers résultats obtenus en 2012 et 2013 ayant mis en évidence plusieurs risques, le programme de R&D est orienté principalement sur la levée des points durs suivants avec des éléments de compréhension et/ou démonstration attendus à partir de fin 2018 jusqu'à fin 2020 :

- la gestion des chlorures métalliques afin de maîtriser le risque de corrosion des organes du traitement des gaz ;
- les risques de surpression de la chambre à combustion.

Au vu des travaux restants à mener à ce jour, nous devrions être en mesure de statuer sur la faisabilité de tout ou partie de ce procédé à fin 2020.

Par conséquent, la mise en œuvre industrielle d'un procédé associant au mieux incinération-fusion-vitrification afin de conditionner les déchets technologique riche en émetteur alpha N3S, n'est pas accessible avant 2038.