

PNGMDR 2013-2015
Evaluation technico-économique des modes de gestion des
Résidus Solides Banalisés

- **Date** : Décembre 2013
- **Auteurs** : Direction Réhabilitation Environnementale
- **Référence** : TD/13/12/45
- **Nombre de pages** : 25

SOMMAIRE

FIGURES	3
TABLEAUX.....	4
ABREVIATIONS	5
1. INTRODUCTION	6
1.1. Contexte de l'étude	6
1.2. Objet de la note	6
2. ORIGINE ET CARACTERISATION DES RESIDUS SOLIDES BANALISES	7
2.1. Historique de production	7
2.2. Procédé de fabrication	7
2.3. Composition chimique	8
2.3.1. Analyses mensuelles au fil de la production	8
2.3.2. Bilan des analyses réalisées sur les merlons en 2004	9
2.3.3. Composition par espèces chimiques	10
2.3.4. Autres impuretés mineures	11
2.4. Composition radiologique.....	11
2.5. Tests de lixiviation	12
2.6. Bilan des propriétés du RSB	12
3. CONDITIONS ET PERENNITE DE L'ENTREPOSAGE DU RSB SUR LE SITE DE LA ROCHELLE.....	13
4. MODES DE GESTION DU RSB.....	14
4.1. Remarques préliminaires	14
4.2. Les différentes solutions de gestion	18
4.2.1. Option Stockage de surface sans traitement par analogie aux résidus miniers ou de traitement de concentrés d'uranium.....	18
4.2.2. Option Stockage de surface sans traitement : nouveau CSTFA ANDRA	21
4.2.3. Option Stockage FA/VL avec retraitement thermique	21
4.2.4. Option Stockage FA/VL avec retraitement hydro métallurgique.....	22
5. CONCLUSIONS	25

FIGURES

Figure 1 : Schéma de fabrication du RSB	8
Figure 2 : Situation entreposage RSB sur le site Solvay La Rochelle	13
Figure 3 : Origine de l'offre et de la demande des terres rares	16
Figure 4 : Croissance du marché terres rares sur 2012-2018	16
Figure 5 : Impact des quotas chinois sur les prix de vente terres rares	17
Figure 6 : Schéma de retraitement du RSB	23

TABLEAUX

Tableau 1 : analyses fil de l'eau production RSB 1993-1994	9
Tableau 2 : analyses des RSB entreposés en merlons.....	9
Tableau 3 : contenu en terres rares des RSB	10
Tableau 4 : composition RSB par espèces chimiques	10
Tableau 5 : Analyses impuretés RSB.....	11
Tableau 6 : Analyses radiologiques du RSB entreposé en merlon	11
Tableau 7 : résultats tests de lixiviation	12
Tableau 8 : Principales applications des terres rares.....	15
Tableau 9 : Options de gestion retenues	18
Tableau 10 : Comparatif RSB avec déchets de traitements de minerais ou de concentrés uranium	19
Tableau 11 : Description fonctionnelle d'une installation de traitement séquentiel des matières et déchets Solvay	24

ABREVIATIONS

Andra :	Agence Nationale pour la Gestion des Déchets Radioactifs
ASN :	Autorité de Sûreté Nucléaire
CSTFA :	Centre de stockage TFA
FAVL :	Faible Activité Vie Longue
GC :	Gâteau de Caustification
HBTh :	Hydroxydes Bruts de Thorium
IRAS :	Indice Radiologique d'Activité Spécifique
IRSN :	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire
ISDD :	Installation de Stockage de Déchets Dangereux
MES :	Matières En Suspension
RRA :	Résidus Radifères
RRN :	Résidus de Reprise Nitrique
RSB :	Résidus Solides Banalisés
SCPRI :	Service Central pour la Protection Contre les Rayonnements Ionisants
TFA :	Très Faiblement Radioactifs

1. INTRODUCTION

1.1. Contexte de l'étude

Dans le cadre du Plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs 2010-2012, le groupe de travail « Optimisation des filières de gestion » a remis un rapport ¹ en janvier 2012 dont les conclusions pour les résidus solides banalisés sont les suivantes :

« Pour les résidus solides banalisés de Rhodia, dont l'activité est proche de celles des déchets TFA mais dont la teneur en thorium les oriente vers la filière FAVL, deux types de traitement pourraient présenter un intérêt soit en vue d'une valorisation économique de certains produits, soit pour une réduction du volume des déchets.

Enfin, l'hypothèse d'un stockage ad hoc pour les résidus solides banalisés de Rhodia peut aussi être examinée, compte tenu des caractéristiques de ces déchets ».

Suite à ce rapport, l'ASN a rendu un avis ² considérant nécessaire que les exploitants poursuivent leurs études, en lien avec l'Andra.

Cet avis a été traduit dans le projet de décret³ transmis le 5 avril 2013 par la Direction Générale de L'Energie et du Climat. L'article 19 dans son alinéa II-4 précise en effet :

« Solvay remet aux ministres chargés de l'énergie et de la sûreté nucléaire, avant le 31 décembre 2013, un rapport sur l'évaluation technico-économique des solutions de gestion envisageables pour les résidus solides banalisés et la stratégie de gestion qu'elle propose de retenir. L'ASN et l'Andral sont saisies pour avis sur ce rapport »

1.2. Objet de la note

Cette note fait le point d'avancement des différents modes de gestion envisagés pour les résidus solides banalisés et en présente des évaluations technico-économiques.

¹ Andra – AREVA – CEA – EDF – RHODIA, Rapport du Groupe de travail « Optimisation des filières », Z RP ADMR 12-0001, 9 janvier 2012

² Avis n° 2012- AV- 0148 de l'Autorité de sûreté nucléaire du 27 mars 2012 sur les rapports remis en application du, en vue de l'élaboration du Plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs 2013-2015

³ Projet de décret n° [...] du [...] 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 radioactifs – « Projet de décret PNGMDR Vconsultecritefinale.doc » transmis par mail L. David (DGEC) le 5.4.2013 .

2. ORIGINE ET CARACTERISATION DES RESIDUS SOLIDES BANALISES

2.1. Historique de production

Les RSB sont issus du traitement de la monazite - minerai de phosphate de terres rares, contenant également 6% de thorium et 0.3% d'uranium - opéré sur le site Solvay de La Rochelle jusqu'en septembre 1994.

La production de RSB a démarré à partir de fin 1985. Les RSB ont alors été stockés dans la zone portuaire de La Pallice en mélange avec d'autres remblais, avec accord renouvelé chaque année par le SCPRI. Ces dépôts se sont arrêtés en septembre 1993 à la fermeture de la zone de remblais de la Pallice alors arrivée à saturation.

La production de RSB s'est poursuivie jusqu'en septembre 1994, date d'arrêt du traitement de la monazite. Les RSB produits entre septembre 1993 et septembre 1994, soit 8400t, ont été entreposés sur le site de La Rochelle. Cette situation n'a pas évolué depuis.

2.2. Procédé de fabrication

Le procédé est décrit dans la figure donnée ci-après.

Le RSB résulte d'un mélange de trois résidus :

- résidu de traitement d'attaque nitrique de monazite (RRN),
- gâteau de caustification (GC)
- matières en suspension (MES).

Le RRN, à caractère acide, est constitué des produits insolubles et filtrés après dissolution dans l'acide nitrique de la masse d'hydroxydes obtenue après l'attaque sodique de la monazite. Les RRN sont constitués principalement de minerai inattaqué imprégné d'une solution de nitrates contenant notamment des terres rares, du thorium et de l'uranium.

Le GC, à caractère alcalin, est obtenu après précipitation à la chaux des phosphates résiduels contenus dans les eaux-mères de cristallisation du phosphate trisodique généré par l'attaque sodique de la monazite. Le GC était constitué principalement de phosphate de calcium, de sulfate de calcium et de soude d'imprégnation

Les MES, à caractère neutre, sont issues du traitement chimique (neutralisation/précipitation) des effluents non radioactifs qui constituaient les pertes de rendement des ateliers finitions terres rares. Les MES sont principalement constituées de terres rares sous différentes formes chimiques insolubles : phosphate, fluorure, oxalate, hydroxyde, carbonate.

Le mélange des trois constituant était fait en ligne de façon continue, neutralisé par ajout de soude ou d'acide chlorhydrique, le cas échéant, afin obtenir un mélange globalement neutre dont l'activité totale en U+Th restait inférieure à 2 nCi/g (soit 74 Bq/g) qui à l'époque constituait le seuil au-delà duquel un produit était considéré comme radioactif au sens du transport.

Le produit en pulpe était alors déshydraté sur filtre-presse pour constituer le RSB.

Au cours de la fabrication, le produit était régulièrement échantillonné de façon à confectionner un échantillon moyen mensuel qui était analysé : chimie, radiologie et test de lixiviation (voir 2.3).

La dernière année de fabrication de RSB a été entreposée en merlon sur une aire étanche (aire d'entreposage des produits radioactifs) et couvert d'une bâche thermosoudée.

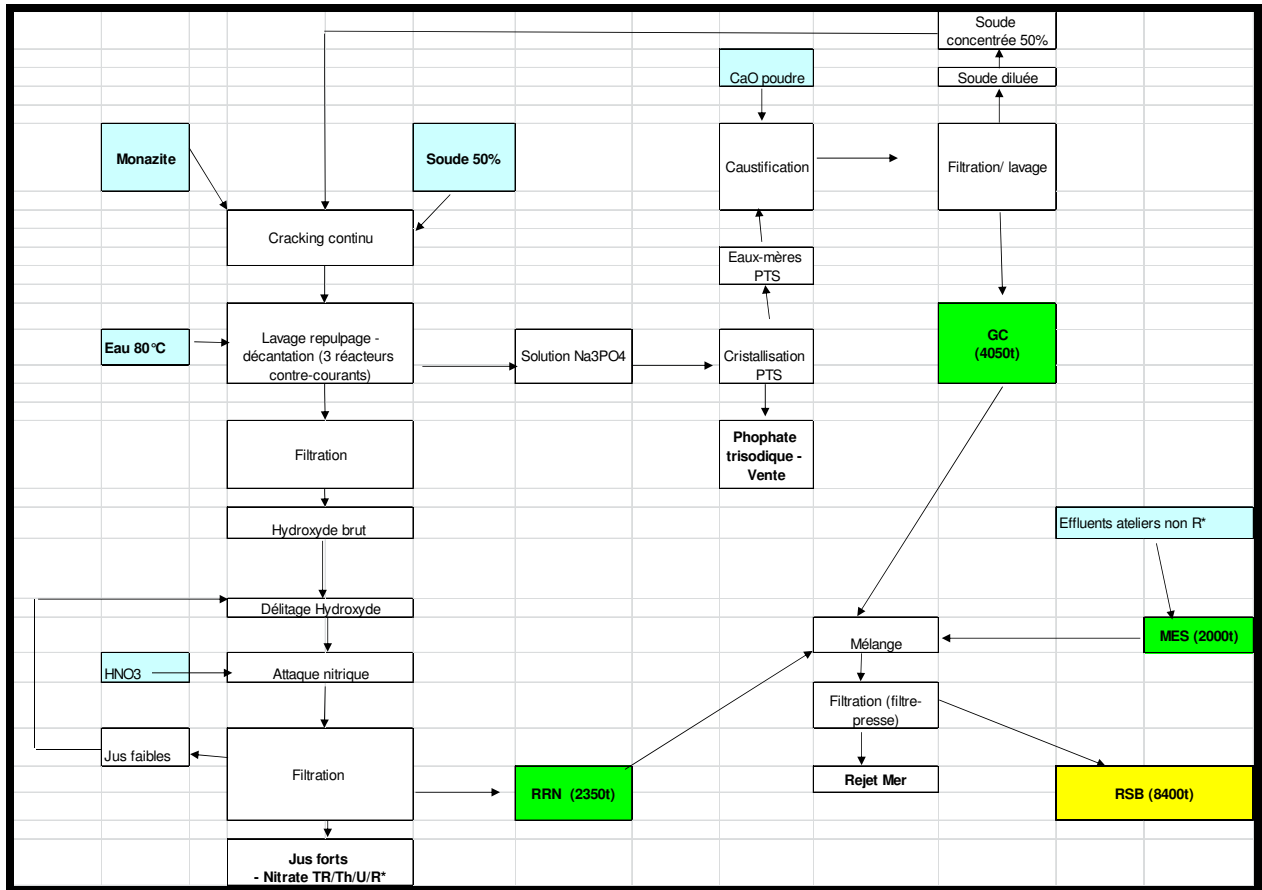


Figure 1 : Schéma de fabrication du RSB

2.3. Composition chimique

2.3.1. Analyses mensuelles au fil de la production

On trouve ci-dessous les résultats des analyses effectuées sur l'échantillon moyen mensuel pour les mois d'octobre 1993 à août 1994

n° lot		oct-93	nov-93	déc-93	janv-94	févr-94	mars-94	avr-94	mai-94	juin-94	juil-94	août-94	Bilan site (t)
Poids brut	t	819	797	669	651	672	829	707	800	806	816	800	8366
Analyses sur brut													
Eau	%/brut	44,9	47,2	51,3	51,4	49,3	49,9	49,5	43,2	47,4	43,2	41,8	
Oxydes terres rares	ndosé	ndosé	ndosé	ndosé	ndosé	ndosé	ndosé	ndosé	ndosé	ndosé	ndosé	ndosé	
Fluor	%/brut	0,17	0,61	0,15	0,19	0,20	0,20	0,20	0,23	0,21	0,17	0,41	
ThO2	%/brut	0,42	0,32	0,27	0,27	0,32	0,39	0,24	0,35	0,39	0,39	0,47	
U3O8	%/brut	0,044	0,037	0,044	0,024	0,025	0,025	0,040	0,051	0,068	0,062	0,041	
P2O5	%/brut	5,62	5,54	5,26	4,37	4,72	4,81	5,50	5,68	7,10	9,83	4,89	
CaO	%/brut	15,92	16,53	14,17	14,39	15,87	14,68	14,95	16,07	14,10	17,61	13,79	
SiO2	%/brut	5,01	4,75	4,87	4,86	4,82	4,81	4,29	4,54	4,52	5,11	3,55	
TiO2	%/brut	0,55	0,42	0,44	0,34	0,41	0,40	0,30	0,40	0,47	0,45	0,23	
ZrO2	%/brut	4,30	4,80	4,97	4,03	3,90	4,51	3,59	3,24	3,52	4,88	2,39	
Bilan ThO2	(t)	3,47	2,52	1,79	1,77	2,18	3,24	1,71	2,82	3,14	3,20	3,72	29,57
Bilan U3O8	(t)	0,36	0,29	0,29	0,16	0,17	0,21	0,29	0,41	0,55	0,51	0,33	3,57
Test lixiviation 100g/l													
Ra 228	Bq/l	0,6	<=0,3		<=0,3	<=0,3	<=0,4	<=0,3	0,4	0,3	<=0,3	<=0,3	
F	(mg/l)	1,1	1,8	1,8	4	7	4	5	4	3	<1	6	
NH4+	(mg/l)	18	9	27	5	30	5	5	9	22	5	27	
NO3	(mg/l)	670	450	325	420	500	635	356	682	430	230	450	

Tableau 1 : analyses fil de l'eau production RSB 1993-1994

2.3.2. Bilan des analyses réalisées sur les merlons en 2004

En 2004, une campagne d'analyses sur les merlons en place a été réalisée. Les analyses ci-dessous résument l'état du stock en merlon (8400t tel). Elles confirment les quantités de thorium et uranium contenues dans le RSB, soit autour de 30-35t en ThO2 et 3,5 - 5 t en U3O8.

n° carotte	Merlon 2				Merlon 3			Moyenne
	21-22	12-13-14-15	9-10-11	7-8	6	5	3-4	
Tonnage produit tel	t	720	1440	900	360	1000	1774	
Humidité	%	42,0 %	46,7 %	41,8 %	43,9 %	43,7 %	41,0 %	39,5 %
Analyses chimiques sur produit tel								
Na2O	%	2,90	non dosé	1,16	1,12	non dosé	non dosé	non dosé
Al2O3	%	1,16	1,07	1,16	1,68	1,13	non dosé	1,21
SiO2	%	5,91	5,66	6,28	7,51	6,53	6,44	7,63
P2O5	%	4,58	4,37	7,04	3,36	5,18	5,91	4,18
SO3	%	9,28	7,47	7,56	2,80	11,25	10,63	7,87
CAO	%	11,94	10,56	14,08	5,89	13,67	14,53	11,32
TiO2	%	0,23	0,13	0,29	0,06	0,23	0,24	0,12
Fe2O3	%	0,58	0,53	0,58	0,56	0,56	0,59	0,61
ZnO	%	0,30	0,30	0,30	0,41	0,19	0,23	0,36
ZrO2	%	3,13	2,24	3,49	2,02	2,76	3,13	2,36
BaO	%				1,12			
Total Oxydes terres rares	%	12,17	12,80	10,47	20,74	9,56	10,04	16,95
ThO2	%	0,423	0,320	0,652	0,213	0,450	0,514	0,339
U3O8	%	0,046	0,053	0,070	0,034	0,062	0,071	0,054
Quantité Oxydes terres rares	t	87,7	184,4	94,3	74,7	95,6	220,8	300,7
ThO2	t	3,0	4,6	5,9	0,8	4,5	11,3	6,0
U3O8	t	0,3	0,8	0,6	0,1	0,6	1,6	1,0

Tableau 2 : analyses des RSB entreposés en merlons

Le contenu en terres rares représente un peu plus de 1000t en équivalent oxydes de terres rares dont la répartition est la suivante :

	La2O3	CeO2	Pr6O11	Nd2O3	Sm2O3	Eu2O3	Gd2O3	Tb4O7	Dy2O3	Ho2O3	Er2O3	Tm2O3	Yb2O3	Lu2O3	Y2O3	Total
Répartition /OT	22,8%	47,5%	3,1%	12,2%	3,3%	< 0,1%	0,8%	0,2%	1,4%	0,4%	0,7%	< 0,1%	0,6%	0,3%	6,4%	
Tonnage (t)	240,8	502,8	32,3	129,3	34,6	<1	8,9	2,2	14,5	4,5	7,8	<1	6,7	3,3	68,0	1058

Tableau 3 : contenu en terres rares des RSB

2.3.3. Composition par espèces chimiques

Les analyses chimiques ont permis de dresser la composition par espèces chimiques constituant les RSB. La détermination de cette composition sera cruciale pour orienter les procédés de retraitement.

		en tonnes
Eau (par séchage à 120°C)	40,19%	3376
Ln(OH)3	9,75%	819
LnPO4	6,57%	552
LnF3	0,32%	27
Th(OH)4	0,07%	6
Th3(PO4)4	0,48%	40
(UO2)3(PO4)2	0,06%	5
Ca3(PO4)2	8,02%	674
Ca(OH)2	4,81%	404
CaF2	0,32%	27
CaSO4	12,88%	1082
BaSO4	1,52%	128
Fe(OH)3	0,16%	13
Zn(OH)2	0,37%	31
SiO2	5,60%	470
ZrO2	3,30%	277
Al2O3	1,20%	101
Fe2O3	0,48%	40
NH4NO3	0,40%	34
NaNO3	0,96%	81
NaCl	2,24%	188
		8400

Tableau 4 : composition RSB par espèces chimiques

Les sels d'imprégnation lixiviables du RSB sont constitués essentiellement de sodium, d'ammonium, de nitrates et de chlorures et, dans une moindre mesure, de calcium et sulfate sous forme gypse dans les RSB.

2.3.4. Autres impuretés mineures

Un échantillon représentatif de RSB a été analysé et les résultats sont donnés ci-dessous :

Analyses RSB - DA 21914			
Humidité	%/tel	62,7	Rhodia (DA 21914)
Pb	ppm/tel	620	GDMS/Shiva Toulouse
B	ppm/tel	160	GDMS/Shiva Toulouse
Ni	ppm/tel	23	GDMS/Shiva Toulouse
Cr total	ppm/tel	1300	GDMS/Shiva Toulouse
Cr VI	ppm/tel	non dosé	
As	ppm/tel	<10	GDMS/Shiva Toulouse
Sb	ppm/tel	<5	GDMS/Shiva Toulouse
Se	ppm/tel	<30	GDMS/Shiva Toulouse
Cd	ppm/tel	<10	GDMS/Shiva Toulouse
Hg	ppm/tel	<0,5	GDMS/Shiva Toulouse
Be	ppm/tel	3,6	GDMS/Shiva Toulouse
CN		non dosé, absent du procédé	
Amiante		non dosé, absent du procédé	
Cl	ppm	500	Rhodia La Rochelle
NO3	ppm	7000	Rhodia La Rochelle
SO4	%/sec	20,4	Rhodia La Rochelle
TBP	ppm	1,02	Rhodia La Rochelle

Tableau 5 : Analyses impuretés RSB

2.4. Composition radiologique

Les analyses ci-dessous résument l'état du stock en merlon.

Activité radiologique produit tel									Moyenne
Date mesure radio		mars-08	mars-08	mars-08	janv.-08	mars-08	mars-08	mars-08	
²³⁸ U **	Bq/g	4,82	6,02	7,22	3,61	6,62	7,22	5,42	5,85
²³⁴ U	Bq/g	4,82	6,02	7,22	3,61	6,62	7,22	5,42	5,85
²³⁰ Th	Bq/g	2,15	1,77	3,30	1,12	2,36	2,56	1,65	2,13
²²⁶ Ra	Bq/g	1,45	2,90	4,06	4,06	5,22	3,48	3,25	3,49
²¹⁰ Pb	Bq/g	9,28	6,09	20,12	6,20	2,96	12,00	14,96	10,23
²³⁵ U *	Bq/g	0,23	0,35	0,35	0,23	0,35	0,35	0,29	0,31
²³¹ Pa ****	Bq/g	1,08	1,08	1,65	0,56	1,18	1,28	0,83	1,09
²²⁷ Ac	Bq/g	0,58	0,75	0,64	1,04	0,58	0,58	0,87	0,72
²³² Th ***	Bq/g	15,06	12,38	23,11	7,84	16,50	17,95	11,55	14,91
²²⁸ Ra	Bq/g	12,41	10,49	19,13	9,10	12,41	14,03	9,04	12,37
²²⁸ Th	Bq/g	12,06	10,43	18,49	9,97	11,65	13,22	8,64	12,07

Tableau 6 : Analyses radiologiques du RSB entreposé en merlon

La composition radiologique du RSB va peu évoluer dans les années qui viennent, les filiations étant pratiquement équilibrées. L'activité du plomb 210 va décroître pour atteindre celle du radium 226 d'ici une trentaine d'années.

Le débit de dose gamma au contact du RSB est de l'ordre de 8-10 µSv/h.

2.5. Tests de lixiviation

Les résultats de tests de lixiviation normalisés, ainsi qu'à différents pH, sont donnés ci-dessous. Ils montrent :

- la mobilité des sels d'imprégnation nitrate, ammonium et sulfate
- l'absence de mobilité des différents radionucléides

		RSB - RESULTATS TESTS LIXIVIATION					
		Test standard - 100 g sec/l eau déminée			Test - influence pH		
		Lixi1 16h	Lixi2 16h	Lixi3 16h	Lixi 24h , pH 5	Lixi 24h, pH 9	
pH		7,2	7,1	7,1	5,1	9,1	
Pb	µg/l	<20	<10	<10	<10	<10	
B	µg/l	100	60	50	500	100	
Ni	µg/l	68	11	<10	91	55	
Cr total	µg/l	63	15	7,6	47	61	
Cr VI	µg/l	36	12	<10	27	38	
As	µg/l	<5	<5	<5	<5	<5	
Sb	µg/l	<5	<5	<5	<5	<5	
Se	µg/l	<20	<20	<20	<20	<20	
Cd	µg/l	0,6	<0,5	<0,5	<0,5	0,7	
Hg	µg/l	<0,2	<0,2	<0,2	<0,2	<0,2	
Be	µg/l	<5	<5	<5	<5	<5	
CN	µg/l	<10	<10	<10	<10	<10	
Cl	mg/l	40	<20	<20	53	62	
F	mg/l	<10	<10	<10	<10	<10	
NO3	mg/l	520	120	<100	3700	560	
SO4	mg/l	2400	1700	1500	1300	2500	
Th	µg/l	< 50	< 50	< 50	< 50	< 50	
U	µg/l	<150	<150	<150	<150	<150	
Ra 228	Bq/l	<=0,3	<=0,4	<=0,3	<=0,4	<=0,4	
Th 228	Bq/l	<=0,2	0,3	<=0,2	<=0,2	<=0,2	
Pa 231	Bq/l	<=5	<=5	<=5	<=5	<=5	
U235	Bq/l	<=0,1	<=0,1	<=0,1	<=0,1	<=0,1	
Ac 227	Bq/l	<=0,5	<=0,5	<=0,5	<=0,6	<=0,5	

Tableau 7 : résultats tests de lixiviation

2.6. Bilan des propriétés du RSB

Le RSB entreposé sur le site de La Rochelle, soit 8400t, est issu d'un procédé continu, fabriqué sur une période de moins d'un an. Il est donc de composition relativement stable tant en composés majeurs que mineurs.

Il contient un équivalent d'environ 1000t d'oxydes de terres rares, contenu valorisable avec un retraitement adapté.

La présence de phosphate permet de limiter très fortement le relargage dans l'eau des radionucléides contenus. La présence de ²³²Th autour de 15 Bq/g lui confère un léger caractère irradiant, entre 8 et 10 µSv/h en débit de dose gamma au contact, soit comparable à celui estimé pour des résidus de traitement dynamique des minerais d'uranium contenant 30-40 Bq/g de ²²⁶Ra, tels que ceux stockés dans les bassins de Bellezanne.

3. CONDITIONS ET PERENNITE DE L'ENTREPOSAGE DU RSB SUR LE SITE DE LA ROCHELLE

L'entreposage du RSB sur le site Solvay de la Rochelle est autorisé par l'arrêté préfectoral du 16-4-2012 sous la rubrique 1735.

L'entreposage est réalisé sur une aire étanche avec contrôle des eaux pluviales. La figure ci-dessous situe la position de l'entreposage.

Le RSB est entreposé en vrac sous une bâche en polyéthylène thermosoudée. La zone d'entreposage est isolée de l'extérieur du site par un merlon de terre d'une hauteur de 4m, d'une épaisseur de 10 m à sa base et de 4m à son faîte.

L'arrêté prescrit le respect de la limite de 1 mSv/an en valeur ajoutée à l'exposition naturelle pour les différents groupes critiques de population définis par l'IRSN. Cette exposition est déterminée en prenant en compte le rayonnement gamma, les radons 220 et 222 et les poussières. A fin 2013, aucune exposition ajoutée ne dépasse 0,5 mSv/an

L'arrêté de classement n'impose pas de délai explicite de désentreposage, notamment lié à l'ouverture du centre FA/VL.

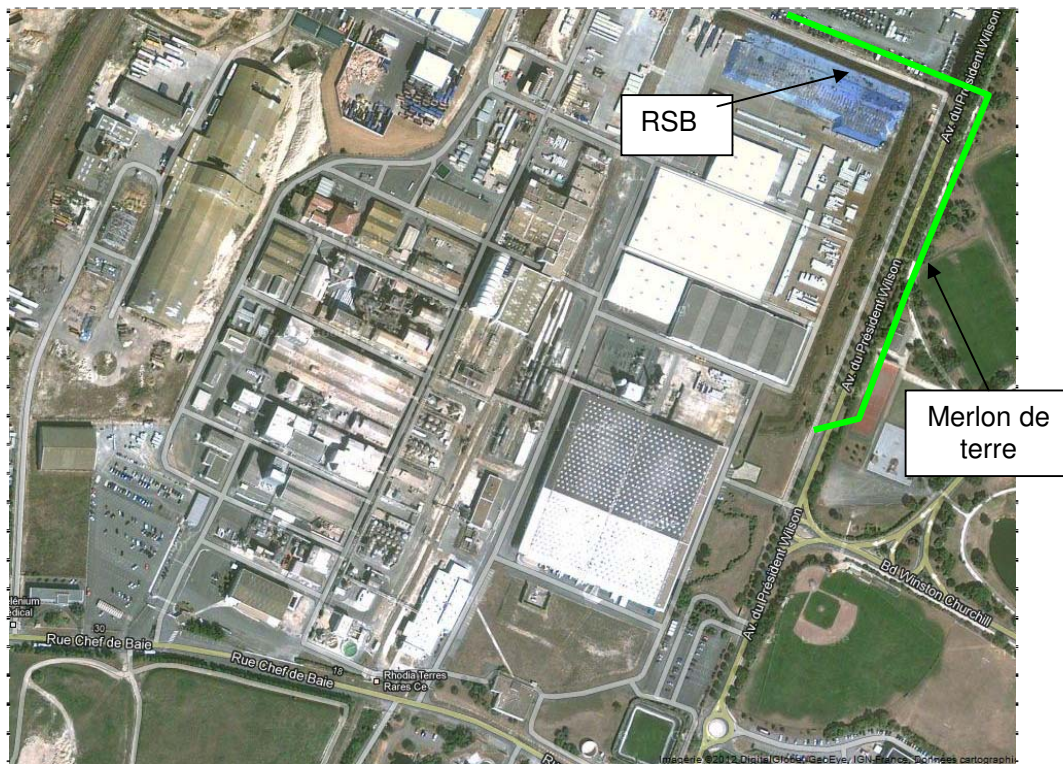


Figure 2 : Situation entreposage RSB sur le site Solvay La Rochelle

L'entreposage du RSB sur le site de La Rochelle est considéré comme pérenne à l'horizon de l'ouverture du futur centre FA/VL.

4. MODES DE GESTION DU RSB

4.1. Remarques préliminaires

- Le RSB par son activité massique en thorium et uranium n'est pas accepté en ISDD (application de la circulaire du 10 juin 2003). En effet, par expérience, les études d'exposition de personnel réalisées par les propriétaires d'ISDD (SITA Bellegarde, SITA Villeparisis) pour des flux de quelques centaines de tonnes par an conduisent à limiter l'activité massique des déchets entrant autour de 2 Bq/g en ^{232}Th , à comparer à 15 Bq/g pour le RSB.
- Le RSB par son contenu en thorium notamment (environ 35t) n'est pas accepté au CSTFA ANDRA dont la capacité est extrêmement limitée en ^{232}Th (11,6 GBq) soit environ 3t de Th.
- Le concept de sub-surface tel que retenu pour le stockage FA/VL paraît pour Solvay peu optimisé pour le RSB au regard de sa composition radiologique (quelques dizaines de Bq/g) et de sa stabilité chimique. Un stockage de surface ou de faible profondeur paraît alors plus cohérent, par analogie à ce qui est :
 - réalisé pour le stockage des déchets TFA ou des résidus historiques de traitement de minerai d'uranium,
 - ou proposé par AREVA à COMURHEX Malvesi pour le stockage des déchets historiques de traitement de concentrés d'uranium, ainsi que ceux à produire (cf présentation PNGMDR du 12-4-2012)
- Le RSB contient l'équivalent d'environ 1000t d'oxydes de terres rares, qui sont des composés valorisés dans des marchés en croissance tels que la fabrication d'équipements électroniques comme les écrans plats, la téléphonie mobile, les catalyseurs, les ampoules basse consommation, l'optique de précision, les radars, les turbines d'éoliennes (jusqu'à plusieurs centaines de kg de néodyme par éolienne offshore). Les terres rares sont également utilisées pour leurs propriétés catalytiques (raffinage et dépollution automobile) ou électromagnétiques en tant qu'aimants permanents dans la fabrication de moteurs électriques ou d'alternateurs.

Rare Earths Properties	Applications Markets	Light RE				Heavy RE						
		La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy		
		Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Y					
Magnetics	Magnets >Cars >Electronics >Wind turbine			<u>Nd</u> , Pr					<u>Dy</u> , Tb			
Electric H2 storage	NiMH Batteries >Electronics, cars	<u>La</u> , Ce, Pr, Nd										
Catalysis	Cars depollution	<u>Ce</u> , La, Nd										
Catalysis	Petrochemical industry	<u>La</u> , Ce, Pr, Nd										
Luminescence phosphors	Lighting TV –Display	<u>La</u> , <u>Ce</u>							<u>Eu</u> , <u>Tb</u> , <u>Y</u>			
Polishing Powders	Glass – Flat screens – eChips	<u>Ce</u> , La, Pr										
Dielectric	Electronic (Capacitors)	<u>Nd</u>							Gd, Dy, Y			
NMR shift	MRI								Gd			
Neutron absorption	Nuclear energy								Gd			

Tableau 8 : Principales applications des terres rares⁴

Ce contenu en terres rares peut alors conférer au RSB un statut de matière radioactive et non plus de déchet radioactif, si un procédé de traitement/recyclage est envisagé. En effet, une matière radioactive est une substance radioactive pour laquelle une utilisation ultérieure est prévue ou envisagée, le cas échéant après traitement-recyclage (article L 542-1-1 du Code de l'environnement, issu de la loi n° 2006-739 du 28 juin 2006 du programme relative à la gestion durable des matières et des déchets radioactifs).

Le prix de valorisation des terres rares reste très fluctuant, voire spéculatif, soumis aux tensions régulières entre l'offre et la demande générées par la politique chinoise des quotas d'exportation. La Chine fournit à ce jour plus de 95% des matières premières et consomme plus de 65% de produits finis pour un marché mondial de l'ordre de 130000t en 2013, en croissance régulière estimée à 5% par entre 2012 et 2018.

⁴ Extrait de « Les Terres Rares, matériaux stratégiques, enjeux économiques », A. ROLLAT, Réunion UNAFIC, 26 novembre 2013

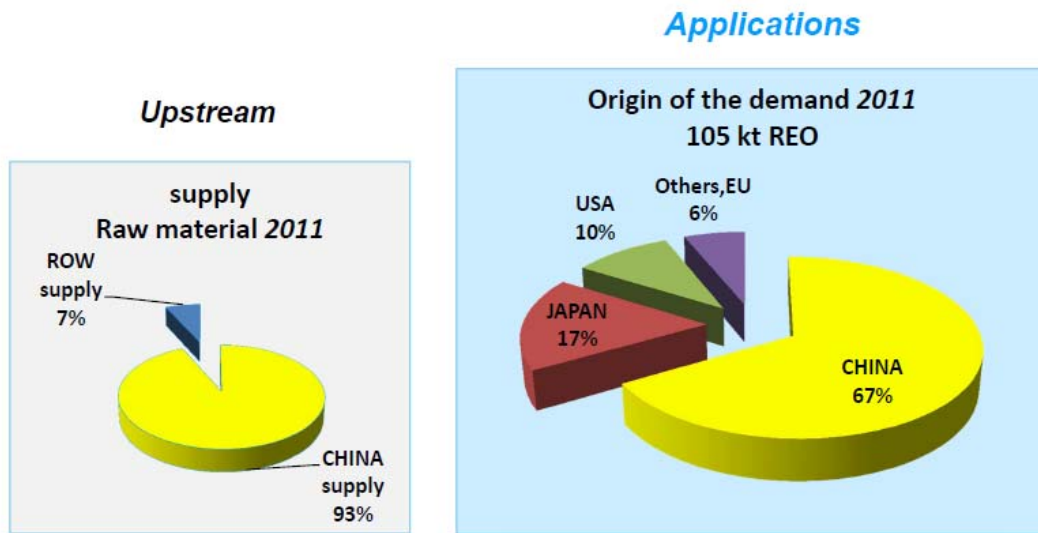


Figure 3 : Origine de l'offre et de la demande des terres rares⁵

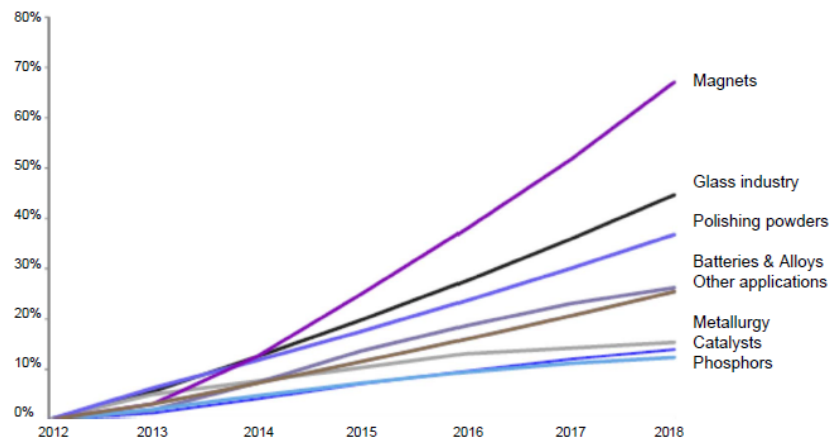


Figure 4 : Croissance du marché terres rares sur 2012-2018⁶

En 2013, les études technico-économiques de Solvay mettant en jeu la valorisation des terres rares sont basées sur un prix de valorisation moyen de 15€/kg OT, ce qui est conservateur par rapport aux années qui ont précédé la bulle financière de 2011.

⁵ Idem 4

⁶ Idem 4

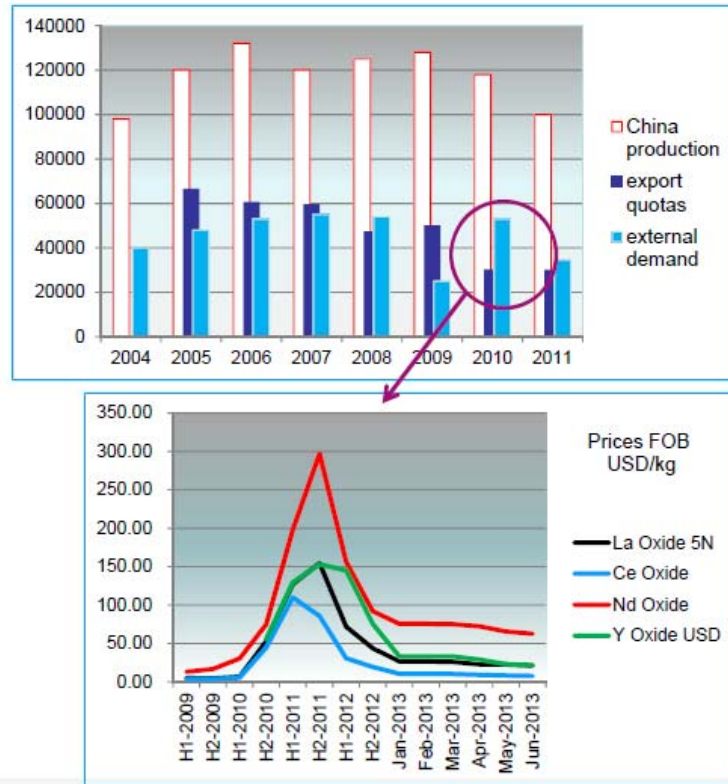


Figure 5 : Impact des quotas chinois sur les prix de vente terres rares⁷

- Outre la valorisation des terres rares et le coût de traitement lui-même, la justification technico-économique d'un procédé de retraitement du RSB réside dans l'optimisation du coût d'élimination du mix de déchets ultimes (filiales ISDD, CSTFA et FA/VL) résultant du retraitement, avec une difficulté d'appréciation de taille est que le prix du stockage du déchet FA/VL n'est pas connu à ce jour, ainsi que la sensibilité du coût unitaire du déchet FA/VL à la capacité du centre de stockage. Pour ce dernier point, il est régulièrement avancé que la réduction d'inventaire va à l'encontre de la réduction du coût unitaire (€/m³). Pour Solvay, il apparaît alors important que le modèle économique de l'ANDRA pour le centre FA/VL comporte des clauses financières incitatives qui encourageraient les producteurs mettant en œuvre des investissements significatifs en vue de réduire leur inventaire déchets.

⁷ Idem 4

4.2. Les différentes solutions de gestion

Les différentes solutions de gestion pour le RSB envisagées par SOLVAY sont résumées dans le tableau suivant. Elles ont été en bonne partie évoquées lors du groupe de travail d'optimisation des filières initié dans le cadre du PNGMDR 2010-2012.

Traitement	Filière Stockage	Eléments économiques	
		Stockage déchet	Valorisation
NON	Stockage de surface ou faible profondeur type résidus d'exploitation minerais ou concentrés uranium: stockage vrac	Coût unitaire réduit 200 à 600€/m3	non
NON	Stockage de surface "new" CSTFA à capacité Th renforcée; stockage en big bag		non
Thermique seul	Stockage FA/VL en fûts	Réduction poids/volume FA/VL: 8400t ---> 3950t, 7200 m3 vrac ---> 3050 m3 conditionné	non
Thermique seul	Stockage FA/VL, matériau de remplissage conteneur RRA si option fûts RRA en conteneur	Réduction volume global RRA + RSB (1 seul contenant)	non
Hydrométallurgique avec fusion alcaline	Stockage FA/VL en fûts , Stockage ISDD en vrac	Réduction volume FA/VL ++ (8400t --> 500t), 7200 m3 ---> 500 m3 production déchets ISDD (7000t @ 200€/t)	oui : 1000t équivalent oxydes de terres rares + Th nitrate (35t ThO2)

Tableau 9 : Options de gestion retenues

4.2.1. Option Stockage de surface sans traitement par analogie aux résidus miniers ou de traitement de concentrés d'uranium

4.2.1.1. Analogie radiologique des RSB et des résidus de traitements uranium

Le tableau ci-dessous compare les données radiologiques du RSB avec celles des déchets de traitement de minerais d'uranium, du type de ceux stockés dans les bassins de Bellezanne, ou de ceux à produire à Malvesi tels que présentés en réunion PNGMDR du 12 avril 2012. Les données d'activités ont été traduites en équivalent de dose : débit de dose gamma au contact, dose après ingestion et inhalation de 1g de produit. Les valeurs sont données ci-dessous à T=0.

		RSB	Résidus traitement Malvesi à produire	Résidus miniers lixi dynamique Bellezanne
Tonnage		8400	200000	1500000
		T=0	T=0	T=0
Famille Th 232				
Th232	Bq/g	14,9	0	0
Ra228	Bq/g	12,4	0	0
Th228	Bq/g	12,4	0	0
Famille U 238				
U238	Bq/g	5,8	30	2,5
U234	Bq/g	5,8	30	2,5
Th230	Bq/g	2,1	200	30
Ra226	Bq/g	3,5	0	30
Pb210	Bq/g	10,2	0	30
Po 210	Bq/g	10,2	0	30
Famille U 235				
U 235	Bq/g	0,3	1,5	<0,1
Pa 231	Bq/g	0,1	-	<0,1
Ac227	Bq/g	0,7	-	<0,1
IRAS pour acceptation CSTFA Morvilliers		4,5	2,3	3,6
Risque intrinsèque				
Débit de dose contact	μSv/h	9	0,20	11,2
Risque ingestion	mSv/g ingéré	0,023	0,045	0,09
Risque inhalation	mSv/g inhalé	1,17	3,00	0,71

Tableau 10 : Comparatif RSB avec déchets de traitements de minerais ou de concentrés uranium

Les résultats montrent que le RSB a intrinsèquement des impacts radiologiques potentiels tout à fait comparable aux déchets de l'industrie minière uranium pour des scénarios d'exposition par voie air, reconnus en général comme dimensionnant pour un centre de stockage de déchets radifères. Or, tels que présentés dans les différentes réunions PNGMDR, des solutions de stockage de surface ou à faible profondeur ont été retenues pour les déchets de traitements de mines d'U ou proposées par l'exploitant pour ceux de Malvesi.

Par analogie radiologique, et compte-tenu de sa grande stabilité chimique, le RSB doit pouvoir être stocké dans des conditions similaires en surface.

4.2.1.2. Stockage dans les anciens bassins de stockage de résidus miniers

D'un point de vue réglementaire, il semblerait que les bassins de stockage des résidus de traitement dynamique d'uranium soient, pour la plupart d'entre eux, classés sous la rubrique ICPE 1735 (« *Substances radioactives (dépôt, entreposage ou stockage de) sous forme de résidus solides de minerai d'uranium, de thorium ou de radium, ainsi que leurs produits de traitement ne contenant pas d'uranium enrichi en isotope 235 et dont la quantité totale est supérieure à 1 tonne* »). Dans une telle hypothèse, les conditions de leur remise en état (incluant notamment un confinement sous une couche de matériaux stériles) et de surveillance de ces bassins sont donc régies par des arrêtés préfectoraux au titre de cette rubrique.

Il pourrait dans ce cas être considéré que l'apport de RSB soit à apprécier à l'aune de l'article R. 512-33 du Code de l'environnement, imposant à l'exploitant d'une installation classée soumise à autorisation de porter à la connaissance du préfet, avant sa réalisation, toute modification apportée à l'installation, à son mode d'utilisation ou à son voisinage entraînant un changement notable des éléments du dossier de demande d'autorisation.

Il paraît probable que le seul fait de recevoir de nouveaux résidus dans les bassins miniers soit considéré comme une modification substantielle, entraînant la nécessité de solliciter la délivrance d'une nouvelle autorisation.

Même si cette piste apparaît donc comme relativement délicate à mettre en œuvre, du fait notamment qu'elle consisterait à stocker des déchets provenant d'un autre site dans des installations fermées et ayant fait l'objet de mesures de remise en état (confinement, végétalisation, etc.), il est à noter cependant qu'Areva Mines a récemment sollicité l'autorisation, au titre de la rubrique 1735 de la nomenclature des installations classées, de stocker des sédiments et terres radiologiquement marquées (issues du curage d'étangs et zones humides en aval des rejets de sites miniers, et présentant une teneur maximale en radioactivité en 238U de 3700 Bq/kg de matière sèche) sur l'ancienne mine d'uranium remise en état de Bellezane à Bessines. L'instruction de cette demande est en cours (enquête publique achevée fin octobre).

4.2.1.3. Stockage en mélange avec les déchets à produire à Malvesi

Cette option de gestion est en phase avec les demandes du PNGMDR 2012-2015. Ainsi, concernant plus particulièrement les déchets de Malvesi, reprenant les recommandations de l'ASN dans son avis n° 2012-AV-0166 du 4 octobre 2012 sur la gestion des situations temporaires ou historiques, lequel avait notamment souligné « *la nature similaire des risques associés au stockage de ces déchets à produire et à certains déchets uranifères ou thorifères* », ainsi que les préconisations du PNGMDR, le Projet de décret PNGMDR en date du 5 avril 2013 dispose que : « *II. - Concernant les déchets à produire de l'installation Comurhex de Malvesi, l'exploitant étudiera les conditions de gestion de ses déchets. Dans ce cadre, l'exploitant demande à l'Andra de réaliser l'étude du stockage de ces déchets et d'étudier les synergies possibles avec certains déchets uranifères ou thorifères afin de proposer des filières optimisées. AREVA et l'Andra remettent au plus tard le 30 septembre 2014 aux ministres chargés de l'énergie et de la sûreté nucléaire un rapport où figurent les orientations envisagées et les filières optimisées* ».

A ce titre, les principes d'optimisation technique et économique, de rationalisation des centres de stockage existants, et de proximité, pourraient utilement être mis en avant dans une démarche d'acceptabilité sociale de cette solution de gestion pour les RSB.

Cette piste soulève des problématiques moindres que celle des bassins miniers, notamment car le site Comurhex dispose déjà d'installations de stockage autorisées sous la rubrique 1735, en fonctionnement, et est règlementée comme une installation nucléaire de base, et ainsi déjà encadrée par des prescriptions techniques spécifiques.

Les modalités d'admissibilité du RSB devront être définies en lien avec l'Andra, dont c'est la mission, étant précisé que les RSB ne constitueraient vraisemblablement pas les seuls résidus ayant vocation à être stockés dans ces installations. Cette modalité de gestion aurait d'autant plus d'intérêt qu'elle pourrait s'inscrire dans le cadre d'une solution plus globale, non limitée aux RSB.

Solvay se rapprochera courant 2014 d'AREVA et de l'Andra pour approfondir ce scénario.

Le coût d'un tel stockage en surface devrait être à notre avis comparable à celui défini pour les ISDD, soit autour de 200€/T.

4.2.2. Option Stockage de surface sans traitement : nouveau CSTFA ANDRA

La capacité en thorium 232 du CSTFA de Morvilliers est très limitée (11,6 GBq) et représente pour une capacité de stockage de déchets, soit 650000t, une activité massique ajoutée de 20 Bq/kg, soit moins de deux fois l'activité en ²³²Th de l'écorce terrestre. Cette capacité thorium représente environ 1/10^e du contenu thorium du RSB.

En terme d'IRAS, la valeur moyenne du RSB est environ quatre fois celle admise au maximum pour un lot moyen au CSTFA. Cependant le calcul de l'IRAS pour la filiation thorium apparaît un peu biaisé par le fait que stocker 1 Bq de Th232 revient naturellement à accepter à stocker 1 Bq de Ra228 et 1 Bq de Th228 par le fait des rééquilibres radioactifs. Ainsi la limite d'activité de 10 Bq/g de Th232, tel que définie au CSTFA conduit mathématiquement à un IRAS égal à 3 pour un produit radiologiquement équilibré comme le RSB. S'agissant du RSB, la prise en compte des 3 RN (Th232, Ra228 et Th 228) pour le calcul de l'IRAS, comme il est défini au CSTFA de Morvilliers, apparaît redondant dans l'appréciation du risque.

Dans ce cas, Solvay propose de demander à l'Andra d'étudier l'impact du stockage du RSB pour les scénarii définis pour le futur centre CSTFA et dont l'ouverture est annoncée à partir de 2025, en testant notamment une capacité thorium portée à 50t. Cette augmentation de capacité sera sans incidence sur le classement ICPE du nouveau CSTFA.

4.2.3. Option Stockage FA/VL avec retraitement thermique

Solvay a mené une étude portant sur la calcination du RSB qui montre qu'à partir de 900°C, outre l'élimination de l'eau, on observe un effet de frittage densifiant. Ceci permet de réduire la pulvérulence du produit et conduit, après tassage mécanique, à une réduction de volume d'un facteur 2.5, soit un volume final non conditionné de 2900m³. L'activité spécifique du produit final calciné (3950t) serait alors multipliée d'un facteur 2 environ par rapport à celle du RSB actuel.

Une estimation technico-économique a été réalisée par l'ingénierie de Solvay permettant de définir un coût d'investissement, les coûts fixes et proportionnels de ce traitement thermique. Le coût de traitement, d'une durée prise à 6 ans est ainsi estimé autour de 7-8 M€, investissement compris, intégrant un conditionnement en fûts acier de 220l, soit un volume conditionné de 3050 m³.

Si l'Andra imposait le conteneur 5,9m³ pour le colisage des fûts RRA, le RSB calciné servirait de matériau de remplissage du vide entre les fûts de RRA dans le conteneur (environ 6000m³ de vide à combler). Dans ce cas, les fûts de RRA seraient mis en conteneurs à Cadarache et ramenés à la Rochelle. Le remplissage par le RSB calciné se ferait à la Rochelle avant renvoi au centre FA/VL.

4.2.4. Option Stockage FA/VL avec retraitement hydro métallurgique

Solvay a réalisé en 2012-2013 une étude R&D d'un procédé de retraitement chimique du RSB visant :

- à isoler le thorium, à l'origine du classement du RSB en FA/VL, car non accepté en CSTFA,
- à valoriser le contenu en terres rares
- à réduire de façon substantielle le volume ultime de déchets de type FA/VL.

La validation du procédé est désormais acquise. Le schéma de traitement est illustré sur la figure donnée ci-dessous. Les caractéristiques du procédé sont les suivantes :

- rendements de récupération des terres rares et du thorium, sous forme nitrate, autour de 92% :
 - Le nitrate de thorium serait entreposé en fût inox dans les cellules d'entreposage actuelles en attente de valorisation ultérieure
 - Les nitrates de terres rares seraient directement valorisés au fil de l'eau
- Les radiums 226 et 228, éliminés quasi totalement des résidus d'attaque nitrique (RRN), suivent le flux terres rares et sont séparés de celles-ci par coprécipitation avec du sulfate de baryum, sous forme d'un résidu radifère : autour de 500t sont ainsi produits. L'activité en Ra226 de ce résidu radifère est voisine de 60 Bq/g, celle en Ra228 voisine de 200 Bq/g. Ces résidus seraient conditionnés de manière identique aux RRA, représentant ainsi 500m3.
- Les résidus d'attaque du traitement (RRN) contiennent le thorium résiduel (2 à 3t) et sont stabilisés par le sous-produit phosphate de calcium généré par le traitement insolubilisant des phosphates par de la chaux. Le contenu en thorium du mélange ainsi obtenu reste cependant voisin de 2-3t (sur les 35t engagés dans le RSB), ce qui rendrait toujours incertain son acceptation dans le CSTFA actuel. L'activité spécifique en Th et U de ce déchet gâteau phosphate (de l'ordre de 7000t) est de l'ordre de 1-2 Bq/g, ce qui permettrait cependant son stockage en ISDD, voire dans le nouveau CSTFA à venir, si celui-ci a une capacité en thorium accrue par rapport à celui actuellement en fonctionnement.

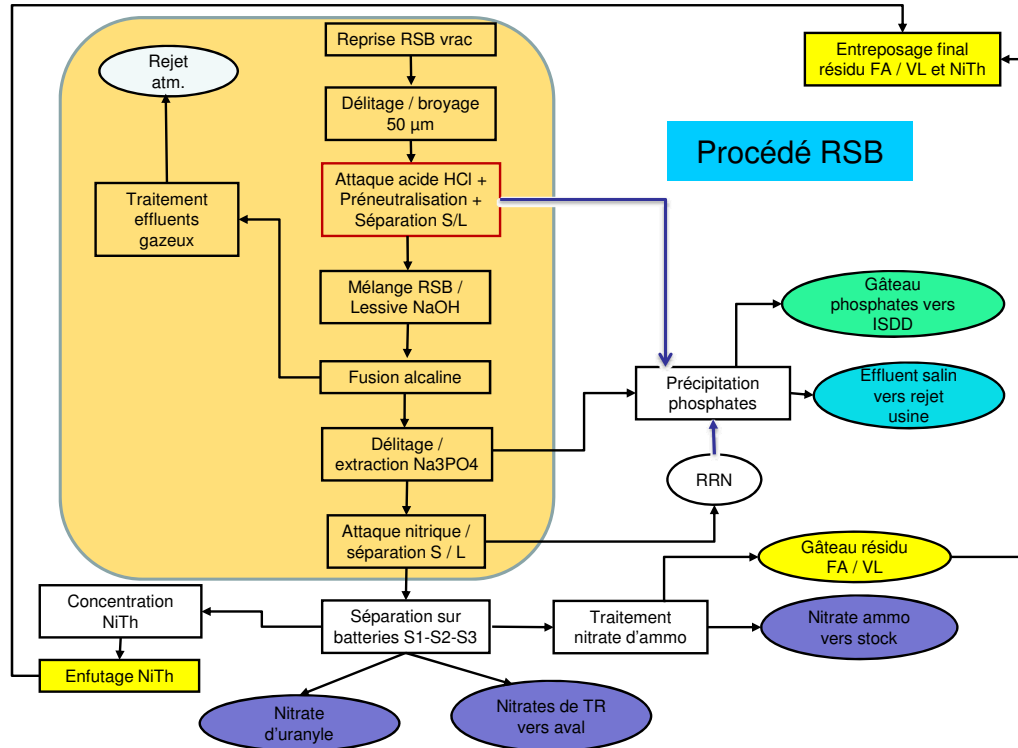


Figure 6 : Schéma de retraitement du RSB

Compte-tenu du niveau d'investissement de plusieurs dizaines de millions d'euros estimé lors d'une étude d'approche (+/-30%), Solvay a étendu l'étude de retraitement en vue d'optimiser technico-économiquement la gestion globale des déchets et matières stockées sur le site de La Rochelle: matières thorifères (HBTh, nitrate de thorium), RSB et MES. Ce travail a permis notamment de valider la conception d'une installation polyvalente adaptée au retraitement séquentiel des trois produits sur une quinzaine d'années: MES, puis HBTh jusqu'à obtention RRN, puis RSB, enfin traitement RRN ex-HBTh.

Fonction	HBTh - RRN	NiTh	RSB	MES	Commentaires
Mise en œuvre poudres initiales	Fûts de poudres	Fûts PE	Vrac (contenant à définir)	Vrac (contenant à définir)	Sur installation définie par ATR
Réaction 1 et filtration 1	Lavages chlorures	Dissolution NiTh	Attaque acide	Mise en suspension	3 réacteurs et filtre à bande
Reprise nitrique 1	Reprise nitrique directe	-	-	Reprise nitrique directe	3 réacteurs et filtre rotatif
Séchage	Séchage RRN ex RN directe	-	Séchage post attaque acide	Séchage RRN ex RN directe	Séchoir pneumatique
Fusion alcaline	Fusion RRN	-	Fusion RSB	Fusion RRN	Four verrier à la soude
Délitage / Extraction PO4	Délitage / extraction	-	Délitage / extraction	Délitage / extraction	Réacteur + 3 mélangeurs / décanteurs
Reprise nitrique finale	Reprise nitrique RRN	-	Reprise nitrique RSB	Reprise nitrique RRN	Réacteur + 3 mélangeurs / décanteurs + filtre presse
Batteries	Flux ex RN1 et RN finale	-	Flux ex RN finale	Flux ex RN1 et RN finale	3 batteries
Concentrations	NTR, U, Th, NA	NiTh	NTR, U, Th, NA	NTR, U, Th, NA	5 concentrations
Extraction uranium	Sur effluents chlorés	-	-	-	Résines
Traitement R* sur CA	Sur effluents chlorés	occasionnel	occasionnel	occasionnel	2 étages au BaSO4
Traitement R* sur NA	NA ex batteries	-	NA ex batteries	NA ex batteries	2 étages au BaSO4
Précipitation PO4	Flux délitage ex fusion	-	Flux délitage et attaque acide	Flux délitage ex fusion	Station PC type SFC
Décroissance CA	Sur effluents chlorés	occasionnel	occasionnel	occasionnel	3 cuves
Décroissance NA	NA ex batteries	-	NA ex batteries	NA ex batteries	5 cuves
Traitement RRA	BaSO4 (+ RRA final)	-	BaSO4	BaSO4	Séchage (+ compactage)

Tableau 11 : Description fonctionnelle d'une installation de traitement séquentiel des matières et déchets Solvay

- La valorisation porte désormais sur 8000t de terres rares, 2200 t de thorium et 110t d'uranium.
- La quantité de déchets radifères de type FA/VL est globalement estimée à 7000t
- La quantité de déchets redevables d'un ISDD ou CSTFA est de l'ordre de 19000t
- Les terres rares et l'uranium sous forme nitrate sont directement valorisables
- Enfin, le thorium sous forme nitrate est entreposé dans des conditions d'entreposage compatibles (fûts inox) avec une valorisation à moyen terme. En séance plénière du PNGMDR du 4 octobre 2013, il a été précisé notamment que la valorisation du thorium, au sein de la filière nucléaire, est une perspective effective à moyen terme. Elle suscite un intérêt international croissant. Areva et Solvay mettent en place un programme de R&D appliquée significatif qui vise à la réalisation d'un dossier d'autorisation de combustibles au thorium pour 2030.

La validation technico-économique qui a ainsi été réalisée confirme à moyen terme, en lien avec la valorisation du thorium et l'ouverture d'un centre FA/VL, l'intérêt d'une mise en œuvre industrielle d'un retraitement de l'ensemble des matières HBTh, MES et déchets RSB.

5. CONCLUSIONS

Les RSB produits entre septembre 1993 et septembre 1994 sont entreposés sur le site Solvay de La Rochelle de manière pérenne à l'horizon de l'ouverture du futur centre FA/VL.

Ils ont fait l'objet de nombreuses caractérisations chimiques et radiologiques qui ont permis d'évaluer différents modes de gestion pendant ces deux dernières années : stockage en surface sans traitement, stockage en sub-surface avec traitement thermique ou traitement hydrométallurgique.

Les objectifs visés sont multiples : optimisation des filières existantes ou à créer, réduction de volume de déchets FA/VL, valorisation des éléments terres rares et thorium.

L'option traitement thermique du RSB avec stockage dans le futur centre permet diviser par 2.5 le volume inventorié.

Cependant, l'activité radiologique du RSB ainsi que sa stabilité chimique permettent d'envisager des solutions de stockage de surface, en cohérence avec les solutions retenues ou étudiées pour des déchets d'impact radiologique comparables. L'étude de cette solution doit être poursuivie dans le cadre de la réflexion plus globale de gestion de certains déchets uranifères et thorifères telle que demandée en 2014 à l'ANDRA par le PNGMDR 2012-2015 et ainsi que dans le cadre de la définition d'un nouveau CSTFA.

La solution de retraitement chimique du RSB définie par Solvay permet de valoriser les terres rares contenues, d'isoler le thorium et ainsi de réduire de manière substantielle le volume de déchets FA/VL ultimes d'un facteur 10 environ. Cette solution nécessite cependant un investissement de plusieurs dizaines de millions d'€ qui a amené Solvay à intégrer ce retraitement dans un cadre plus global de gestion optimisée des matières et déchets actuellement entreposés à La Rochelle.

Le niveau de rentabilité économique d'un tel investissement est alors subordonné à plusieurs facteurs encore inconnus ou très variables tels que la date d'ouverture du centre FA/VL, le coût du stockage FA/VL (et sa sensibilité à l'inventaire), le type de colisage, le prix de valorisation des terres rares et bien évidemment la valorisation à moyen terme du thorium.