

Fontenay-aux-Roses, le 29 mars 2016

Monsieur le président de l'Autorité de Sûreté Nucléaire

Avis/IRSN N° 2016-00061

Objet : AREVA NC - Etablissement de La Hague
Colis standard de déchets de reliquats de verre UMo obtenus à l'issue des campagnes de production des CSD-U (CSD-RU)

Réf. Lettre CODEP-DRC-2015-043053 du 2 novembre 2015

Par lettre en référence, vous avez demandé l'avis de l'IRSN sur le dossier transmis par AREVA NC pour accompagner sa demande d'approbation de la spécification de production de colis standard de déchets de reliquats de verre UMo (CSD-RU) obtenus à l'issue des campagnes de production des colis CSD-U. Vous demandez en particulier à l'IRSN d'analyser les points suivants :

- les caractéristiques physiques et la formule de composition des reliquats de verre UMo ;
- l'évolution des paramètres garantis et complémentaires du colis de reliquat de verre UMo et les incertitudes associées, notamment pour ce qui concerne le taux de vide ;
- la différenciation du conditionnement des reliquats et des poussières.

1. Contexte et historique

La décision ASN n°2011-DC-0229 du 14 juin 2011 autorise la production en creuset froid de colis standard de déchets vitrifiés CSD-U pour le conditionnement des solutions de produits de fission issues du retraitement de combustibles UMo et UMoSnAl (regroupés sous l'appellation générique UMo) irradiés dans les réacteurs de la filière uranium naturel graphite gaz (UNGG), conformément à la spécification 300 AQ 059 version 00. A l'issue de chaque campagne de production de ces colis, un reliquat de verre UMo et des poussières recouvrent des éléments du creuset froid (parois froides, agitateur et cannes de mesure de température). L'article 6 de la décision susmentionnée précisait « *Un an après la publication de la présente décision, AREVA NC transmettra à l'Autorité de sûreté nucléaire les modalités retenues pour la gestion des reliquats de verre à l'issue des campagnes de production et le cas échéant demandera les autorisations ad hoc pour leur mise en œuvre* ». En réponse à cette demande, AREVA NC a transmis en 2013 un dossier en support à sa demande d'approbation de la spécification de production de colis CSD-RU de reliquats de verre UMo et de poussières. Après avoir étudié différents conditionnements pour la gestion des reliquats et des poussières générés lors de la production des colis de déchets vitrifiés CSD-U, AREVA NC a retenu une mise en conteneur standard de déchets (CSD) sans traitement préalable avec ajout de billes de verre

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

borosilicaté comme matériau de remplissage pour combler au maximum les vides. Il convient de noter qu'au regard de leurs caractéristiques radiologiques, les déchets correspondants aux colis CSD-RU relèvent de la catégorie de déchets dits de haute activité (HA) pour lesquels le stockage en formation géologique profonde constitue la solution de gestion à long terme étudiée. A l'issue de l'examen du dossier initial, l'ASN a indiqué ne pas pouvoir donner en l'état son accord sur le référentiel de conditionnement proposé et a demandé notamment à l'exploitant de :

- réviser la méthode de calcul des fractions massiques des éléments constitutifs des reliquats de verre UMo ;
- différencier le conditionnement des reliquats de verre UMo et des poussières, en raison de l'activité massique particulièrement élevée de celles-ci en comparaison de celle du verre UMo ainsi que de leur caractère dispersable ;
- retenir le niveau de remplissage et le ratio reliquat de verre UMo sur matériau de remplissage ou tout autre paramètre associé à la méthode de détermination du taux de vide comme paramètre garanti.

En réponse, AREVA NC a transmis un dossier de mise à jour de la spécification de production des colis CSD-RU et de ses documents supports. De l'examen de ce dossier, l'IRSN retient les éléments suivants.

2. Caractérisation physico-chimique des reliquats

Des analyses physico-chimiques ont été réalisées sur des échantillons provenant de reliquats issus d'essais technologiques de qualification des verres UMo en inactif afin de caractériser la structure et la composition chimique des reliquats. Des paramètres d'essais variés (température d'élaboration, durée de la campagne, vitesse de rotation de l'agitateur, fritte de démarrage) ont été testés lors de ces essais. Des modes dégradés (température inférieure à la température minimale de fonctionnement par exemple) ont également été simulés. Il ressort des analyses que les reliquats sont constitués de trois strates qui se forment successivement sur les équipements. La première strate possède des caractéristiques chimiques et structurales très proches de celles de la fritte de démarrage (fritte introduite dans le creuset froid pour amorcer le procédé au début d'une campagne de production de colis CSD-U et avant introduction du calcinat de produits de fission). La deuxième strate est une couche hétérogène constituée de phases cristallisées (essentiellement molybdates de calcium et phosphates de calcium) enveloppées par une phase vitreuse borosilicatée. AREVA NC a observé que son épaisseur augmente, d'une part avec la durée de la campagne, d'autre part avec la variation de la teneur en molybdène censée simuler les possibles variations des effluents UMo lors de leur reprise. Elle présente, par rapport au verre UMo, une surconcentration en traceurs de certains radionucléides. Celle-ci s'explique par le gradient de température entre les parois froides du creuset et le bain de verre en fusion conduisant localement à des conditions favorables à la formation de phases cristallisées riches en ces éléments. Les deux premières strates constituent ce que l'on appelle l'auto-creuset engendré par le système de refroidissement du creuset et ayant pour fonction de le protéger de la corrosion. Enfin, les caractéristiques de la troisième strate correspondent au verre UMo de la dernière élaboration de colis CSD-U qui s'est figé à l'arrêt de la campagne. Ainsi, le reliquat est formé de l'auto-creuset et du verre figé.

AREVA NC a confirmé par ailleurs ces caractéristiques sur les reliquats formés lors des premières campagnes de production industrielle des colis CSD-U. **Sur la base de cet ensemble d'études, l'IRSN estime que la caractérisation physico-chimique des reliquats peut être considérée comme établie.**

3. Composition chimique des reliquats

3.1 Hypothèses retenues pour modéliser la composition chimique des reliquats

Les études précédentes ont montré que l'épaisseur de la deuxième strate est un paramètre variable selon les campagnes. AREVA NC fait l'hypothèse que la composition chimique de l'auto-creuset est celle de la deuxième strate enrichie en radionucléides. **L'IRSN considère que cette hypothèse permet de couvrir la variabilité d'épaisseur des strates.**

En outre, toujours sur la base des résultats des essais en inactif et des premières campagnes de production industrielle, AREVA NC retient pour l'auto-creuset une masse de 66 kg, enveloppe des différentes masses produites. **Ces hypothèses conduisent à une estimation majorante des quantités de radionucléides dans les reliquats, ce qui est satisfaisant.**

3.2 Détermination des fractions massiques

Compte-tenu des hypothèses susmentionnées, AREVA NC a ciblé ses études sur la détermination des fractions massiques des éléments constitutifs des deuxième et troisième strates.

S'agissant de la deuxième strate, et pour répondre aux critiques formulées lors de l'examen du précédent dossier, AREVA NC propose une méthode révisée de la détermination des fractions massiques des éléments constitutifs. Les fractions massiques des éléments présents dans les essais en inactif sont directement déduites des analyses physico-chimiques réalisées sur les reliquats formés lors de ces essais. Pour ce qui concerne les éléments qui ne sont pas présents (du fait de leur caractère radioactif ou de leur présence en très faible quantité dans les solutions de produits de fission), leurs fractions massiques sont déduites des fractions massiques d'éléments traceurs (pour illustration le néodyme est traceur de l'américium), en utilisant des coefficients de corrélation. Ainsi, la surconcentration de certains radionucléides dans la deuxième strate est bien prise en compte à travers la surconcentration de leurs traceurs. **L'IRSN estime que cette nouvelle méthode de détermination des fractions massiques est satisfaisante et note qu'elle conduit à une estimation de l'activité totale et des activités en américium, césium et strontium par colis plus importante qu'auparavant.**

S'agissant de la troisième strate, les fractions massiques des éléments constitutifs sont celles du dernier verre UMo de la campagne, déterminées en exploitation. **Ces éléments n'appellent pas de commentaire particulier.**

4. Gestion des poussières et des reliquats

AREVA NC a défini un protocole de retrait des poussières du creuset froid avant récupération du reliquat. Ce protocole est mis en œuvre au moyen d'un aspirateur à vide nucléarisé suivant une séquence opératoire prédéfinie (aspiration du dôme, des parois puis du fond du creuset froid). Les poussières sont alors transférées dans une clayette pour entreposage. Les reliquats font ensuite l'objet d'un concassage manuel jusqu'à l'obtention d'une granulométrie permettant leur évacuation

via la vanne de coulée en fond de creuset. Cette technique conduit à l'obtention de morceaux de reliquats de différentes tailles dont certains nécessitent d'être récupérés à l'aide de l'aspirateur à vide susmentionné. A cet égard, **l'IRSN souligne qu'il conviendra que l'exploitant s'assure du transfert effectif des poussières de l'aspirateur vers la clayette avant aspiration éventuelle des morceaux de reliquat afin d'éviter tout mélange fortuit.**

Le retour d'expérience des premières campagnes de production industrielle montre que les masses de poussières récupérées sont comprises entre 2 et 3 kg. L'IRSN note que ces valeurs sont cohérentes avec ce qui avait été observé lors des essais en inactif (entre 1,5 et 5,9 kg avec une moyenne de 3 kg).

AREVA NC a par ailleurs indiqué envisager une redissolution chimique des poussières ainsi récupérées. Dans l'hypothèse où cette solution serait retenue, l'IRSN estime que l'exploitant devrait démontrer, compte-tenu de la composition des poussières, l'absence d'altération des parois en acier des équipements du procédé de redissolution. En tout état de cause, **AREVA NC devra présenter les modalités de gestion des poussières formées lors de l'élaboration du verre UMo.**

S'agissant du remplissage des conteneurs CSD avec les reliquats, AREVA NC a procédé à des essais de qualification visant à déterminer les conditions à respecter pour garantir une hauteur maximale de remplissage des conteneurs de 1230 mm (pour éviter les risques de débordement et faciliter la manutention) et un taux de vide inférieur à 25% du volume interne du conteneur sous une pression de 12 MPa (critère ayant fait l'objet d'échanges techniques entre l'Andra et AREVA NC). Il ressort des essais qu'une hauteur minimale de remplissage de 1031 mm ainsi qu'un ratio massique reliquat sur billes de verre maximal de 2,5 doivent être respectés. Conformément à la demande de l'ASN, **AREVA NC a ajouté ces critères aux paramètres garantis précisés dans la spécification de production des colis CSD-RU. Cette évolution s'accompagne de la suppression du paramètre complémentaire relatif au respect du mode opératoire de remplissage pour la constitution du colis, ce qui n'appelle pas de remarque.** Dans les conditions susmentionnées, la masse maximale de reliquats pouvant être introduite dans le conteneur est de 210 kg.

5. Estimation du nombre de colis

AREVA NC a estimé que la vitrification des solutions de produits de fission issues du retraitement de combustibles UMo devrait conduire à la production d'environ 1000 colis CSD-U. Il avait été considéré à l'origine qu'un reliquat d'environ 70 kg serait récupéré à l'issue de chaque campagne de 100 colis CSD-U. Sur la base d'un conditionnement de 3 reliquats par colis, une production de 4 colis CSD-RU pouvait être attendue. Or, les cinq premières campagnes de production devraient générer environ 5 colis CSD-RU du fait des masses de reliquats obtenues plus importantes que prévues, pour une production de 103 colis CSD-U. Afin de tenir compte du processus de fiabilisation du procédé, AREVA NC retient à ce stade une valeur de 10 colis CSD-RU. **L'IRSN estime cependant, sur la base du retour d'expérience des premières campagnes, qu'il n'est pas exclu que le nombre de colis CSD-RU soit plus important.**

6. Performance du colis primaire en phases d'entreposage et d'exploitation du stockage

L'IRSN observe que le conditionnement retenu pour les reliquats de verre conduit, du fait de l'absence de matrice de blocage, à faire reposer en partie les performances de confinement du colis

CSD-RU sur le conteneur. A cet égard, AREVA NC présente dans son dossier des éléments relatifs à la performance du conteneur vis-à-vis de sa manutention et de son comportement en phases d'entreposage et d'exploitation du stockage géologique.

AREVA NC estime que pour la tenue mécanique et la résistance à la corrosion, hors situation accidentelle (situation dite normale), les résultats des études de qualification du colis CSD-U sont directement transposables aux colis CSD-RU compte-tenu que les conteneurs utilisés sont les mêmes et que les étapes de production (décontamination, traitement de surface, entreposage) sont identiques. Les principaux résultats de ces études sont les très bonnes propriétés intrinsèques de l'acier du conteneur, le faible risque de fluage (grâce à une puissance thermique modérée de l'ordre de 100 W par colis), les cinétiques de corrosion externe extrêmement faibles, les cinétiques de corrosion interne négligeables (vide apical faible et cinétiques de corrosion par le verre nulles en dessous de 500°C) ainsi que l'absence d'altération métallurgique susceptible de remettre en cause le comportement en corrosion sur la période d'entreposage. **Compte-tenu que la masse du colis CSD-RU est inférieure à celle du colis CSD-U, que sa puissance thermique est comparable et que, de plus, le conteneur ne subit pas de cycle thermique dû à la coulée, l'IRSN juge raisonnable la transposition des performances de tenue mécanique et de résistance à la corrosion des colis primaires CSD-U aux colis primaires CSD-RU en situation normale en phases d'entreposage et d'exploitation du stockage géologique.**

S'agissant des situations accidentelles, AREVA NC précise que la qualification du colis CSD-U vis-à-vis de la tenue à la chute n'est en revanche pas directement transposable au colis CSD-RU du fait de l'absence de matrice de blocage et de la présence d'un matériau de remplissage. Un effet rebond des matériaux doit être pris en compte. AREVA NC a donc réalisé des modélisations de la tenue à la chute du colis primaire CSD-RU. Trois configurations ont été simulées pour couvrir les différentes situations de manutention du colis primaire. Les calculs montrent que l'intégrité des conteneurs est conservée pour les trois configurations et que ceux-ci ne subissent pas de déformation incompatible avec leur reprise. AREVA NC note en particulier que l'exigence de l'Andra (résistance du colis primaire à une chute d'une hauteur de 5 mètres sur une dalle indéformable) est couverte par ces études mais indique être dans l'attente d'exigences actualisées de l'Andra relatives à la prise en compte d'une sollicitation thermique du colis primaire résultant d'une augmentation de la température du surconteneur (en alvéole durant la période d'exploitation réversible du stockage). Il convient de noter qu'à ce stade, **la validité des hypothèses retenues par AREVA NC dans ces modélisations n'a pas été examinée par l'IRSN.** A cet égard, l'IRSN rappelle que les spécifications préliminaires d'acceptation des colis pour le stockage géologique sont attendues concomitamment à la transmission du dossier d'option de sûreté (DOS) de Cigéo. Par ailleurs, l'analyse des risques liés à l'exploitation du stockage sera présentée par l'Andra dans le dossier accompagnant la demande d'autorisation de création (DAC) de Cigéo.

7. Résistance des reliquats à la lixiviation après fermeture du stockage

Pour la modélisation du comportement à long terme des colis CSD-RU, AREVA NC retient un modèle de type $V_0.S$ pour le relâchement des radionucléides, et a acquis en inactif des données relatives aux vitesses d'altération et à la surface développée par les reliquats.

7.1 Vitesses d'altération

Des expériences de lixiviation ont été réalisées en eau pure renouvelée sur des échantillons issus des essais en inactif. L'IRSN souligne que le renouvellement de l'eau conduit à maintenir l'altération à une vitesse plus importante qu'en conditions de stockage géologique. La détermination, pour des échantillons de reliquats correspondant aux différentes strates, des vitesses d'altération initiales à 100°C sur la base du relâchement du bore (représentatif des phases vitreuses), a permis de mettre en évidence plusieurs vitesses d'altération selon la strate considérée. La vitesse d'altération la plus importante a été observée pour l'échantillon de la deuxième strate.

Pour celle-ci, des essais complémentaires sur deux échantillons à 30°C et 50°C (températures plus représentatives de celles attendues pour ces colis en situation de stockage géologique) ont conduit à l'obtention de valeurs de vitesses d'altération, pour les phases cristallisées et vitreuses, supérieures de un et deux ordres de grandeur à celle du verre UMo (respectivement pour le molybdène, représentatif des phases cristallisées, et le bore). **AREVA NC retient comme vitesse d'altération de la deuxième strate la valeur de la vitesse d'altération des phases vitreuses, ce qui est satisfaisant.** L'IRSN souligne que le nombre d'échantillons ayant fait l'objet d'une lixiviation est faible. A cet égard, AREVA NC a indiqué au cours de l'instruction avoir prélevé plusieurs échantillons sur la deuxième strate et avoir systématiquement observé les mêmes caractéristiques microstructurales.

Afin de prendre en compte différentes conditions de stockage dépendantes du concept, les effets du pH (pH 6 à 12,5) et de la composition de la solution altérante a été considéré. Pour ce qui concerne les phases cristallisées, les effets d'une augmentation du pH et de la composition de la solution altérante a été modélisé par l'exploitant au moyen du code de calcul géochimique CHESS. Les calculs n'ont pas mis en évidence de modification significative de l'altération des phases cristallisées sur la gamme de pH étudié en eau pure et en eau représentative de celle du Callovo-Oxfordien. L'IRSN rappelle par ailleurs que selon la littérature une augmentation de la vitesse initiale d'altération des phases vitreuses est observée dans ces conditions. Il convient de noter qu'à ce stade, **la validité des hypothèses retenues par AREVA NC dans ses modélisations n'a pas été examinée par l'IRSN. Toutefois, les modèles de comportement à long terme des colis de stockage qui seront retenus in fine dans la démonstration de sûreté de Cigéo feront l'objet d'une analyse détaillée des hypothèses qui les sous-tendent.**

S'agissant du matériau de remplissage, AREVA NC souligne que sa lixiviation devrait peu influencer le pH de la solution altérante et ne pas avoir d'effet défavorable sur le comportement à long terme des reliquats de verre UMo, **ce qui n'appelle pas de remarque particulière.**

7.2 Surface développée

La méthodologie d'évaluation de la surface développée a reposé sur l'étude de deux reliquats issus d'essais en inactif, par tomographie pour les morceaux les plus gros, et par granulométrie pour les morceaux de plus petite taille. Cette évaluation a conduit à une surface développée moyenne de 136 m² dont la représentativité, selon AREVA NC, est confortée par la concordance des mesures entre les deux reliquats étudiés. **A cet égard, l'IRSN souligne que l'évaluation de la surface développée par les reliquats constitue une avancée notable qui permet une estimation satisfaisante de l'ordre de grandeur de la surface développée.**

7.3 Transposition en actif

S'agissant de la transposition des études de lixiviation réalisées en inactif sur des matériaux réels, aucun élément n'a été apporté par AREVA NC dans le dossier examiné. Toutefois, l'IRSN rappelle que les expérimentations conduites sur des verres dopés ou soumis à des irradiations externes dans le cadre de la qualification des colis de type CSD-V (verres R7T7) ont montré une conservation des phénomènes et des ordres de grandeur des vitesses d'altération initiales déterminés sur verres inactifs. Aussi, l'IRSN n'attend pas de modification significative des phénomènes d'altération de reliquats réels en regard des échantillons inactifs étudiés.

Ainsi, l'IRSN estime que les études complémentaires menées par AREVA NC sur la lixiviation des reliquats sont globalement pertinentes. Le modèle de comportement $V_0.S$ développé s'appuie sur un ensemble de données de qualité qui tiennent compte de conditions représentatives de l'environnement du stockage géologique et d'hypothèses pénalisantes quant à la lixiviation des reliquats. L'IRSN rappelle que les modèles de comportement à long terme des colis de stockage qui seront retenus in fine dans la démonstration de sûreté de Cigéo feront l'objet d'une analyse détaillée des hypothèses qui les sous-tendent.

8. Relâchement des radionucléides

Les hypothèses sur la composition chimique des reliquats conduisent à une estimation majorante du contenu radiologique des colis CSD-RU (activité par colis environ 1,5 fois plus élevée que celle d'un colis CSD-U). Sur la base du modèle de comportement présenté ci-avant et d'un calcul simplifié du relâchement, AREVA NC a comparé les activités relâchées après fermeture du stockage par les 10 colis CSD-RU et par 1000 colis CSD-U. AREVA NC conclut de cette comparaison que la contribution à long terme des colis CSD-RU est inférieure à celle des colis CSD-U.

L'IRSN convient que les éléments produits par AREVA NC conduisent à relativiser la contribution des colis CSD-RU à l'impact radiologique d'un stockage en milieu géologique profond et souligne que cette conclusion ne devrait pas être remise en cause dans le cas où le nombre de colis CSD-RU finalement produits serait plus important.

Toutefois, compte-tenu de l'hypothèse faite par AREVA NC d'une vitesse de relâchement plus élevée que celle des colis CSD-U, l'IRSN considère que, pour la DAC de Cigéo, la démonstration de sûreté du stockage géologique devra présenter une analyse des conséquences d'une interception précoce du panache de radionucléides relâchés par les colis CSD-RU.

9. Conclusion

En conclusion, l'IRSN considère que les compléments apportés par AREVA NC pour ce qui concerne la caractérisation du reliquat, la définition des paramètres garantis et la modélisation de son comportement à la lixiviation sont satisfaisants. Aussi, l'IRSN estime que le conditionnement proposé par AREVA NC pour les reliquats issus de la production des colis CSD-U est acceptable. L'IRSN rappelle toutefois que les modèles de comportement des colis de stockage qui seront retenus in fine dans la démonstration de sûreté de Cigéo feront l'objet d'une analyse détaillée des hypothèses qui les sous-tendent.

S'agissant de la gestion des poussières formées au cours de l'élaboration des verres UMo, l'IRSN recommande que les observations et les demandes formulées dans le présent avis et rappelées en annexe soient prises en compte.

Pour le Directeur général et par ordre,
Christophe SERRES
Chef du Service d'expertise des déchets radioactifs
et de la radioactivité naturelle

Pièce jointe : 1 annexe

L'IRSN recommande que les demandes ci-dessous soient prises en compte.

1. AREVA NC devra s'assurer du transfert effectif en clayette des poussières formées au cours de l'élaboration du verre UMO avant aspiration éventuelle des morceaux de reliquat.
2. AREVA NC devra présenter les modalités de gestion des poussières formées lors de l'élaboration du verre UMO