

Fontenay-aux-Roses, le 24 juillet 2018

Monsieur le Président de l'Autorité de sûreté nucléaire

Avis IRSN/2018-00206

Objet : Établissement ORANO de La Hague  
Usines UP2-800 (INB n° 117) et UP3-A (INB n° 116)  
Augmentation de l'acidité des solutions de dissolution avec ajustage de  
l'acidité des solutions en entrée du premier cycle d'extraction

Réf. **Lettre ASN CODEP-DRC-2017-039030 du 2 octobre 2017**

Par lettre citée en référence, l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) demande l'avis et les observations de l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) sur le dossier de sûreté transmis par ORANO Cycle, en mai 2017, à l'appui de la demande d'autorisation de modification relative à l'augmentation de l'acidité des solutions utilisées pour la dissolution des assemblages combustibles dans les ateliers R1 et T1 des usines UP2-800 et UP3-A. L'acidité des solutions de dissolution obtenues est ajustée après l'opération de dissolution de manière à revenir dans les conditions de fonctionnement actuelles des ateliers. La demande porte sur le traitement, dans ces conditions, d'au plus 80 tonnes de métal lourd initial par an (tmi.an<sup>-1</sup>).

De l'examen de ces dossiers, tenant compte des informations transmises par ORANO Cycle au cours de l'instruction, l'IRSN retient les points suivants.

## 1 CONTEXTE

Dans les ateliers R1 et T1, sont réalisées les opérations de cisailage et de dissolution des assemblages combustibles. Les solutions de dissolution obtenues sont ensuite traitées dans les premiers cycles d'extraction des ateliers R2 ou T2, qui assurent la séparation de l'uranium et du plutonium, des produits de fission. Les solutions de produits de fission issues de ce procédé sont concentrées dans les évaporateurs de ces ateliers.

Le traitement de combustibles à haut taux de combustion conduit, d'une part à un encrassement plus rapide des dissolvants des ateliers R1 et T1 par des précipités de molybdate de zirconium (MoZr), d'autre part à une augmentation de l'entraînement de radionucléides dans les déchets de structure (coques et embouts).

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 8 440 546 018

Des essais réalisés en laboratoire, puis dans les ateliers R1 et T1, ont montré qu'une augmentation de l'acidité des solutions utilisées pour la dissolution des combustibles limite ces phénomènes. Aussi, actuellement, pour traiter certains combustibles à haut taux de combustion, l'exploitant augmente, sous couvert d'une autorisation particulière, l'acidité des solutions utilisées pour les dissolvants. L'acidité de la solution de dissolution obtenue est ajustée avant les opérations d'extraction réalisées dans l'atelier R2 ou T2 de façon à respecter le domaine de fonctionnement autorisé de ces ateliers. La modification objet du présent avis vise à pérenniser ce mode de fonctionnement à acidité augmentée de la dissolution, pour un tonnage maximal de 80 tml.an<sup>-1</sup>.

Le présent avis détaille plus particulièrement l'analyse des conséquences de la modification précitée sur les phénomènes de corrosion des équipements, celle-ci ayant peu d'incidence sur les autres points des analyses de sûreté. **De plus, les ajustements réalisés du procédé et des contrôles associés (redéfinition de seuils d'alarme...) n'appellent pas de remarque de l'IRSN.**

## **2 RISQUES DE CORROSION**

Pour rappel, les parois des équipements du procédé des usines de La Hague constituent le plus souvent la première barrière de confinement des matières radioactives. Par ailleurs, la géométrie de certains équipements intervient dans la prévention des risques de criticité. Aussi, il convient d'assurer leur intégrité dans le temps, l'un des phénomènes de vieillissement à considérer étant leur corrosion.

Sur ce point, à la conception, les matériaux constitutifs de ces équipements ont été notamment choisis sur la base de données bibliographiques ayant permis d'établir un domaine d'utilisation de chaque matériau en fonction des conditions de température et d'acidité. En outre, les solutions des procédés des usines de La Hague contiennent de nombreuses espèces chimiques, provenant notamment des combustibles irradiés et de la corrosion des matériaux. Certaines de ces espèces pouvant accélérer significativement la corrosion des matériaux, des analyses particulières ont été réalisées (par exemple pour le Pu(VI), Np(VI), Cr(VI)). Enfin, il est à noter qu'à l'occasion des réexamens périodiques de sûreté, des contrôles de conformité des équipements, notamment concernant leur état de corrosion, sont réalisés. Ces contrôles ont été renforcés pour les évaporateurs des solutions de produits de fission (fréquence annuelle), compte tenu d'une vitesse de corrosion plus importante qu'attendue à la conception.

Aussi, la démarche de l'exploitant dans le dossier objet du présent avis consiste à montrer, à chaque étape du procédé, que l'augmentation de l'acidité des solutions utilisées pour la dissolution des combustibles ne met pas en cause les critères de conception des équipements ou à justifier, sur la base d'essais complémentaires, que les vitesses de corrosion dans les nouvelles conditions de fonctionnement restent inférieures à celles considérées à la conception. De plus, il vérifie que l'augmentation des concentrations en espèces oxydantes (Pu(VI), Np(VI), Cr(VI)) ou favorisant la corrosion (fer, fluor, iode, platinoïdes) induite par ces conditions de fonctionnement modifiées n'a pas d'effet significatif sur la corrosion des équipements. **Cette démarche n'appelle pas de commentaire de l'IRSN.**

### **2.1 Équipements situés en amont de l'ajustement de l'acidité des solutions de dissolution**

L'exploitant considère que la modification présentée n'a pas de conséquence significative sur la corrosion des équipements situés en amont de l'opération d'ajustement de l'acidité des solutions de dissolution, à l'exception de ceux en acier inoxydable dont la température est supérieure à 60 °C. Cela concerne uniquement les roues à godets des dissolvants, leur butée et les galets sur lesquels tournent ces roues. **L'IRSN estime cette analyse satisfaisante.**

Concernant les exigences de sûreté, la géométrie des godets des dissolvants contribue à la prévention des risques de criticité. Par ailleurs, les dents d'entraînement et la butée des roues participent à la tenue des dissolvants en cas de séisme (maintien de leur étanchéité notamment). Il est donc nécessaire de garantir des dimensions minimales pour ces éléments.

Les galets des dissolvants sont périodiquement examinés et remplacés si besoin. L'exploitant indique que les examens visuels effectués lors de leurs démontages ne mettent pas en évidence de corrosion significative. Il estime donc que l'augmentation de l'acidité de la solution des dissolvants n'a pas d'incidence sur le maintien des exigences de sûreté des galets. **Cela n'appelle pas de remarque de l'IRSN.**

Pour évaluer les risques de corrosion des roues des dissolvants, l'exploitant se réfère aux résultats de dissolutions dites « blanches » (sans combustible) réalisées entre 2005 et 2007 pour différentes acidités de solution (nominales et augmentées), ainsi qu'aux mesures d'épaisseur résiduelle des godets des roues des dissolvants effectuées dans le cadre des réexamens de sûreté. Il en conclut que la vitesse de corrosion des roues des dissolvants augmente significativement lorsque l'acidité de la solution de dissolution augmente. Toutefois, compte tenu du fait que le fonctionnement à acidité augmentée d'un dissolvant est limité à  $80 \text{ tml.an}^{-1}$  (représentant de l'ordre de 10 % du temps de fonctionnement), l'augmentation de la vitesse moyenne de corrosion des roues des dissolvants serait au plus de l'ordre de 35 %. Dans ces conditions, l'exploitant considère que plus de 20 000 tonnes de combustibles peuvent être traitées avant d'atteindre l'épaisseur minimale des godets considérée dans les études de criticité, soit plusieurs dizaines d'années de fonctionnement des usines. En outre, il indique qu'une mesure d'épaisseur résiduelle des godets des roues des dissolvants sera réalisée toutes les 3 000 tonnes de combustibles traités.

A cet égard, les dissolutions blanches sont réalisées sans renouvellement de l'acide nitrique, ce qui est pénalisant par rapport aux conditions de fonctionnement lors du traitement de combustibles de type UOX (le renouvellement de l'acide nitrique maintenant des conditions réductrices, ce qui limite le caractère oxydant des solutions d'acide nitrique et la formation d'ions corrosifs). Toutefois, les dissolutions blanches ne permettent pas d'évaluer l'influence sur la corrosion des roues de l'augmentation de la concentration des espèces oxydantes issues du combustible nucléaire, liée à l'augmentation d'acidité. Sur ce point, l'exploitant montre qu'il existe une bonne cohérence entre le modèle prédictif déduit des dissolutions blanches et les mesures d'épaisseurs résiduelles des godets réalisées. Toutefois, il retient pour cette comparaison des valeurs moyennes, sans intégrer la dispersion des résultats de mesures. De plus, l'incertitude des mesures d'épaisseur retenue tient compte de la technique de mesure, mais n'intègre pas celle induite par l'état des surfaces contrôlées (oxydation, présence de dépôts...).

L'exploitant a également réalisé des mesures de perte d'épaisseur pour quelques dents d'entraînement de la roue du dissolvant de l'atelier R1 et la butée antisismique de la roue d'un des dissolvants de l'atelier T1. Les vitesses de corrosion déduites de ces mesures sont cohérentes avec celles des godets. Toutefois, la technique de mesure utilisée, fondée sur l'utilisation de gabarits de forme supposée telle qu'à l'origine, présente une incertitude importante.

Compte tenu de ces éléments, l'IRSN estime que les vitesses de corrosion évaluées par l'exploitant doivent être considérées avec prudence. L'IRSN convient toutefois que la durée de fonctionnement des dissolveurs avant l'atteinte des épaisseurs limites retenues dans la démonstration de sûreté est importante. **Aussi, considérant une démarche d'acquisition progressive de retour d'expérience, l'IRSN recommande que, suite à la mise en place de la modification, un contrôle des godets, de la butée et des dents des roues d'un dissolvant soit réalisé après le traitement de 1 500 tonnes de combustibles dans celui-ci. Sur la base de ce contrôle, l'exploitant vérifiera la pertinence des conclusions des études réalisées et du programme de surveillance (fréquence des contrôles et éléments des roues contrôlés).** Ces points font l'objet de la recommandation n° 1 de l'annexe à l'avis.

## **2.2 Equipements situés en aval de l'ajustement de l'acidité des solutions de dissolution**

Par rapport à la configuration actuelle de traitement des combustibles, les solutions de dissolution issues d'un fonctionnement des dissolveurs avec une acidité augmentée contiendront des quantités plus importantes d'espèces oxydantes, provenant de la corrosion des matériaux ou des combustibles traités, d'halogénures et de platinoïdes. L'exploitant considère que ces espèces n'ont pas d'effet significatif sur la corrosion des équipements situés en aval de l'opération d'ajustement de l'acidité des solutions de dissolution.

Toutefois, les concentrations des espèces issues de la corrosion des aciers inoxydables (Fe, Cr et Mn) pourraient augmenter significativement même après ajustage de l'acidité des solutions de dissolution, du fait d'une corrosion plus importante des roues des dissolveurs. Ces espèces peuvent favoriser la corrosion des équipements si elles sont à leurs valences les plus élevées (Cr(VI)) et Mn(VII) ou, s'agissant du fer, en catalysant la réaction de réduction de l'acide nitrique. **L'incidence de ces espèces, en particulier sur la corrosion des évaporateurs de concentration des solutions de produits de fissions des ateliers R2 et T2 dans lesquelles les solutions sont à ébullition, doit être particulièrement examinée.** Ce point est d'autant plus sensible que les contrôles réalisées mettent en évidence des pertes d'épaisseur d'acier de la partie bouilleur de ces équipements importantes et significativement supérieures à celles attendues à la conception de ces équipements.

L'effet des autres espèces peut être considéré comme plus faible compte tenu de l'absence ou de la faible évolution de leur chimie dans les conditions de dissolution modifiées.

L'exploitant estime que l'augmentation attendue de la concentration en Fe après ajustage de la solution de dissolution ne conduira pas à une augmentation significative de la vitesse de corrosion des évaporateurs. Pour ailleurs, il indique que, lors d'un cycle de concentration, la dénitration formique mise en œuvre (pour maintenir constante l'acidité de la solution) prévient la formation des degrés d'oxydation corrosifs du Cr et du Mn. En outre, la phase de mise en reflux total des évaporateurs en fin de cycle de concentration, sans addition d'acide formique, est de trop courte durée pour que le Cr et le Mn s'oxydent sous leur forme corrosive en quantité significative.

Toutefois, les analyses de l'exploitant se fondent sur des calculs théoriques et des essais en laboratoire utilisant un milieu réactionnel simplifié. Or, les solutions de dissolution se caractérisent par une chimie complexe faisant intervenir de nombreuses espèces (radionucléides provenant des combustibles, produits de corrosion, réactifs du procédé...), susceptibles d'interagir. De plus, les essais de laboratoire ne sont pas nécessairement représentatives des évaporateurs en exploitation (effet d'échelle, influence des flux thermiques et des rayonnements ionisants...).

Par ailleurs, les écarts entre les vitesses de corrosion mesurées dans les évaporateurs et celles considérées à la conception ne sont pas encore complètement expliqués, des programmes de recherche et développement étant en cours. Pour rappel, cela a conduit à mettre en place un programme de suivi particulier de ces équipements (avec une fréquence annuelle).

**En conséquence, l'IRSN considère que la justification de l'absence d'effet des conditions de dissolution modifiées (augmentation de l'acidité dans le dissolvant et ajustement de l'acidité des solutions de dissolution) sur la corrosion des évaporateurs des ateliers R2 et T2 nécessite d'être complétée.**

A cet égard, l'exploitant a proposé au cours de l'instruction de réaliser, en 2019, une campagne de traitement dans ces conditions de combustibles de type UOX dans l'usine UP2-800 ou UP3-A. Le tonnage de cette campagne sera défini de manière à ce que le volume des solutions de dissolution produit corresponde à celui traité lors d'un cycle évaporatoire (environ 60 tml). Lors de ce cycle évaporatoire, des mesures de la concentration en Fe et du potentiel électrochimique des solutions de produits de fission des évaporateurs seront réalisées. Ces mesures seront comparées à celles obtenues avec les conditions de dissolution actuelles, de manière à caractériser l'effet de la modification des conditions de dissolution sur le caractère oxydant des solutions de produits de fission.

**L'IRSN estime que la campagne proposée par l'exploitant permettra de consolider les analyses basées sur les calculs théoriques et les essais en laboratoire, qui ne reproduisent pas complètement la chimie des solutions de produits de fission et les conditions de fonctionnement des évaporateurs. Par ailleurs, compte tenu des résultats de ces analyses, l'IRSN n'a pas d'objection à la réalisation de cette campagne ponctuelle.**

**En tout état de cause, l'exploitant devra mettre à jour le dossier de sûreté relatif à la modification des conditions de dissolution en intégrant les résultats de cette campagne. Ce point fait l'objet de la recommandation n° 2 de l'annexe au présent avis.**

**Par ailleurs, l'IRSN estime que l'exploitant devra également lors de cette campagne mesurer la concentration en acide nitreux des solutions de produits de fission des évaporateurs. En effet, l'absence de formation de Cr(VI) dans les évaporateurs repose sur une concentration en acide nitreux supérieure à une valeur limite, notamment durant la phase de concentration des solutions de produits de fission. Ce point est inclus dans la recommandation n° 2 de l'annexe au présent avis.**

Enfin, l'exploitant contrôle annuellement l'épaisseur des parois des évaporateurs des ateliers R2 et T2 au niveau des zones sensibles identifiées et de la partie basse du bouilleur. **L'IRSN estime qu'il pourrait réaliser les mesures d'épaisseur prévues en 2019 après avoir effectué la campagne de traitement à acidité augmentée, pour le cas échéant caractériser directement l'effet de la modification des conditions de dissolution sur la corrosion des évaporateurs. Ce point fait l'objet de l'observation formulée en annexe au présent avis.**

### 3 CONCLUSION

Sur la base des éléments examinés, hormis pour les évaporateurs de produits de fissions, l'IRSN estime globalement satisfaisante l'analyse réalisée par l'exploitant en support de la demande de modification des conditions de dissolution des combustibles (augmentation de l'acidité dans le dissolvant, ajustement de l'acidité des solutions de dissolution et traitement dans ces conditions de  $80 \text{ tml} \cdot \text{an}^{-1}$ ).

Concernant les évaporateurs de produits de fission, l'IRSN considère que l'analyse de l'exploitant nécessite d'être consolidée, pour mieux rendre compte de l'ensemble des caractéristiques chimiques des solutions de produits de fission et des conditions de fonctionnement des évaporateurs. A cet égard, l'exploitant a proposé de réaliser en 2019 une campagne de traitement avec les conditions de dissolution modifiées durant laquelle des caractérisations des solutions dans l'évaporateur utilisé seront réalisées. L'IRSN estime satisfaisante cette démarche.

Aussi, en conclusion, l'IRSN recommande que l'exploitant mette à jour le dossier de sûreté relatif à la modification des conditions de dissolution en intégrant les résultats de cette campagne. Cette mise à jour devra tenir compte des recommandations et de l'observation rappelées en annexe à l'avis.

Pour le directeur général, par délégation,

Igor LE BARS

Adjoint au Directeur de l'expertise de sûreté

Annexe à l'Avis IRSN/2018-00206 du 24 juillet 2018

**Recommandations**

- 1 L'IRSN recommande que, suite à la mise en place de la modification des conditions de dissolution, un contrôle des godets, de la butée et des dents des roues d'un dissolvant soit réalisé après le traitement de 1 500 tonnes de combustibles dans celui-ci. Sur la base de ce contrôle, l'exploitant devra vérifier la pertinence des conclusions des études réalisées et du programme de surveillance (fréquence des contrôles et éléments des roues contrôlés).
  
- 2 L'IRSN recommande que l'exploitant complète son analyse de l'effet de la modification des conditions de dissolution sur la corrosion des évaporateurs des ateliers R2 et T2 avec les résultats des caractérisations réalisées lors de la campagne de traitement particulière prévue en 2019. Outre les mesures prévues lors de cette campagne (concentration en Fe et potentiel électrochimique des solutions), l'exploitant devra mesurer la concentration en acide nitreux des solutions de produits de fission dans l'évaporateur.

**Observation**

L'IRSN estime que l'exploitant pourrait réaliser la campagne de traitement particulière prévue en 2019 juste avant les mesures d'épaisseur des parois des évaporateurs prévues en 2019.