

Avis de l'IRSN sur le caractère rédhibitoire ou non du colis dit « C5 » vis à vis de la sûreté, tant durant la période de réversibilité du stockage des déchets de moyenne activité et de haute activité et à vie longue (MA-HAVL) qu'à long terme

Par lettre du 6 août 2009, l'Autorité de Sûreté Nucléaire a demandé l'avis de l'IRSN sur le caractère rédhibitoire ou non du colis dit « C5 » vis à vis de la sûreté, tant durant la période de réversibilité du stockage des déchets de moyenne activité et de haute activité et à vie longue (MA-HAVL) qu'à long terme.

Le colis dit « C5 » est la solution de substitution au colis « bitume » retenue à ce stade par AREVA NC pour conditionner environ 9 300 m³ de boues provenant principalement du traitement d'effluents de l'usine UP2-400. Ces boues sont actuellement entreposées dans les silos 550-10, 550-11, 550-12, 550-13, 550-14, 550-15 et 550-17 de l'atelier STE2, dont le remplissage a débuté en 1966.

Ces boues contiennent des produits de fission, dont du ¹³⁷Cs et de ⁹⁰Sr-⁹⁰Y et des émetteurs alpha en quantités notables notamment du neptunium, du plutonium et de l'uranium. Les silos 550-14 et 550-15, qui sont les seuls pour lesquels l'IRSN dispose de résultats de caractérisation, contiennent globalement de l'ordre de 370 kg de neptunium, 97 kg de plutonium et 17 t d'uranium. Ces boues contiennent également environ 3 350 tonnes de sels, répartis, selon l'exploitant, en 80 % de sels insolubles et 20 % de sels solubles. Elles contiennent de plus des produits organiques (TBP et ses produits de dégradation notamment - DBP, MBP et HDBP), des composés azotés sous différentes formes chimiques : ammoniac (NH₃), nitrate d'ammonium (NH₄NO₃) ou sulfate d'ammonium ((NH₄)₂SO₄), ainsi que des quantités significatives de sulfates, de phosphates, de nitrates et de chlorures. Les silos ayant été remplis par strates successives, les caractéristiques des boues sont très variables en fonction des strates et des silos.

Le procédé d'élaboration du colis C5 consisterait à sécher les boues provenant d'un seul ou de plusieurs silos en mélange. Après séchage, les poudres obtenues, de densité 1 et de siccité (pourcentage massique de matière sèche) supérieure à 95 %, seraient mélangées à un adjuvant organique (0,5 % en masse) avant d'être compactées. Les pastilles ainsi obtenues, de densité 2, seraient ensuite introduites dans un conteneur en acier inoxydable (316 L). AREVA NC prévoit de combler les vides, qui représentent environ 50 % du volume interne du colis, avec du sable. Le taux de remplissage moyen du colis serait de 95 %. AREVA NC visant à produire un colis étanche, le

conteneur serait fermé par un système de double couvercle dont un serait soudé. Selon AREVA NC, la reprise de ces boues conduirait à la production d'environ 17 200 colis C5.

Conformément à la demande de l'ASN, l'IRSN a principalement examiné l'adéquation de la conception du colis C5 aux objectifs de sûreté d'un stockage géologique de déchets MA-HAVL. Le présent avis ne traite donc pas des dispositions de sûreté relatives à la fabrication du colis, qui, en outre, ne sont pas présentées dans les documents transmis par l'exploitant.

L'IRSN rappelle que, conformément au guide de sûreté relatif au stockage définitif des déchets radioactifs en formation géologique profonde, le colis constitue le premier système de confinement des déchets qu'il contient. Ce confinement doit être assuré au mieux dans toutes les « phases de vie » ultérieures du colis.

Lors de l'entreposage, ce confinement est assuré, dans le cas du colis C5, par le conteneur en acier inoxydable (316 L) qui est conçu pour être étanche.

Dans le stockage en formation géologique profonde, le confinement doit, a priori, toujours être assuré par le conteneur au moins pendant la phase d'exploitation et pendant la phase de réversibilité. Dans le cas contraire, le colis devra faire l'objet d'un conditionnement complémentaire. Après la fermeture du stockage, le conteneur, ou l'éventuel complément de colisage évoqué précédemment, doit rester intègre le plus longtemps possible. Toutefois, compte tenu des échelles de temps à considérer, la défaillance du confinement est inévitable à terme. De l'eau, même en faible quantité, finira par venir au contact des déchets. Ce colis doit donc être conçu pour que l'activité soit alors relâchée, par lixiviation, le plus lentement possible (« fuite maîtrisée »).

Les différents phénomènes susceptibles d'affecter le comportement du colis C5 lors des différentes étapes de sa gestion sont essentiellement liés aux caractéristiques chimiques des boues séchées et à la radiolyse de l'eau contenue dans ces boues. Ils sont notamment susceptibles d'induire des risques concernant d'une part la sûreté du stockage lors de sa phase d'exploitation et de réversibilité (corrosion, risque d'explosion, dégradation des compléments de colisage) ainsi que lors des étapes préalables d'entreposage, d'autre part le maintien du confinement de la radioactivité dans les ouvrages de stockage après la fermeture de l'installation.

Ces différents aspects sont examinés ci-après.

1. Sûreté des phases d'entreposage, d'exploitation et de réversibilité du stockage

AREVA NC indique qu'un colis C5 contiendrait une activité moyenne de l'ordre de 9 TBq, due pour environ 30 % à des actinides, et comporterait en moyenne 29,7 kg de nitrates, 81,8 kg de sulfates, 31,7 kg de carbonates, 24,8 kg de phosphates et 0,21 kg de chlorures. Cette estimation est basée sur les inventaires radiologiques et chimiques des boues entreposées dans l'atelier STE2, examinés le 19 décembre 2007, lors de la réunion du groupe permanent relatif au réexamen de la sûreté de

L'INB 118 de l'établissement de La Hague. Le rapport de l'IRSN présenté lors de cette réunion relevait que ces inventaires, basés sur une recherche historique des opérations réalisées dans l'atelier STE2 et sur quelques prélèvements, présentaient de fortes incertitudes, compte tenu notamment de l'absence de prise en compte des essais de réactifs chimiques réalisés dans les premières années d'exploitation de l'atelier, de l'absence de traçabilité des conditions de fonctionnement particulières de l'atelier, en particulier en début d'exploitation (anomalies, incidents de transfert, etc.), de la représentativité des prélèvements réalisés et des hétérogénéités du contenu des silos, qui ne permettaient pas de déterminer une composition moyenne fiable pour les boues. A ces constats s'ajoutaient l'absence d'échantillonnage des boues des silos 550-11 et 550-17, et le vieillissement des boues depuis 1966, qui a pu provoquer des dégradations chimiques des sels et des produits organiques. A la connaissance de l'IRSN, AREVA NC n'a apporté aucun élément de réponse à ces différentes remarques. **Il subsiste en conséquence une forte incertitude sur la composition chimique et radiologique des boues à conditionner dans le colis C5.**

S'agissant du risque de corrosion du conteneur du colis C5 lors de son entreposage et de son stockage, l'IRSN relève que le dossier transmis ne présente aucune évaluation de ce risque. Or, pour une siccité des boues séchées équivalente à 95%, il subsiste une masse d'environ 12 kg d'eau dans le colis, sans tenir compte de la quantité d'eau pouvant provenir du sable pour lequel aucune exigence de siccité n'est fixée. De plus, le colis contient une masse significative de chlorures et de sulfates, qui augmente les risques de corrosion du conteneur. **L'IRSN estime en conséquence qu'une corrosion interne rapide du conteneur et donc une perte d'étanchéité de celui-ci est susceptible de se produire lors de l'entreposage des colis C5 ou lors des phases d'exploitation et de réversibilité de leur stockage. Ceci n'est pas satisfaisant.** A cet égard, il convient de rappeler que le groupe permanent, lors de l'examen de la spécification du colis standard de déchets compactés (CSD-C), avait recommandé que des dispositions soient prises afin de maîtriser la quantité d'eau résiduelle dans les conteneurs, en raison du risque avéré de corrosion atmosphérique des aciers inoxydables de nuance 316 L.

En outre, l'IRSN souligne qu'en cas de perte d'étanchéité du colis, les espèces chimiques relâchées, telles que les ions sulfates et les ions ammoniums, peuvent réagir avec le béton du stockage et dégrader ses propriétés mécaniques.

En particulier, l'IRSN rappelle que le concept de colisage retenu, à ce jour, par l'ANDRA pour le stockage géologique des déchets de moyenne activité et à vie longue consiste à regrouper les colis « primaires » dans un conteneur de stockage en béton armé légèrement fibré. Le colis de stockage ainsi constitué est ensuite stocké dans des alvéoles soutenues par des parois en béton. **Or, la perte d'étanchéité du conteneur en acier du colis C5 lors de son stockage est susceptible d'entraîner une réaction entre les espèces chimiques relâchées par le colis et le béton du colis de stockage pouvant induire une perte des propriétés mécaniques puis, par le même mécanisme, une éventuelle réaction avec le béton des structures des alvéoles de stockage. Ce phénomène peut survenir avant ou durant la phase de réversibilité ce qui n'est pas satisfaisant.**

S'agissant de la radiolyse de l'eau contenue dans le colis C5, AREVA NC estime qu'elle générerait un débit moyen d'hydrogène par colis de 0,8 L/an pour une composition moyenne des boues représentatives de l'ensemble des silos et de 1,5 L/an pour la composition moyenne du silo 550-13, dont l'activité est plus élevée que celle des autres silos de l'atelier STE2. Toutefois, les données (caractéristiques des boues...), les hypothèses et les méthodes de calcul utilisées pour estimer ces débits, ainsi que les incertitudes associées, ne sont pas précisées par l'exploitant. Il est donc difficile de se prononcer sur la pertinence des méthodes retenues pour effectuer ces estimations et donc sur les valeurs de débits obtenues. Cependant, il apparaît, d'ores et déjà, que l'exploitant sous-estime les débits maximaux pouvant être générés dans un colis dans la mesure où les estimations précitées correspondent à un colis moyen fabriqué avec des boues présentant des caractéristiques entachées de fortes incertitudes ainsi que mentionné précédemment.

Le colis C5 étant étanche, la pression interne du conteneur serait de l'ordre de 0,6 MPa avec un débit moyen d'hydrogène de 1,5 L/an. Néanmoins, AREVA NC ne justifie pas que le conteneur du colis C5 résisterait à cette pression. De plus, le débit maximal de radiolyse étant sous-estimé (cf. le paragraphe précédent), la pression interne du conteneur est également sous-estimée. AREVA NC ne justifie donc pas que la mise en pression des conteneurs liée au phénomène de radiolyse ne pourrait pas conduire à une rupture du conteneur lors de son entreposage ou son stockage.

De surcroît, la production d'hydrogène de radiolyse dans le colis induit un risque d'explosion pouvant provoquer la rupture de confinement du conteneur. Il est à noter que dans le cas du colis C5, la présence de nitrate d'ammonium dans le colis peut être un facteur aggravant en cas d'explosion de l'hydrogène, dans la mesure où ce produit augmente la puissance de l'évènement. AREVA NC ne présente dans le dossier transmis aucun élément relatif à l'évaluation et à la maîtrise du risque d'explosion dans les diverses étapes de gestion du colis C5.

Compte tenu de l'ensemble de ces éléments, l'IRSN estime que le dossier transmis par AREVA NC ne permet pas de justifier le bien fondé, au regard de la sûreté, de la conception du colis C5 lors de son entreposage et des phases d'exploitation et de réversibilité du stockage.

2. Propriétés de confinement après la fermeture du stockage

L'exploitant a mis en œuvre un programme d'essais de lixiviation afin de démontrer « *l'absence d'influence du procédé (séchage) sur le caractère insoluble des boues STE2 déshydratées* ». Ce programme met en œuvre des boues réelles issues des silos 550-14 et 550-15 et des boues de synthèse.

Le programme prévu comporte la caractérisation des surnageants des boues à étudier, le séchage des boues et leur broyage, puis la mise en suspension des poudres dans des milieux aqueux neutre et alcalin représentatifs de l'eau susceptible de venir au contact des colis en situation de stockage.

Les solutions seront conservées à 20°C et les surnageants obtenus seront caractérisés à 1 jour, 7 jours, 28 jours et 84 jours. La caractérisation des surnageants comprend notamment la détermination des activités alpha et bêta-gamma totales, et des spectres alpha et bêta-gamma, ainsi que la recherche et la quantification d'espèces métalliques, telles que le fer, le nickel, le cobalt et l'uranium.

L'exploitant précise que ce programme a également pour but de « *comprendre les mécanismes de dégradation de certains complexes en milieu alcalin* » et de « *compléter les essais actifs par des analyses chimiques exhaustives* ». Ce programme est donc destiné à définir l'évolution des caractéristiques des boues après séchage, telles que le maintien ou non du caractère insoluble des sels mais ne permet pas d'évaluer clairement l'activité susceptible d'être relâchée dans des conditions représentatives du stockage des boues. **A ce stade, le dossier examiné n'apporte aucun élément probant quant à la capacité du colis C5 à limiter les relâchements d'activité en cas de venue d'eau au contact des boues.**

De plus, le rapport de l'IRSN présenté lors de la réunion du groupe permanent le 19 décembre 2007 précitée conclut que les boues utilisées dans les essais, prélevées en certains points des silos 550-14 et 550-15, ne peuvent pas être considérées comme représentatives de celles entreposées dans l'atelier STE2, compte tenu de la variabilité des caractéristiques physicochimiques et radiologiques des boues contenues dans les différents strates et silos. Le rapport IRSN estime également que les boues de synthèse ne sont pas davantage représentatives dans la mesure où leur composition ne tient pas compte des interactions entre les différents composés chimiques et radiologiques effectivement présents dans les boues réelles (sulfates, sulfures, magnésium, oxyde d'uranium, ammoniacque, ammonium, phosphates, complexants, anti-mousse, émetteurs alpha et bêta-gamma...), ni de leur évolution. Dans ces conditions, les résultats obtenus par les essais de lixiviation prévus ne pourront pas être extrapolés aux boues contenues dans les silos et cuves de l'atelier STE2.

De plus, le séchage, le compactage des boues et l'introduction de sable dans le colis ne sont pas, a priori, des opérations permettant d'assurer que l'activité sera relâchée, par lixiviation, le plus lentement possible (« fuite maîtrisée ») lorsque, après la fermeture du stockage, l'eau arrivera au contact des pastilles. *A contrario*, il est vraisemblable que celles-ci relâcheront immédiatement les espèces solubles et les radionucléides qu'ils véhiculent, compte tenu du caractère hydrophile des boues séchées. Il semble, en effet, que ce relâchement immédiat soit la principale raison ayant conduit AREVA NC à abandonner, suite à des essais, le blocage des pastilles dans un coulis de ciment.

Enfin, AREVA NC ne présente pas d'étude relative à l'incidence des substances organiques présentes dans les colis sur la mobilité des radionucléides en condition de stockage. Outre les complexants formés par la dégradation des matières organiques qui accompagnent les boues, l'IRSN

relève que le compactage des poudres est précédé de l'ajout d'un adjuvant composé d'espèces organiques.

L'introduction de substances complexantes dans un stockage peut conduire à une augmentation très significative de la vitesse de migration de la plupart des radionucléides dans le stockage et en particulier celle des actinides (neptunium, plutonium, uranium...). Ceci n'est pas satisfaisant.

3. Conclusion

Sur la base du dossier examiné, l'IRSN considère que le colis C5 ne présente pas de caractéristiques favorables à un stockage profond. En particulier, la production de gaz explosibles, la forte réactivité des déchets contenus avec les composants ouvragés du stockage et la présence de substances complexantes en quantités importantes et sa vraisemblable médiocre capacité de résistance à la lixiviation ne sont pas compatibles avec les objectifs fixés par le guide de sûreté relatif à ce type de stockage.

Aussi, l'IRSN estime qu'AREVA NC devrait étudier des procédés de traitement, par exemple thermiques, et de conditionnement des boues entreposées dans l'atelier STE2 permettant de fabriquer un colis présentant des caractéristiques clairement favorables à la sûreté de leur stockage, c'est-à-dire des colis aussi passifs que possible et présentant une bonne résistance à la lixiviation.

Toutefois, le séchage et le compactage des boues sont des modes de traitement suffisamment réversibles pour ne pas obérer la mise en œuvre ultérieure d'un procédé permettant l'obtention d'un colis présentant les caractéristiques favorables précitées. Aussi l'IRSN estime que l'entreposage des boues séchées et compactées, moyennant la démonstration de la sûreté du procédé de fabrication du colis et la mise en œuvre d'un conteneur compatible avec la maîtrise des risques associés aux phénomènes de corrosion et à la production de gaz explosibles ainsi que de la faisabilité d'un tri aisé entre les pastilles et le sable, peut constituer une solution d'attente permettant de procéder à la reprise des boues actuellement entreposées dans l'atelier STE2.