

Fontenay-aux-Roses, le 3 novembre 2014

Monsieur le président de l'Autorité de Sûreté Nucléaire

Avis/IRSN N° 2014-00394

Objet : AREVA NC - Etablissement de La Hague
Colis standard de déchets vitrifiés CSD-B - Spécification 300 AQ 61

Réf. Lettre CODEP-DRC-2014-013304 du 19 mars 2014

La production de colis standard de déchets vitrifiés selon la spécification 300 AQ 061 (CSD-B) a été autorisée par la décision ASN n°2009 DC-0166 du 8 décembre 2009 pour conditionner les effluents de rinçage issus du démantèlement de l'usine UP2-400. L'article 4 de cette décision prévoit qu'AREVA NC transmette à l'ASN sous 6 mois « *les modalités envisagées pour le stockage des déchets produits selon [cette] spécification* » et poursuive des études dans l'objectif « *de valider le modèle d'altération des verres en milieu cimentaire* ». Par lettre citée en référence, vous sollicitez l'avis de l'IRSN sur la réponse apportée par AREVA NC à cette demande. Vous souhaitez en particulier savoir si les éléments transmis par AREVA NC permettent de valider le modèle d'altération des verres en milieu cimentaire et connaître la position de l'IRSN concernant les modalités de stockage envisagées. Pour ce dernier point, vous demandez de prendre en compte l'avis exprimé par l'Andra.

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

1- Éléments de contexte et rappel des précédentes instructions

AREVA NC prévoit la production de 900 CSD-B, issus de la vitrification d'effluents de moyenne activité provenant des opérations de rinçage des usines UP2-400, UP2-800 et UP3-A. Au 31 décembre 2013, 190 colis CSD-B ont été produits, majoritairement à partir d'effluents de l'usine UP2-400, mais également, pour une plus faible part, d'effluents de l'usine UP2-800. En fonction du concept retenu pour la prise en charge des colis CSD-B et des caractéristiques effectives des effluents de rinçage de l'usine UP2-400, AREVA NC a indiqué au cours de l'instruction qu'il pourrait à l'avenir privilégier le conditionnement des effluents de rinçage en mélange avec les produits de fission au sein de colis CSD-V.

Les caractéristiques radiologiques (activités moyennes totale, alpha et bêta-gamma, débit de dose gamma et neutron) et thermiques (puissance thermique) du colis moyen CSD-B présentées par

AREVA NC sont du même ordre de grandeur que celles d'un colis moyen CSD-C (conteneurs standards de déchets compactés). Compte-tenu de ces caractéristiques, les colis CSD-B relèvent de la catégorie des déchets de moyenne activité à vie longue (MAVL) et AREVA NC retient l'hypothèse d'un stockage en alvéole cimentaire MAVL.

Les propriétés de confinement du colis de type CSD-B ont fait l'objet d'un premier avis de l'IRSN (Avis IRSN 2009-84 du 8 juillet 2009) à l'occasion de la demande d'approbation par AREVA NC de la spécification de production des colis standard de déchets vitrifiés de type CSD-B, référencée 300 AQ 61. Dans cet avis, l'IRSN soulignait que les propriétés de confinement du colis de type CSD-B apparaissaient moindres que celles du colis CSD-V pour les conditions expérimentales standard étudiées alors par AREVA NC. L'IRSN précisait que les taux de relâchement obtenus pouvaient toutefois être jugés acceptables au regard de l'activité contenue et du nombre relativement faible de colis à produire. Dans son avis, l'IRSN indiquait par ailleurs ne pas pouvoir se prononcer sur les propriétés de confinement des colis dans l'hypothèse d'un stockage dans un environnement alcalin représentatif d'un alvéole cimentaire.

Le dossier transmis par AREVA NC en réponse à l'article 4 de la décision ASN précitée présente les caractéristiques radiologiques et thermiques du colis CSD-B et décrit les résultats acquis sur l'altération du verre en milieu alcalin. Ces éléments sont complétés par les options de stockage envisagées pour les colis CSD-B par AREVA NC et par l'Andra. De l'instruction de ce dossier, l'IRSN retient les principaux points exposés ci-après.

2- Comportement des verres en environnement cimentaire

Résultats expérimentaux présentés par AREVA NC

Pour rappel, la cinétique d'altération des verres peut se décomposer en plusieurs étapes. Dans un premier temps, après sa mise en contact avec l'eau, le verre s'altère à une vitesse V_0 , dite vitesse initiale. Un gel protecteur se forme alors à la surface du verre, ce qui ralentit progressivement sa dissolution. L'étape de formation du gel d'altération est dite de « chute de vitesse ». Une fois le gel formé, l'altération du verre se poursuit à une vitesse moins élevée, V_r , dite vitesse résiduelle. Sur le long terme, la consommation des espèces présentes dans le gel protecteur peut éventuellement conduire à une reprise d'altération du verre.

Les études menées par AREVA NC concernant l'altération du verre en milieu cimentaire regroupent des expérimentations en laboratoire et des essais à l'échelle 1. Les expérimentations en laboratoire ont permis l'acquisition de résultats sur l'altération de verres de type CSD-B en régime de vitesse initiale (V_0) et de chute de vitesse en testant, à 30 et à 50 °C, différentes eaux cimentaires représentatives d'un matériau CEM I sain ($\text{pH} > 13$, contrôlé par les alcalins), d'un matériau CEM I faiblement altéré ($\text{pH} \sim 12,5$, à l'équilibre avec la portlandite) et d'un béton bas pH ($\text{pH} \sim 10,5$) sur des essais de quelques mois. Des essais de longue durée (700 jours) ont également été menés à 50 °C avec ces différentes eaux cimentaires de façon à observer une éventuelle reprise d'altération. Ces essais ont été complétés par des mesures de vitesse initiale en eau pure, à pH ajusté, de façon à tester l'effet du pH seul. Les expérimentations à l'échelle 1 ont été menées sur un colis élaboré en creuset

froid coulé dans un panier percé et placé dans un volume de solution représentative d'un matériau cimentaire sain à 50 °C.

Les expérimentations à l'échelle du laboratoire ont mis en évidence que les vitesses initiales de lixiviation dépendaient à la fois des espèces chimiques et du pH en solution. En particulier, AREVA NC souligne le rôle particulier du calcium qui, en s'insérant dans la couche d'altération du verre, pourrait accentuer son caractère passivant et donc jouer un rôle bénéfique en régime de vitesse initiale. Au-delà de cette phase, AREVA NC note une influence potentiellement défavorable du calcium associée à la formation de phases secondaires issues de la réaction entre le silicium et l'aluminium et susceptibles de retarder la formation de la couche protectrice.

Par ailleurs, AREVA NC note qu'une reprise d'altération liée à la formation de zéolithes est mise en évidence dans l'eau cimentaire représentative des eaux de béton CEM I à 50 °C, tandis qu'aucune n'est observée avec l'eau représentative du béton bas pH. La reprise d'altération observée à l'échelle du laboratoire en présence d'une eau de béton CEM I est confirmée par les expériences d'altération d'un colis à l'échelle 1.

Retour d'expérience du génie civil et des recherches menées par le SCK-CEN

En complément des résultats d'essais expérimentaux, AREVA NC indique que le retour d'expérience acquis sur des matériaux cimentaires et vitreux utilisés dans le domaine du génie civil et du nucléaire confirme la forte réactivité de ces deux matériaux lorsqu'ils sont en contact. Pour ce qui concerne le domaine du génie civil, les fibres de verres utilisées pour le renforcement des bétons s'altèrent ainsi rapidement, conduisant le matériau à perdre ses propriétés mécaniques. Ce phénomène résulte de la réaction du calcium issu du béton et du silicium issu du verre pour former des silicates de calcium hydraté (C-S-H), réaction qui rend difficile l'atteinte des conditions de saturation en silicium nécessaires à la formation d'une couche passivante. Pour ce qui concerne le stockage de déchets radioactifs vitrifiés, l'IRSN note que d'importantes recherches sont menées par le SCK-CEN en vue de valider le choix du surconteneur - dénommé « *Supercontainer* » - destiné à accueillir les colis vitrifiés et constitué d'une enveloppe en acier au carbone entourée par une enveloppe de ciment Portland. Ces recherches mettent en évidence des vitesses d'altération du verre importantes dues à la forte réactivité du silicium contenu dans le verre en présence du calcium contenu dans la portlandite.

Conclusion tirée des données disponibles et choix d'un modèle d'altération

L'IRSN note que les expérimentations menées par AREVA NC montrent les effets globalement négatifs d'un environnement cimentaire sur la formation de la couche passivante du verre. L'IRSN souligne également qu'une reprise d'altération du verre en présence d'une eau cimentaire représentative des bétons CEM I est mise en évidence par les expérimentations en laboratoire et confirmée par l'essai à l'échelle 1. Compte tenu de ces éléments et du retour d'expérience issu du domaine du génie civil et des études menées en Belgique dans le cadre de la validation du « *Supercontainer* », l'IRSN considère qu'un environnement cimentaire apparaît chimiquement peu compatible avec les verres CSD-B.

A partir des résultats de ses expérimentations et sur la base d'hypothèses conservatives, AREVA NC retient un modèle $V_0.S$ pour les calculs de performance associés au relâchement des colis CSD-B. Le choix de ce modèle correspond à l'hypothèse d'une lixiviation du verre à la vitesse initiale V_0 pendant

toute la période d'altération. Au regard des incertitudes sur le comportement du verre en eaux cimentaires mises en évidence par les études en laboratoire et à l'échelle 1, et de la forte réactivité chimique entre les matériaux vitreux et cimentaires confirmée par le retour d'expérience du génie civil, l'IRSN considère que le choix d'un modèle $V_0.S$ retenu par AREVA NC est pertinent.

Les premiers éléments acquis sur les bétons bas pH ont permis de déterminer les vitesses initiales d'altération et les chutes de vitesses associées et semblent indiquer que ce type de béton pourrait constituer un environnement plus favorable au stockage de verres que les ciments classiques de type CEM I. L'IRSN estime toutefois que les études sur l'effet des bétons bas pH présentées par AREVA NC restent préliminaires et ne présentent pas d'éléments permettant de garantir une absence de reprise d'altération. Aussi, l'IRSN considère à ce stade que l'utilisation d'un autre modèle d'altération que le modèle $V_0.S$ ne serait pas justifiée pour les bétons bas pH.

3- Modalités de stockage envisagées pour les colis CSD-B

Concernant les modalités de stockage des colis de déchets CSD-B, AREVA NC retient dans son dossier l'hypothèse d'un stockage en alvéole MAVL alors que l'Andra envisage trois options : i) un stockage dans des alvéoles de type MAVL, avec une possible adaptation du concept consistant en la mise en œuvre de béton bas pH, ii) un stockage au sein d'alvéoles HA dédiés aux colis CSD-B et iii) un stockage en intercalaires au sein d'alvéole HA de thermicité élevée.

Pour un stockage en alvéoles MAVL, les conditions les plus pénalisantes considérées par AREVA NC (modèle $V_0.S$, taux de fracturation de 40, vitesse initiale de lixiviation mesurée pour la solution représentative d'un CEM I) conduisent à un relâchement de la totalité de l'activité contenue dans le colis CSD-B sur une durée de 600 ans à 3 500 ans après l'arrivée d'eau à son contact.

Dans le cadre de son analyse, l'IRSN s'est appuyé sur cette estimation et sur la comparaison des performances de confinement du colis CSD-B stocké en alvéole cimentaire, d'une part, avec celles des autres colis MAVL et, d'autre part, avec les performances du même colis stocké en alvéole HA.

Eléments de comparaison entre colis CSD-B et autres colis MAVL pour un stockage en alvéole cimentaire

L'IRSN remarque que la durée de relâchement de l'activité contenue dans le colis CSD-B est sensiblement inférieure à celle des principales familles de colis MAVL. A titre de comparaison, les éléments présentés dans le Dossier 2005 de l'Andra indiquent des temps de relâchement compris entre 14 000 et 200 000 ans pour les colis de pièces métalliques, et entre 1 000 et 10 000 ans pour les colis de déchets bitumés.

Le relâchement plus rapide de l'activité qu'ils contiennent par les colis CSD-B par rapport aux autres colis MAVL doit être relativisé en tenant compte de son incidence sur l'évaluation de l'impact radiologique du stockage. De ce point de vue, les études de sensibilité effectuées par l'IRSN à l'occasion de l'instruction du Dossier 2005 montrent que, dans le cas de transferts essentiellement diffusifs, les durées de relâchement des colis n'influent pas sur les débits d'activité sortant de la roche hôte. Dans le cas d'un transfert convectif des espèces radioactives associé à un court-circuit de la formation hôte, une durée de relâchement plus courte peut par contre conduire à une

augmentation des débits d'activité en sortie des liaisons jour-fond du stockage. Cette augmentation n'est cependant sensible que pour les espèces les plus mobiles (I, Cl, Se et C). A cet égard, il convient de préciser que l'inventaire radiologique des CSD-B contient principalement des éléments de transition et platinoïdes (Co, Ru, Rh et Pd), des terres rares (Ce, Eu, Pr, Y) et des actinides (U, Pu, Np, Cm et Am) ainsi que du ⁹⁰Sr.

En conséquence, bien que la durée de vie des colis CSD-B en environnement cimentaire soit inférieure à celles des autres colis MAVL, l'IRSN considère, eu égard à l'absence d'espèces mobiles au sein de son inventaire, qu'un stockage des verres CSD-B en alvéole cimentaire n'apparaît pas de nature à remettre en cause l'impact à long terme du stockage.

Par ailleurs, l'IRSN note que l'Andra envisage un concept de stockage de type MAVL qui pourrait mettre en œuvre l'utilisation de béton bas pH. **L'IRSN note que ce type de matériaux pourrait être favorable au comportement à long terme de la matrice de verre mais considère que le référentiel de connaissances qui lui est associé est à ce jour insuffisant pour juger de la pertinence d'une telle option et de ses avantages en termes de diminution effective des vitesses d'altération des verres CSD-B.**

Eléments de comparaison entre un stockage en alvéole MAVL et un stockage en alvéole HA

Pour rappel, le stockage de déchets vitrifiés en alvéole HA envisagé par l'Andra consiste à placer les colis de verres dans des surconteneurs en acier non allié, puis à les glisser dans un chemisage en acier non allié aménagé dans des alvéoles horizontales. La mise en place d'intercalaires est prévue de façon à permettre une meilleure répartition de la charge thermique.

Dans son avis, l'Andra envisage deux options de stockage des verres CSD-B en alvéole HA :

- un stockage dans des alvéoles de type HA adaptés spécifiquement aux colis CSD-B,
- un stockage en tant qu'intercalaires au sein d'alvéoles de type HA accueillant des colis de thermicité élevée.

L'IRSN considère que ces deux options assureraient une meilleure compatibilité chimique sur le long terme entre les verres CSD-B et son environnement qu'un stockage en environnement cimentaire. Au regard des éléments présentés par AREVA NC en 2008, lors de la demande d'approbation de la spécification 300 AQ 061, l'application d'un modèle d'altération V_0 -S dans la gamme de pH attendue dans des alvéoles de type HA pourrait ainsi conduire à des durées de relâchement de l'ordre de quelques dizaines de milliers d'années, c'est-à-dire bien supérieures aux 600 à 3500 ans envisagés pour un stockage en alvéole MAVL.

L'IRSN note par ailleurs que la mise en place de colis CSD-B au sein d'alvéoles HA dédiés aurait pour principale conséquence d'augmenter le nombre total d'alvéoles de la zone de stockage HA. Au regard des données actuelles (hauteur des colis CSD-B de l'ordre de 1,5 m, longueur d'alvéole de l'ordre de 100 m), une telle option nécessiterait le creusement d'environ 15 alvéoles. En comparaison, l'utilisation de colis CSD-B en intercalaires n'aurait aucun impact en termes d'emprise du stockage.

Enfin, AREVA NC a indiqué, au cours de l'instruction, que le stockage des colis CSD-B en alvéole HA plutôt qu'en alvéole MAVL aurait une incidence sur l'ordonnement de livraison des colis et donc sur les capacités d'entreposage dans l'établissement AREVA NC de la Hague. Cette incidence serait tout particulièrement notable pour l'option dans laquelle les colis CSD-B serviraient d'intercalaires

aux colis de verre de thermicité élevée, compte-tenu des durées de refroidissement importantes à respecter avant leur réception en stockage (envisagée actuellement à partir de 2075 par l'Andra).

Ainsi, l'IRSN estime que les deux options de stockage en alvéoles HA présentent indéniablement de meilleures garanties que l'option de stockage en alvéoles MAVL du point de vue du comportement à long terme de la matrice de verre. De façon générale, l'IRSN considère toutefois que le choix d'une option de stockage des colis CSD-B doit faire l'objet d'une analyse globale prenant en compte l'ensemble des implications de ce choix, en particulier en termes d'entreposage et d'optimisation de l'emprise du stockage.

4- Conclusion

L'IRSN note que le dossier transmis par AREVA NC envisage la possibilité d'un stockage des colis CSD-B en alvéole MAVL et présente les résultats d'études expérimentales destinées à évaluer le comportement à long terme des verres soumis à un environnement cimentaire. Ces études conduisent AREVA NC à confirmer la forte réactivité chimique des verres en présence de bétons et à retenir le modèle $V_0.S$ comme modèle d'altération. L'IRSN considère que ces éléments répondent de manière satisfaisante à la demande de l'article 4 de la décision ASN n°2009 DC-0166 du 8 décembre 2009.

Pour ce qui concerne le choix des modalités de stockage des colis CSD-B, l'IRSN considère que, parmi les options envisagées à ce jour, celles reposant sur un stockage en alvéole HA présentent un avantage du point de vue des performances de confinement à long terme. Dans le cas où un stockage de type MAVL serait retenu, l'IRSN estime également que l'utilisation d'un béton bas pH pourrait permettre de réduire la réactivité des verres en milieu cimentaire. Toutefois, l'IRSN note qu'à ce stade aucune comparaison entre les différentes options de stockage HA ou MAVL envisagées pour le colis CSD-B n'a été réalisée.

A cet égard, il convient de préciser, d'une part qu'un stockage au sein d'alvéoles HA pourrait conduire à allonger les durées d'entreposage des verres CSD-B sur le site de La Hague, d'autre part que le retour d'expérience sur l'utilisation de béton bas pH est à ce jour insuffisant pour se prononcer sur l'apport de ce type de béton en conditions de stockage géologique. En conséquence, l'IRSN estime qu'une analyse globale prenant en compte les enjeux liés à l'optimisation des filières de gestion des déchets, à la sûreté à long terme et à la sûreté en exploitation devra être fournie par l'Andra pour étayer le choix d'une solution de stockage des colis CSD-B.

Pour le Directeur général et par ordre

Didier Gay
Adjoint au Directeur des déchets et de la géosphère