

Avis de l'IRSN relative à la spécification référencée 300-AQ-061 pour le conditionnement par vitrification d'effluents de moyenne activité

Par lettre du 9 juillet 2008, l'ASN a demandé l'avis et les observations de l'IRSN sur la demande d'approbation de la spécification de production des colis standard de déchets vitrifiés de type CSD-B, référencée 300 AQ 61 rév 0A, qui a été présentée par AREVA NC. Cette spécification vise à permettre la vitrification des effluents de rinçage issus notamment des opérations de mise à l'arrêt définitif de l'usine UP2-400. Dans cette lettre, l'ASN demande à l'IRSN de porter une attention particulière au choix des paramètres garantis et aux incertitudes associées.

Contexte

Le démantèlement de l'usine UP2-400 génèrera, lors des opérations de décontamination des équipements de procédé, des effluents de rinçage qu'AREVA NC envisage de conditionner dans une matrice de verre alumino-boro-silicatée au moyen d'un procédé de vitrification dit en creuset froid.

La composition chimique de ces effluents est définie par AREVA NC sur la base de l'historique de l'activité de l'usine UP2-400 et du retour d'expérience du démantèlement de l'usine UP1 du site de Marcoule. Les principaux éléments proviennent des matériaux constituant les équipements à décontaminer (fer, chrome, nickel...) et des réactifs de rinçage (principalement la soude et l'acide nitrique). AREVA NC estime par ailleurs que ces effluents de rinçage devraient être de moyenne activité.

Il est à noter que le sodium contenu dans les réactifs de rinçage est un facteur limitant pour l'incorporation des calcinats dans les verres, du fait de son incidence sur le comportement à la lixiviation du déchet vitrifié. Les teneurs en sodium considérées étant notablement plus élevées que celles des solutions de produits de fission vitrifiées selon la spécification 300 AQ 60 rév. 00, AREVA NC a défini une nouvelle formulation de la fritte de verre afin de compenser les effets du sodium sur les propriétés de confinement du verre.

AREVA NC estime que 600 à 800 colis de type CSD-B devraient être produits. Ces colis sont destinés à être entreposés dans les mêmes installations que les colis CSD-V puis stockés en formation géologique profonde.

Evaluation de la spécification 300 AQ 61 rév. 0A

Comme pour les colis de type CSD-V, le confinement de la matière radioactive est assuré par son incorporation et sa répartition homogène au sein d'un réseau vitreux. L'élaboration et l'acquisition de bonnes propriétés de confinement à long terme du déchet vitrifié nécessitent la présence de certains oxydes dans les verres. Ces oxydes agissent notamment sur la constitution du réseau vitreux (SiO_2 , B_2O_3 , Al_2O_3 , ZrO_2), sur la viscosité du verre en fusion (Na_2O , CaO et Li_2O) et sur sa conductivité

thermique (NiO, CoO). D'autres oxydes présents dans les effluents de rinçage seront également incorporés dans le verre. La spécification 300 AQ 61 rév. 0A regroupe ces oxydes selon trois grandes catégories, fondées sur la similitude du comportement dans le verre des éléments qui la composent :

- les éléments de transition et les platinoïdes (Fe, Cr, Mn, Tc, Ru, Rh et Pd), qui constituent la catégorie dite « ETR » ;
- les terres rares et les actinides (Ce, Gd, U, Pu, Np, Cm et Am), qui constituent la catégorie dite « TRA » ;
- les autres éléments (Mo, P, S, Ba), qui constituent la catégorie dite « autres ».

AREVA NC spécifie les teneurs dans le verre (exprimées en % en masse du déchet vitrifié) pour différents oxydes et justifie les limites retenues sur la base des résultats d'une campagne d'essais effectuée pour partie à l'échelle 1. **L'IRSN relève que les spécifications retenues sont cohérentes avec celles relatives à la production des colis de type CSD-V.** L'IRSN constate toutefois que :

- Les teneurs en CaO et en Li₂O ne sont pas bornées dans la spécification 300 AQ 61 rév. 0A alors que ces oxydes ont une incidence sur la viscosité du verre. **L'IRSN recommande qu'AREVA NC justifie qu'il n'est pas nécessaire de spécifier des teneurs limites de ces oxydes dans le verre pour garantir la qualité de son élaboration. A défaut, l'IRSN estime que ces teneurs devraient figurer parmi les paramètres garantis par la spécification.**
- De même, les teneurs en chrome et en nickel ne sont pas bornées dans la spécification 300 AQ 61 rév. 0A. Or, ces éléments peuvent former, en association avec le fer, des agrégats (chromites) préjudiciables à l'homogénéité du verre produit. Aussi, **l'IRSN recommande qu'AREVA NC spécifie des valeurs limites des teneurs dans le verre de ces deux éléments.**
- Les éléments de la catégorie « autres » présentent une faible solubilité dans le verre. Or, AREVA NC ne spécifie pas la quantité maximale admissible de chacun de ces éléments dans le déchet vitrifié. Seule une valeur limite d'incorporation est spécifiée pour la somme des teneurs des éléments de cette catégorie (< 4 % en masse du déchet vitrifié), déterminée sur la base de résultats d'essais expérimentaux. Ces essais n'ont pas mis en évidence, dans le domaine exploré par l'expérience (teneurs de 1,8 % pour le MoO₃, 0,9 % pour le P₂O₅, 0,45 % pour le SO₃ et 0,85 % pour le BaO), la formation d'amas au sein du verre. Il n'est toutefois pas possible, sur la base de ces seuls résultats, d'apprécier si la limite globale spécifiée est pertinente pour des verres qui contiendraient les oxydes de la catégorie « autres » en proportions différentes de celle retenue pour les essais. **L'IRSN recommande, en conséquence, soit que la spécification 300 AQ 61 rév. 0A garantisse les teneurs maximales dans le déchet vitrifié de chaque oxyde composant la catégorie « autres », soit que des essais complémentaires soient réalisés visant à montrer que chacun de ces oxydes peut être incorporé à la hauteur de la valeur globale spécifiée, sans dégradation de la qualité du verre fabriqué.**

S'agissant des paramètres liés au procédé de vitrification, AREVA NC spécifie une température minimale de 1 210 °C du bain de fusion et un brassage du verre, par agitation mécanique et bullage, pour garantir son homogénéité. Ces choix reposent sur les résultats d'un programme d'expérimentation mené sur un prototype de creuset froid, similaire à celui qui sera implanté dans l'atelier R7 de l'usine UP3-A de l'établissement de La Hague. Les résultats obtenus montrent que tous les prélèvements de coulées réalisées selon les conditions d'élaboration définies dans le

programme de contrôle de la qualité (PCQ) associé à la spécification sont homogènes (observation au microscope). En particulier, les inclusions formées par les particules de ruthénium se répartissent de manière régulière dans la matrice vitreuse. En outre, selon les essais réalisés, les teneurs en oxydes des colis de type CSD-B restent identiques en début, milieu et fin de coulée.

Il convient toutefois de noter que les plages de variation de la vitesse de l'agitateur mécanique et du débit de bullage ne sont pas spécifiées, mais sont uniquement définies dans le PCQ, ces conditions devant être maintenues « *pendant toute la phase d'élaboration* ». **L'IRSN estime qu'AREVA devrait garantir les plages de variation définies dans le PCQ ou montrer qu'un brassage du verre en fusion en dehors de ces plages n'a pas de conséquence significative sur l'homogénéité des colis produits.**

S'agissant de l'estimation des propriétés de confinement à long terme des colis de type CSD-B, le programme d'étude réalisé par AREVA NC conclut que la vitesse de dissolution de ce type de colis est du même ordre de grandeur que celle du colis de type CSD-V, déterminée à partir de mesures effectuées sur des échantillons placés dans des conditions expérimentales identiques. Toutefois, si les essais de lixiviation des verres de type CSD-B mettent en évidence un ralentissement de la vitesse initiale de dissolution d'environ 2 ordres de grandeur, le programme réalisé n'a pas permis de montrer, contrairement aux colis de type CSD-V, qu'un gel protecteur se formera de manière pérenne sur la surface du verre (il est considéré, dans le cas du colis de type CSD-V, qu'un tel gel peut abaisser la vitesse initiale de dissolution du verre de quatre ordres de grandeur).

Les propriétés de confinement du colis de type CSD-B, au vu des résultats des essais expérimentaux réalisés, apparaissent donc moindres que celles du colis de type CSD-V. L'IRSN estime néanmoins que celles-ci sont acceptables, compte tenu notamment du fait que :

- **l'activité moyenne contenue dans un colis de type CSD-B ne représente qu'un pour-cent de celle incorporée dans un colis de type CSD-V,**
- **le nombre de colis de type CSD-B qu'AREVA NC envisage de produire à ce jour est bien inférieur à celui des colis de type CSD-V.**

Il faut toutefois souligner que l'ANDRA mentionne, dans son avis sur la spécification de production 300 AQ 61 rév. 0A, que les colis de type CSD-B pourraient être stockés dans un environnement cimentaire. **A cet égard, l'IRSN ne peut se prononcer sur les propriétés de confinement à long terme du verre dans un tel environnement.** En tout état de cause, la possibilité de recourir à une telle option de stockage, différente de celle retenue jusqu'à présent pour le stockage des déchets vitrifiés, devra faire l'objet d'un examen spécifique.

S'agissant de l'enveloppe du colis de déchets vitrifiés de type CSD-B, AREVA NC a retenu un conteneur identique à celui utilisé pour les colis de type CSD-V. Les paramètres garantis sont les mêmes dans les spécifications 300 AQ 60 rév 00 et 300 AQ 61 rév. 0A (caractéristiques dimensionnelles du conteneur et nuance d'acier). Il est en outre à noter qu'AREVA NC a réalisé un programme d'essais et de mesures (déformation par fluage du fond du conteneur, déformations maximales du conteneur, déformation résiduelle, caractéristiques mécaniques de l'acier après la coulée, oxydation du conteneur, altération métallurgique) dont les résultats indiquent notamment que la température de coulée d'un verre de type CSD-B, plus élevée d'une centaine de degrés que celle d'un verre de type CSD-V, n'affecte pas les propriétés du conteneur. Ceci n'appelle pas de commentaire de la part de l'IRSN.

En conclusion, sur la base de l'évaluation du dossier de sûreté transmis par AREVA NC, l'IRSN n'émet pas d'objection à la mise en œuvre de la spécification 300 AQ 61 rév 0A, sous réserve des recommandations formulées dans le présent avis.

L'IRSN souligne toutefois que cette spécification n'est, à ce stade, applicable que pour la vitrification d'effluents de rinçage dont la composition chimique est de même nature que celle retenue pour définir les paramètres spécifiés. Dans le cas où des effluents contenant des substances chimiques autres que celles décrites dans la spécification devaient être traités, l'absence d'effet de ces substances sur la qualité du verre obtenu devra être vérifiée au préalable.