

Fontenay-aux-Roses, le 19 décembre 2013

Monsieur le président de l'Autorité de Sûreté Nucléaire

Avis/IRSN N° 2013-00473

Objet : AREVA NC
Colis CSD-V à teneur en actinides augmentée - Spécification 300 AQ 60

Réf. Lettre CODEP-DRC-2013-034773 du 20 juin 2013

1- Contexte

Par lettre citée en référence, vous demandez l'avis de l'IRSN sur la synthèse du programme de recherche sur l'altération des verres sous irradiation, poursuivi par AREVA NC. Cette synthèse constitue la réponse à l'article 3 de la décision ASN n°2008-DC-0125 du 16 décembre 2008 relative à l'autorisation de production des verres selon la spécification 300 AQ 60. A cet égard, vous demandez en particulier « *si les études et les analyses menées par AREVA NC sont suffisantes et apportent des compléments de connaissance nécessaires à la démonstration de sûreté d'un stockage définitif des déchets [conditionnés en colis CSD-V à teneur en actinides augmentée] dans Cigéo* ».

Compte tenu de l'augmentation des taux de combustion des combustibles traités dans son usine de La Hague, AREVA NC a décidé de mettre en place, en complément de la spécification 300 AQ 16, la spécification 300 AQ 60 de façon à intégrer dans les colis CSD-V des teneurs en actinides mineurs plus élevées. Selon la spécification 300 AQ 16, la teneur en actinides mineurs était limitée par le paramètre garanti « borne curium » à une valeur maximale de 90 grammes de ^{244}Cm par colis. Ce paramètre a été remplacé dans la spécification 300 AQ 60 par une dose alpha cumulée à 10 000 ans de 1.10^{19} désintégrations alpha par gramme de verre.

L'IRSN concluait à la suite de l'examen relatif à l'approbation de cette spécification que les propriétés physiques et le comportement à la lixiviation des verres fabriqués selon la spécification 300 AQ 60 étaient globalement similaires à celles des verres produits antérieurement à 2007 selon la spécification 300 AQ 16. Cependant, l'analyse des résultats préliminaires d'expériences présentées par AREVA NC, portant sur l'influence d'une forte irradiation sur les vitesses d'altération des verres (initiales et résiduelles) et menées sur un verre T7 et sur un verre dopé au Cm^{244} , révélait que la vitesse résiduelle d'altération observée dans le cas de verres actifs était supérieure d'un ordre de grandeur à celle mesurée pour des verres inactifs, bien que les vitesses initiales d'altération mesurées

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

sur des verres inactifs et actifs fussent du même ordre de grandeur. L'IRSN note que les expériences visées n'étaient pas terminées au stade de cet examen.

AREVA NC a poursuivi son programme d'expérimentations jusqu'en 2012 afin de répondre aux objectifs suivants : i) déterminer la vitesse résiduelle d'altération des verres à teneurs en actinides augmentée en conditions représentatives d'un stockage, ii) comprendre l'origine des vitesses résiduelles d'altération élevées observées en 2008 sur le verre T7 et le verre dopé au ^{244}Cm .

2- Démarche expérimentale suivie par AREVA NC

La démarche suivie par AREVA NC s'articule autour de deux types d'expérimentations destinées à étudier l'influence de l'irradiation sur la lixiviation du verre. Le premier porte sur des verres actifs, l'irradiation est alors générée par la matrice vitreuse (auto-irradiation) ; le second sur des verres inactifs, l'irradiation est alors générée par un rayonnement gamma externe (dépôt d'énergie homogène). Les expérimentations précédentes ont été complétées par la lixiviation d'un verre de référence en l'absence d'irradiation.

Les expériences d'auto-irradiation ont porté sur un verre T7 (émetteurs bêta-gamma essentiellement ; débit de dose de l'ordre de 12 kGy/h) et sur des verres dopés au ^{244}Cm (émetteur alpha ; 80 kGy/h), au ^{239}Pu (émetteur alpha ; 150 Gy/h) et au ^{99}Tc (émetteur bêta ; 0,05 Gy/h). Celles sous irradiation externe gamma ont été réalisées à des débits de dose de 50 Gy/h, 800 Gy/h, 5 kGy/h et 10 kGy/h. Pour l'ensemble de ces configurations, la lixiviation des verres a été étudiée en présence d'eau pure. Pour étudier l'influence des conditions d'environnement chimiques représentatives du stockage, AREVA NC a également conduit des essais de lixiviation de verres inactifs sous une irradiation externe de 50 Gy/h et de 5 kGy/h, en présence d'eau représentative du site de Meuse/Haute-Marne. Le même type d'essai a été conduit pour un verre inactif en l'absence de toute irradiation.

3- Représentativité des débits de dose étudiés

En premier lieu, l'IRSN rappelle que la durée d'étanchéité actuellement envisagée pour les surconteneurs des colis de déchets de haute activité (HA) est de l'ordre de mille ans et que la période de lixiviation des verres devrait donc s'échelonner sur une période comprise entre cette date et quelques centaines de milliers d'années. Il note qu'au début de cette période, le débit de dose total au contact d'un colis produit selon la spécification 300 AQ 60 sera de l'ordre de 200 Gy/h, c'est-à-dire du même ordre de grandeur que celui correspondant au verre dopé au ^{239}Pu étudié. S'agissant du verre dopé au ^{99}Tc , la valeur de débit de dose de 0,05 Gy/h correspond au champ d'irradiation des colis vitrifiés après plusieurs dizaines de milliers d'années de stockage. Enfin, les débits d'irradiation externe de 800 et 50 Gy/h sont respectivement représentatifs des débits de dose attendus au contact des colis après quelques centaines et quelques milliers d'années de stockage. **L'IRSN considère donc que les expérimentations conduites par AREVA NC permettent de couvrir une gamme de débits de dose représentative de la période postérieure à la perte d'étanchéité des surconteneurs de colis de déchets HA. Les résultats obtenus sont discutés au point 4 du présent avis.**

L'IRSN note que le débit de dose associé au verre dopé au ^{244}Cm est de 2 ordres de grandeur supérieurs à ceux attendus en conditions de stockage. L'expérimentation sur ce verre a en effet été dimensionnée selon un objectif complémentaire à celui des essais évoqués précédemment ; celui-ci

consiste à atteindre, sur une durée d'expérimentation de quelques années, une dose alpha cumulée à 10 000 ans permettant de qualifier les effets de la dose alpha des colis de déchets vitrifiés produits selon la spécification 300 AQ 60. Les essais correspondants ont fait l'objet de difficultés expérimentales qui sont discutées au point 5 ci-après, en même temps que les résultats des essais de lixiviation des verres T7.

4- Estimation de la vitesse résiduelle d'altération en conditions représentatives d'un stockage

Les résultats obtenus sur les verres dopés au ^{99}Tc et au ^{239}Pu , mais également pour les expérimentations de lixiviation sous irradiation externe, mettent en évidence des vitesses résiduelles comparables aux vitesses obtenues pour le verre de référence. Ceci conduit AREVA NC à conclure que les vitesses résiduelles d'altération des verres testées ne sont pas affectées par une irradiation à des débits de dose représentatifs des conditions de stockage et que cette conclusion reste valide pour des débits de dose plus élevés (jusqu'à 10 kGy/h) délivrés par irradiation externe sous la forme d'un dépôt d'énergie homogène.

AREVA NC indique que les tests de lixiviation sous irradiation externe de verres inactifs en présence d'une eau représentative du site de Meuse/Haute-Marne ont mis en évidence la formation de phases magnésiennes silicatées, conduisant à des taux d'altération plus importants que ceux obtenus avec de l'eau pure. Les pellicules d'altération et les taux de lixiviation observés sont comparables pour les deux débits de dose testés (50 Gy/h et 5 kGy/h) mais également pour l'essai effectué en l'absence d'irradiation. Ce résultat met donc en évidence une réactivité particulière des verres en présence d'eau de site, mais permet aussi de conclure que cette réactivité n'est pas influencée significativement par le débit de dose dans le domaine étudié.

Eu égard à l'ensemble des éléments précédents, l'IRSN considère que les vitesses résiduelles d'altération des verres soumis à des débits de dose représentatifs des conditions attendues après la rupture de confinement du surconteneur, restent comparables à celles obtenus pour un verre de référence.

5- Origine des vitesses résiduelles élevées observées en 2008

Comme indiqué précédemment, les résultats présentés par AREVA NC en 2008 concernant les expérimentations menées sur le verre dopé au ^{244}Cm et sur le verre T7 ont révélé que la vitesse résiduelle d'altération observée était supérieure d'un ordre de grandeur à celle mesurée pour des verres inactifs.

Pour ce qui concerne l'étude menée sur la lixiviation de verres dopés au ^{244}Cm , AREVA NC a indiqué que d'importantes difficultés expérimentales ont été rencontrées et que celles-ci ont conduit à rendre les résultats inexploitable. En effet, le fort débit de dose de ce verre, de l'ordre de 80 kGy/h, a provoqué une formation importante de gaz de radiolyse, induisant de fortes surpressions dans le réacteur de lixiviation. Par sécurité, des opérations de dégazage très fréquentes ont été nécessaires, ce qui a causé une perte de l'ordre de 40% du volume de solution initial, s'ajoutant au volume perdu par les prélèvements d'échantillons réguliers. Ces dégazages fréquents ont ainsi mené à une surconcentration artificielle de la solution et à une perturbation des équilibres chimiques. Compte

tenu de ces difficultés expérimentales, l'IRSN convient du caractère inexploitable des vitesses résiduelles mesurées pour le verre dopé au ^{244}Cm .

S'agissant de l'expérience menée sur des verres T7, quatre hypothèses sont avancées par AREVA NC pour expliquer la vitesse résiduelle élevée observée en 2008 : l'effet du pH, l'effet du débit de dose, l'influence des anions et l'influence des produits de dégradation du joint d'étanchéité en Viton® du pot de lixiviation sous irradiation. A l'issue de son analyse, AREVA NC retient la dernière hypothèse en s'appuyant sur des études complémentaires d'irradiation externe d'échantillons en Viton®. Celles-ci ont permis de mettre en évidence le relâchement d'ions oxalates en solution pour des débits de doses de 10 kGy/h, comparables à celui du verre T7 étudié (12 kGy/h). Ces ions oxalates conduisent à la formation d'espèces radicalaires très réactives pouvant expliquer la vitesse d'altération plus importante du verre T7. L'hypothèse de l'influence du débit de dose est écartée par AREVA NC sur la base des résultats des expériences d'irradiation externe gamma, qui montrent l'absence d'augmentation de la cinétique d'altération de verres inactifs pour un débit de dose allant jusqu'à 10 kGy/h, comme indiqué dans le point 4 du présent avis.

L'IRSN considère que l'argumentation apportée par AREVA NC est suffisante pour attribuer les vitesses résiduelles élevées observées en 2008 pour le verre T7 aux produits de dégradation du joint en Viton® et non à une valeur élevée du débit de dose.

6- Conclusion

L'IRSN estime que les études présentées par AREVA NC permettent d'établir que les vitesses résiduelles d'altération des verres à teneur en actinides augmentée, pour des conditions représentatives d'un stockage, ne diffèrent pas de manière significative de celles observées sur des verres inactifs. Ces études apportent notamment des éléments probants pour expliquer l'origine des vitesses résiduelles d'altération élevées constatées en 2008, lors de l'analyse d'une première série de résultats d'essais de lixiviation. L'IRSN considère ainsi que les études remises par AREVA NC permettent désormais de disposer des éléments nécessaires à l'évaluation des capacités de confinement, en conditions de stockage, des colis de déchets vitrifiés produits selon la spécification 300 AQ 60.

Pour le Directeur général et par délégation
Le Directeur des déchets et de la géosphère

François BESNUS