

Fontenay-aux-Roses, le 23 juin 2016

Monsieur le Président de l'Autorité de sûreté nucléaire

**Avis IRSN n° 2016-00185**

**Objet :** Etablissement AREVA NC de La Hague

INB n° 117 - Atelier R4

Injection de réactifs réducteurs dans l'unité RANT et dans l'unité ventilation  
procédé : nouveau test d'injection continue lors d'une campagne de traitement de  
« raffinats technétium » de l'atelier R2

**Réf.**

- 1. Lettre ASN CODEP-CAE-2016-013189 du 30 mars 2016**
- 2. Lettre ASN CODEP-CAE 2013-048274 du 23 août 2013**

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 la déclaration de modification transmise par AREVA NC en février 2016. Cette modification vise à réaliser des essais d'injection en continu de réactifs réducteurs dans l'unité de Récupération de l'Acide Non Tritié (RANT) et dans l'unité de ventilation procédé de l'atelier R4 (INB n° 117), au cours d'une campagne de traitement de raffinats issus de la colonne de lavage du technétium de l'atelier R2 (INB n° 117).

**Adresse courrier**  
BP 17  
92262 Fontenay-aux-Roses  
Cedex France

## 1 Contexte

L'atelier R2 a pour fonction principale l'extraction de l'uranium et du plutonium contenus dans les solutions de dissolution du combustible nucléaire usé et de les séparer des produits de fission et des actinides mineurs. Le solvant chargé en uranium et plutonium est notamment décontaminé en technétium par un lavage spécifique à l'acide nitrique. Les raffinats aqueux issus de ce lavage contenant le technétium, dénommés « raffinats Tc », sont transférés dans une cuve de l'atelier R2 en attente de traitement. Ces « raffinats Tc » contiennent de l'acide nitrique non tritié, potentiellement recyclable dans les ateliers de l'INB n° 117 après traitement.

**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

L'atelier R4 assure, via l'unité RANT, le traitement des solutions acides non tritiées provenant de différentes étapes du procédé, excepté les « raffinats Tc » provenant de l'atelier R2, afin de les recycler au sein de l'INB n° 117.

Un premier traitement des « raffinats Tc » a été effectué en 2004 dans l'unité RANT. Ce premier essai a conduit à une augmentation du débit d'équivalent de dose dans les locaux, à une augmentation de l'activité  $\beta\gamma$  dans les distillats de l'unité RANT, ainsi qu'à une augmentation de l'activité  $\beta\gamma$  au niveau des filtres de très haute efficacité (filtres THE) du dernier niveau de filtration de l'atelier R4. Ces augmentations sont attribuées au ruthénium 106, produit de fission présent dans les « raffinats Tc ». En effet, dans les conditions d'acidité et de température du procédé, le ruthénium s'oxyde en tétraoxyde de ruthénium ( $\text{RuO}_4$ ) volatile, migre dans la ventilation procédé où il est réduit en dioxyde de ruthénium ( $\text{RuO}_2$ ) solide, pour être *in fine* piégé dans les filtres THE. Le traitement des « raffinats Tc » dans l'unité RANT a pour cette raison été arrêté en 2005, ces raffinats sont depuis traités dans l'unité de récupération d'acide tritié (RAT) de l'atelier R2, dédiée aux acides non recyclables.

Afin de pallier ces difficultés, l'exploitant a demandé l'autorisation, en 2013, de réaliser des essais de traitement des « raffinats Tc » dans l'unité RANT en ajoutant une étape d'injection de réactifs réducteurs au niveau de l'unité RANT et au niveau de l'unité de ventilation procédé de l'atelier R4. Cette étape vise à inhiber l'oxydation du ruthénium sous forme volatile  $\text{RuO}_4$  et à le maintenir en solution avec le technétium pendant le traitement des « raffinats Tc ». Ces essais prévoyaient, d'une part des injections de nitrite de sodium en solution au niveau des tuyauteries d'alimentation de l'évaporateur dédié au traitement des raffinats de l'unité RANT, d'autre part des injections de monoxyde d'azote (NO) gazeux au niveau des équipements de lavage des gaz de l'unité de ventilation procédé. Ils ont fait l'objet d'un avis de l'IRSN et de demandes de l'ASN dans le cadre de l'autorisation délivrée par la lettre citée en deuxième référence. AREVA a transmis en 2015 une note présentant le bilan et le retour d'expérience acquis lors de ces essais, dans laquelle il conclut à l'efficacité de l'utilisation du nitrite de sodium. Il y indique également que les injections de monoxyde d'azote n'ont finalement pas été réalisées. Par ailleurs, il précise que suite à un arrêt volontaire d'injection de nitrite de sodium pendant les essais, la volatilisation du ruthénium n'a pu être interrompue y compris après la reprise de l'injection. Ceci conduit l'exploitant à déclarer la modification objet du présent avis afin d'effectuer une nouvelle campagne d'essais.

Dans le dossier de sûreté associé, l'exploitant présente un protocole modifié de réalisation des essais, les modifications par rapport aux essais de 2013 concernant le positionnement et le débit des points d'injection de nitrite de sodium au niveau de l'unité RANT ainsi que le positionnement des points d'injection de monoxyde d'azote au niveau de l'unité de ventilation procédé.

## 2 Analyse de sûreté

### 2.1 Risques de dispersion de matières radioactives

Les risques de dispersion des matières radioactives lors des essais sont liés aux risques de remontée de solutions actives via les tuyauteries d'injection et aux risques de corrosion des gaines de ventilation liés à la formation de vapeurs nitreuses consécutive à la réaction entre les acides nitreux et nitrique.

Concernant l'injection de nitrite de sodium, de manière identique que pour les essais de 2013, l'exploitant indique que les risques de remontée de solutions sont maîtrisés du fait de la présence d'une garde hydraulique présente sur les lignes d'alimentation de l'évaporateur concerné. **Ceci n'appelle pas de commentaire.**

Lors des essais menés en 2013, l'exploitant indiquait que la production de vapeurs nitreuses, consécutives à l'injection des solutions de nitrite de sodium dans l'acide nitrique, induit des risques de formation de mousses. Deux points d'injection seront testés pour les nouveaux essais. Le débit maximal d'injection reste identique à celui des essais menés en 2013, avec des pics momentanés de débits pouvant être doublés suivant le déroulement des essais. L'exploitant indique qu'au niveau du premier point d'injection, la température est plus basse que celle mise en œuvre en 2013. De plus, le temps de séjour des solutions de nitrite de sodium dans l'acide nitrique est, pour ce point d'injection, très faible en comparaison à la cinétique de formation des vapeurs nitreuses, ce qui n'est pas favorable à la formation de mousses. En complément de ces conditions expérimentales, l'exploitant indique que ce point d'injection est équipé d'un évent permettant d'évacuer les vapeurs nitreuses éventuellement générées. **A cet égard, l'IRSN a recommandé dans l'avis relatif aux essais menés en 2013, d'adopter une démarche progressive en débutant la campagne d'essais par l'injection de solution de nitrite de sodium à faible débit et d'augmenter progressivement, et si nécessaire, le débit d'injection de la solution de nitrite de sodium. L'IRSN estime que cette démarche progressive est à reconduire pour les essais objets du présent avis. Ceci fait l'objet de la recommandation n° 1 formulée en annexe 1 au présent avis.**

Le second point d'injection est situé au niveau de l'évaporateur, dans lequel se trouve l'acide nitrique à recycler. L'exploitant indique qu'en proportion, le débit de vapeurs nitreuses formées par l'injection de solution de nitrite de sodium reste négligeable car inférieur au millième du débit de vapeur d'acide nitrique au sein de l'évaporateur. L'exploitant indique que ces nouvelles conditions permettent de s'affranchir du risque de formation de mousses au niveau des deux points d'injection. **Ceci n'appelle pas de commentaire.**

Concernant l'injection de monoxyde d'azote, de manière identique à ce que prévoyait l'exploitant en 2013, l'injection de monoxyde d'azote dans les gaines de ventilation de l'unité ventilation procédé de l'atelier R4 s'effectue sous pression puis le gaz se détend dans les gaines. Le montage d'injection mis en œuvre pour les essais est équipé d'un système anti-retour. En cas de surpression dans le montage d'injection de monoxyde d'azote, une soupape permet d'évacuer le gaz vers le réseau d'extraction de l'air du local qui est constitué de gaines en acier galvanisé. L'exploitant indique que les essais étant de courte durée, le risque de corrosion de cet acier par le monoxyde d'azote est maîtrisé. **Ceci n'appelle pas de commentaire.**

## 2.2 Risques d'exposition externe aux rayonnements ionisants

Ces risques résultent de la formation d'éventuels dépôts d'oxyde de ruthénium solide RuO<sub>2</sub> obtenu par réduction de RuO<sub>4</sub> gazeux par le monoxyde d'azote dans les gaines de ventilation des unités de

l'atelier R4 concernées par les essais. Selon l'exploitant, ces gaines cheminent dans des locaux où du personnel peut être présent.

Lors des essais de 2013, l'exploitant a réalisé un suivi dosimétrique dans l'ensemble des locaux accessibles aux opérateurs et dans lesquels se trouvent des gaines de ventilation situées en aval du point d'injection de monoxyde d'azote, y compris le local où les filtres THE du premier étage de filtration sont implantés. Ce suivi n'a pas mis en évidence d'augmentation des débits d'équivalent de dose dans ces locaux.

Pour les nouveaux essais que souhaite réaliser l'exploitant, il identifie un autre local accessible aux opérateurs et dont le zonage radiologique pourrait être modifié lors des essais. L'exploitant a estimé, en retenant l'hypothèse enveloppe selon laquelle tout le ruthénium se volatilise puis se dépose en aval du point d'injection du monoxyde d'azote, que le débit d'équivalent de dose dans ce local est inférieur à 25% de la limite admissible. A cet égard, l'exploitant indique qu'un suivi dosimétrique dans les locaux concernés sera réalisé lors des essais et qu'une consigne prévoyant l'arrêt du transfert des « raffinats Tc » depuis l'atelier R2 en cas d'atteinte de débits d'équivalent de dose maxima de ces locaux sera établie. **L'IRSN estime que la consigne précitée devrait être ajoutée dans les consignes d'exploitation des ateliers R2 et R4. Ceci fait l'objet de l'observation n° 1 formulée en annexe 1 au présent avis.**

### 2.3 Risques de criticité

L'injection de nitrite de sodium au niveau de l'unité RANT conduit à la formation d'acide nitreux, susceptible d'être présent en quantité limitée dans l'acide nitrique à recycler vers les unités de réactifs des ateliers R2 et R4. L'acide nitreux alors présent dans l'acide nitrique peut perturber les opérations de séparation d'uranium et du plutonium. Ces opérations nécessitent notamment la mise en œuvre d'un agent anti-nitreux permettant de s'assurer de la réduction chimique du plutonium lors de cette étape. Aussi, la présence d'acide nitreux dans l'acide nitrique peut conduire à ré-oxyder le plutonium, par consommation de l'agent anti-nitreux, et par conséquent entraîner une fuite de plutonium dans le flux de solvant déchargé. A cet égard, les règles générales d'exploitation (RGE) de l'atelier R4 stipulent que la concentration en acide nitreux dans l'acide nitrique ne doit pas dépasser une valeur maximale avant recyclage.

L'exploitant indique que lors des essais de 2013, la concentration d'acide nitreux potentiellement présent dans l'acide nitrique recyclé est restée faible et en tout état de cause inférieure à la valeur limite des RGE de l'atelier R4. Lors de l'instruction, l'exploitant a précisé les techniques de prise d'échantillons et d'analyse qu'il utilise pour mesurer la concentration en acide nitreux dans l'acide nitrique. Il indique notamment que la stabilité chimique des échantillons, indispensable à la représentativité des mesures, est assurée pour une durée limitée à 4 heures entre la prise d'échantillon et la mesure de l'acide nitreux dans ce même échantillon. **L'IRSN estime que le respect de ce délai maximum de quatre heures devrait être intégré dans les consignes d'exploitation. Ceci fait l'objet de l'observation n° 2 formulée en annexe 1 au présent avis.**

L'exploitant n'a pas présenté d'incertitudes associées aux résultats d'analyse d'acide nitreux, estimant que la limite de concentration définie dans les RGE pour un recyclage dans les ateliers R2 et

R4 présente d'importantes marges par rapport à la valeur limite fixée pour les essais. Après examen et vérification de l'ordre de grandeur de ces incertitudes, l'IRSN considère que cette démarche est acceptable.

#### 2.4 Risques d'incendie et d'explosion

Le nitrite de sodium est un comburant et un oxydant fort qui peut potentiellement réagir avec les matières organiques comme les matériaux en vinyle constituant les sas d'intervention et conduire à leur combustion.

L'exploitant indique que les dispositions prévues pour les essais sont les mêmes que celles mises en œuvre pour les essais de 2013. En outre, il indique que des panneaux de protection résistant à l'incendie sont installés entre les discontinuités des montages d'injection et les parois du sas de confinement. Ceci n'appelle pas de commentaire.

#### 2.5 Conséquences des essais sur les déchets et les rejets

S'agissant des rejets potentiels de ruthénium, en cas d'échec des essais, le ruthénium volatilisé serait détecté de manière précoce par mesure des débits d'équivalent de dose au niveau des équipements concernés de l'unité RANT, en amont de l'unité de ventilation procédé, conduisant à l'arrêt des essais en cas de dépassement des valeurs limites. Le ruthénium volatilisé serait alors retenu par les filtres THE situés à l'exutoire de l'unité de ventilation procédé de l'atelier R4. Une fois l'essai arrêté, ces filtres sont changés suivant un protocole usuel, également basé sur des mesures de leur débit d'équivalent de dose. L'IRSN considère que ces dispositions sont satisfaisantes.

S'agissant des déchets générés par le remplacement des filtres THE dans le cadre des essais, l'exploitant indique que les essais menés en 2013 ont conduit au remplacement de trois filtres THE, notamment pour estimer les masses de RuO<sub>2</sub> déposées sur ceux-ci. Les nouvelles conditions des essais devront permettre, selon l'exploitant, de rendre non significative la quantité de RuO<sub>2</sub> déposée sur les filtres. Cependant, l'exploitant se réserve toujours la possibilité de les remplacer à l'issue des essais à des fins d'analyse du ruthénium qui s'y serait déposé. Ceci n'appelle pas de commentaire.

S'agissant des rejets de nitrates, l'exploitant a calculé la quantité maximale d'acide nitrique correspondant à la configuration où tous les lots d'acide nitrique issus du traitement des « raffinats Tc » présenteraient une concentration en acide nitreux ne permettant pas leur recyclage. Elle serait inférieure à un pour cent de la limite annuelle de rejet de nitrate pour l'établissement AREVA de La Hague. Ceci n'appelle pas de remarque.

### 3 Conclusion

Sur la base des documents examinés, l'IRSN considère que les dispositions présentées par l'exploitant pour les essais d'injection en continu de réactifs réducteurs dans l'unité RANT et dans l'unité de ventilation procédé de l'atelier R4, lors d'une campagne de traitement des raffinats technétium

provenant de l'atelier R2, sont convenables sous réserve de la prise en compte des observations figurant dans le présent avis et rappelées en annexe 1.

Par ailleurs, l'exploitant devrait transmettre, à l'issue des essais, une note présentant les résultats d'essais et les enseignements tirés.

De plus, l'IRSN considère que, pour une éventuelle mise en œuvre industrielle pérenne de ces essais, une nouvelle déclaration de modification devra être transmise à l'ASN.

Pour le Directeur général et par délégation,

Marie-Thérèse LIZOT

Chef du Service de Sûreté des Transports  
et des installations du Cycle du combustible

Recommandations et observations

**Recommandations**

1 Risques de dispersion de matières radioactives

Concernant l'injection de solutions de nitrite de sodium, la campagne d'essais devra adopter une démarche progressive en débutant la campagne d'essais par des injections à faible débit et augmenter progressivement, et si nécessaire, le débit d'injection.

**Observations**

1 Risques d'exposition aux rayonnements ionisants

Les consignes d'exploitation des essais devraient intégrer l'arrêt du transfert des « raffinats Tc » depuis l'atelier R2 vers l'atelier R4, dans le cas d'un changement de classement du zonage radiologique d'un local.

2 Risques de criticité

Les consignes d'exploitation des essais devraient respecter un délai maximum de quatre heures entre la prise d'échantillon d'acide nitrique et la mesure de l'acide nitreux contenu dans ce même échantillon.