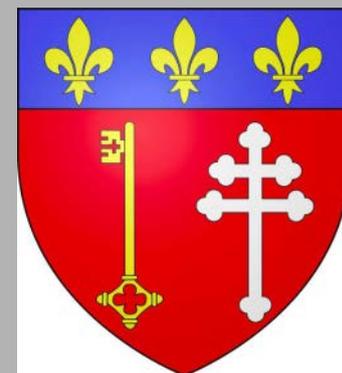
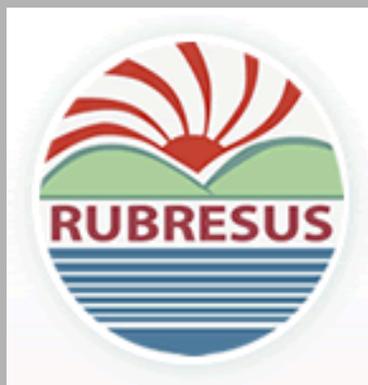


Questions d'ordre radioactif posées par le projet TDN AREVA

Yves LENOIR, *Enfants de Tchernobyl Belarus*
auteur de *La Comédie Atomique*, La Découverte 2016
<http://enfants-tchernobyl-belarus.org>

Présentation au
Conseil municipal de Narbonne
06 Avril 2017



Introduction : les lacunes du dossier ?

Bassins d'évaporation des solutions nitratées (B7,B8,B9,B10,B11,B12)

- Solutions nitratées (321 161 m³ - 498 440 t) : 0,96 TBq

- ⁹⁹Tc, ²²⁶Ra, ²³²Th, ²³⁴U, ²³⁸U, ²²⁷Th

ANDRA, *Inventaire National 2012*, MALVESI, p. 255

Le rapport de l'enquête publique de la Préfecture de l'Aude ne contient aucun des mots suivants :

- radium, Ra226 ou ²²⁶Ra
- radon, Rn222 ou ²²²Rn
- thorium, Th232 ou ²³²Th
- technétium, Tc99 ou ⁹⁹Tc
- radioactivité
- Bq
- Sv
- poussière ou aérosol

Or, selon l'ANDRA on va traiter 0,96 MILLIERS DE MILLIARDS de Bq

Introduction : incohérence du dossier ?

Les principales données relatives aux activités radiologiques des effluents alimentant TDN sont indiquées dans le tableau ci-après. Le flux d'effluents alimentant TDN est de l'ordre de 2 500 L/h, soit un flux de 20 000 m³/an d'effluents.

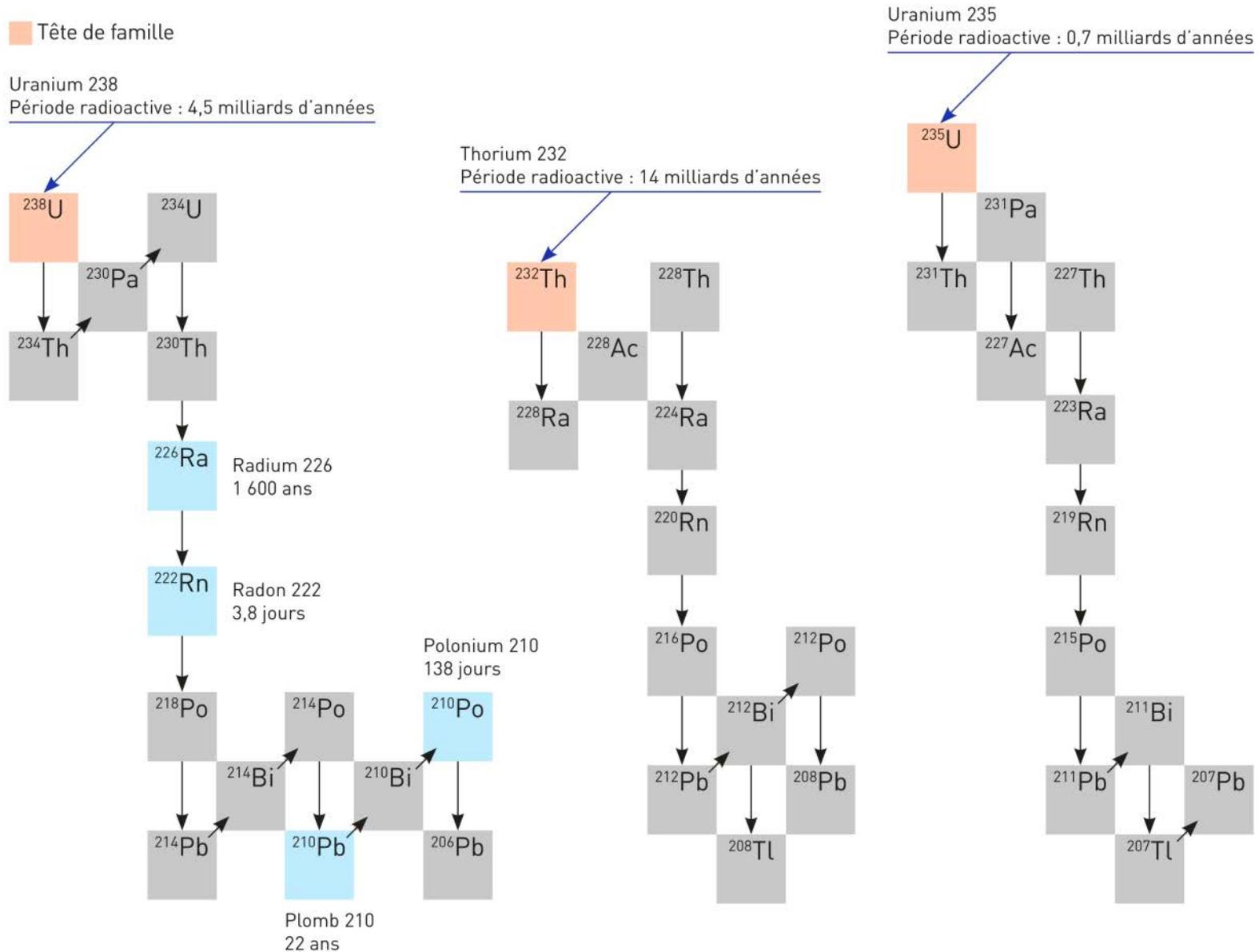
Radionucléides	Valeurs d'activité des effluents retenues (Bq/L)	
	Moyenne	Maxi
Activité totale	7177	13242
Activité due au ⁹⁹Tc (représente 58 à 62 % de l'activité totale)	4138	8250
Activité due au ²²⁶Ra et ses descendants (représente 35 à 40% de l'activité totale)	2925	4806
Activité due à l'Uranium (représente moins de 0.01% de l'activité totale)	< 0.5	< 1

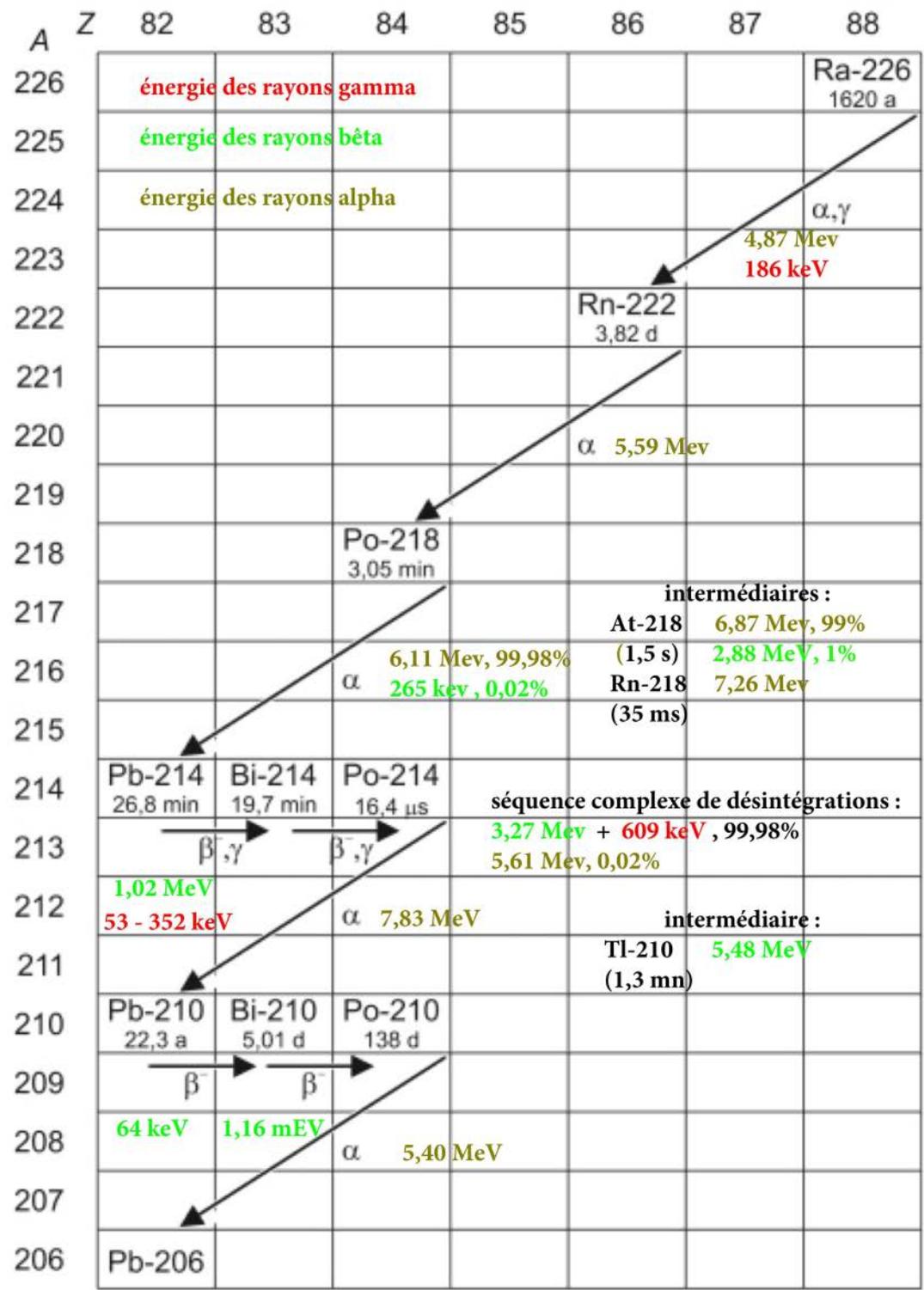
Extrait du dossier TDN AREVA, p 52

**Activité totale : 2,30 TBq, dont
1,33 TBq de ⁹⁹Tc et 0,94 TBq de ²²⁶Ra + filiation**

Radium, Radon et sa filiation

FIGURE 1 / CHAÎNES DE DÉSINTÉGRATION DE L'URANIUM 238, DU THORIUM 232 ET DE L'URANIUM 235





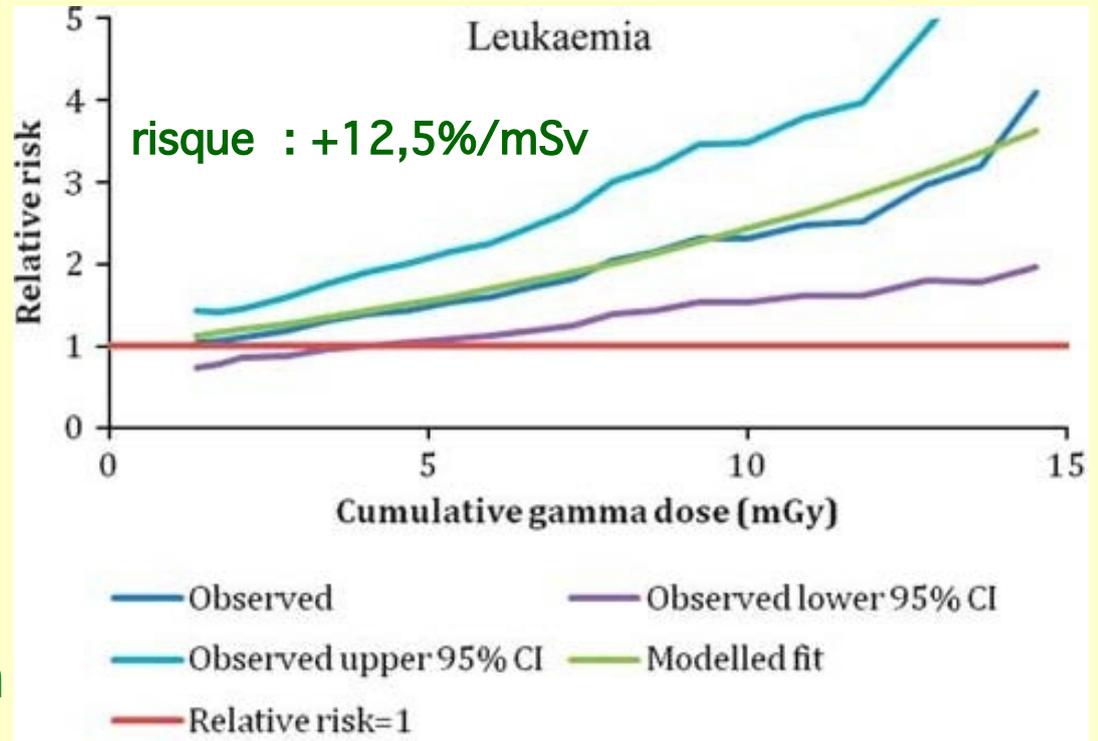
Rappels sur les expositions radiologiques

1. Limite légale d'exposition du public :

1mSv/an

2. Etude de G.M. Kendall & al.
A record-based case-control study of natural background radiation and the incidence of childhood leukaemia and other cancers in Great Britain during 1980–2006, Nature, Leading Article, 2012

Étude portant sur tous les cas de cancers (27 447) survenus chez des enfants entre 1980 et 2006 en Grande-Bretagne.



Signification :

un enfant recevant 1 mSv/an entre 0 et 14 ans en plus du rayonnement naturel a un risque de leucémie accru de $14 \times 12,5 = 175\%$

Rappels sur les expositions radiologiques

3. Radium et dérivés (source Fiche IRSN)

V.4 Dangerosité

-**Groupe de radiotoxicité** : indicateur de radiotoxicité au sens du décret 88-521 du 18/04/88.

1 (très forte)

1^{ère} édition : 01/08/2001

²²⁶Ra

		Dose efficace (Sv /Bq)	
		Adulte	Enfant (1-2 ans)
²²⁶ Ra seul			
Inhalation	Aérosol (type M) AMAD = 1µm	3,5.10 ⁻⁶	1,1.10 ⁻⁵
Ingestion		2,8.10 ⁻⁷	9,6.10 ⁻⁷

		Dose efficace (Sv /Bq)	
		Adulte	Enfant (1-2 ans)
²²⁶ Ra et ses descendants à l'équilibre			
Inhalation	Aérosol AMAD = 1µm	8,0.10 ⁻⁶	2,6.10 ⁻⁵
Ingestion		2,2.10 ⁻⁶	1,3.10 ⁻⁵

Radon et descendants : (par différence)	inhalation	4,5 10 ⁻⁶	1,5 10 ⁻⁵
	ingestion	1,9 10 ⁻⁶	1,2 10 ⁻⁵

Rappels sur les expositions radiologiques

4. Technétium 99 (source Fiche IRSN) : période = 213 000 ans

Le technétium 99 est un radio-isotope artificiel, émetteur bêta à vie longue, provenant pour l'essentiel des centres de retraitement du combustible. Sous sa forme la plus commune, pertechnétate $Tc(VII)O_4^-$, c'est un radioélément particulièrement mobile et biodisponible dans l'ensemble de la biosphère. Son comportement est cependant étroitement lié à son état d'oxydoréduction, ses formes réduites étant bien moins labiles.

4.1 Transferts vers les organismes aquatiques

Facteur de concentration dans les végétaux ($Bq.kg^{-1}$ de végétal frais par $Bq.l^{-1}$ d'eau)

Algues brunes

Fucus serratus (in situ)

$1,5 \times 10^5$

Fucus vesiculosus (in situ)

$1,75 \times 10^5$

Fucus spiralis (in situ)

$6,1 \times 10^4$

(Masson *et al.*, 1995)

Rappels sur les expositions radiologiques

Facteur de concentration (Bq.kg^{-1} d'animal frais par Bq.l^{-1} d'eau)

Crustacés		
	Valeur par défaut ¹	1×10^3
	<i>Homarus (in situ)</i> ²	$6,4 \times 10^3 - 6,8 \times 10^3$
	<i>Nephrops norvegicus (in situ)</i> ²	$2,8 \times 10^3$
Mollusques		
	Valeur par défaut ¹	1×10^3
	<i>Mytilus edulis (in situ)</i> ²	$9,7 \times 10^2$
	<i>Crassostrea gigas (in situ)</i> ²	$2,8 \times 10^2$
Poissons		
	Valeur par défaut ¹	1×10^1
	Poissons divers <i>(in situ)</i> ²	$1,25 \times 10^1$

(¹ IAEA, 1985 ; ² Smith *et al.*, 2001)

Rappels sur les expositions radiologiques

4.2 Transferts racinaires vers la végétation terrestre

Facteur de transfert racinaire (Bq.kg^{-1} de végétal sec par Bq.kg^{-1} de sol sec)

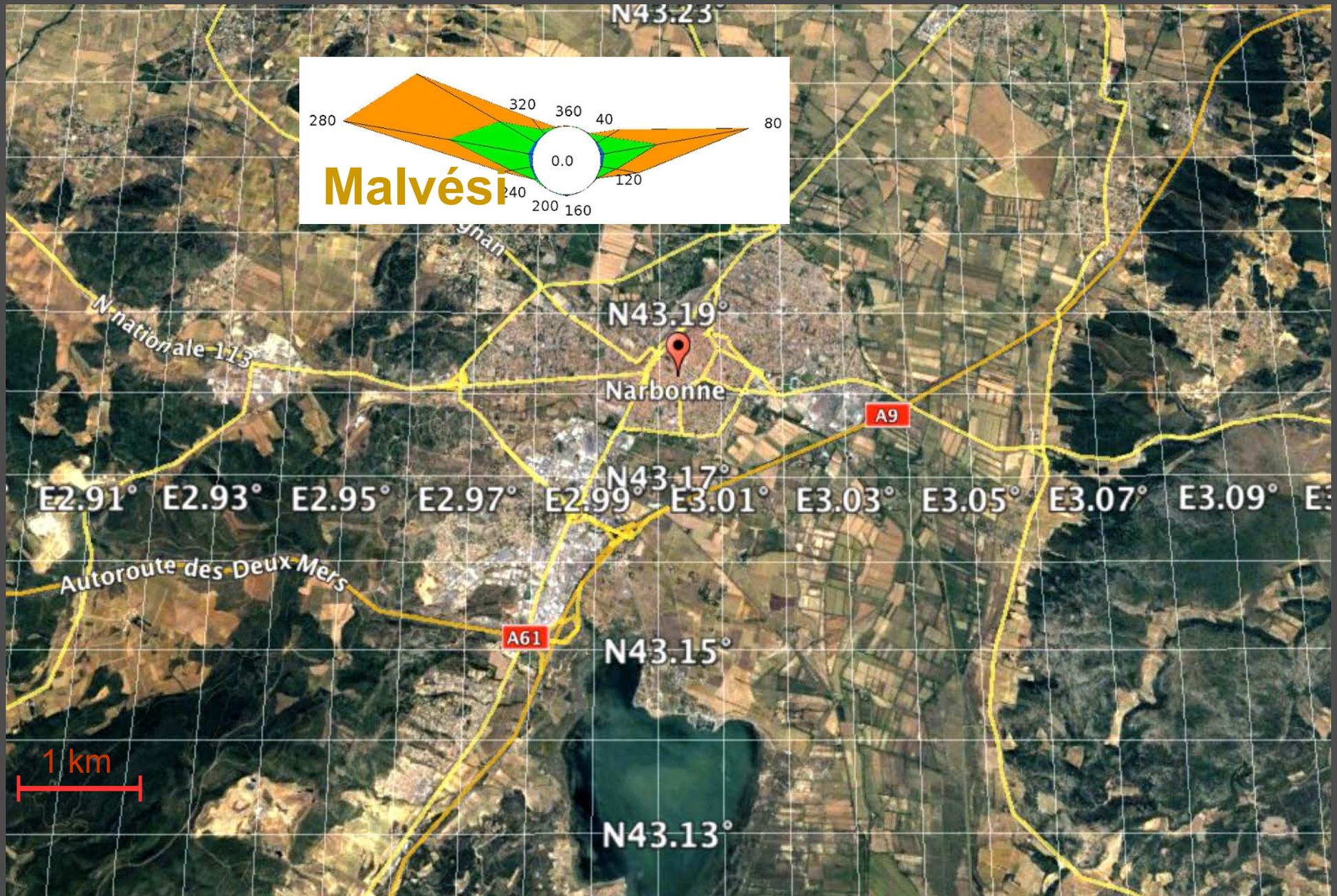
Céréales (grain)	$7,0 \times 10^{-1}$
Légumes feuilles	$1,2 \times 10^1 - 2,6 \times 10^3$
Légumes fruits (pois, haricots)	$4,0 \times 10^1$
Légumes racines (betterave, radis)	$8,0 \times 10^1$
Tubercules (pomme de terre)	$2,0 \times 10^{-1}$
Fourrage	$8,0 \times 10^0$
Herbe	$7,5 \times 10^1$

(IAEA, 1994)

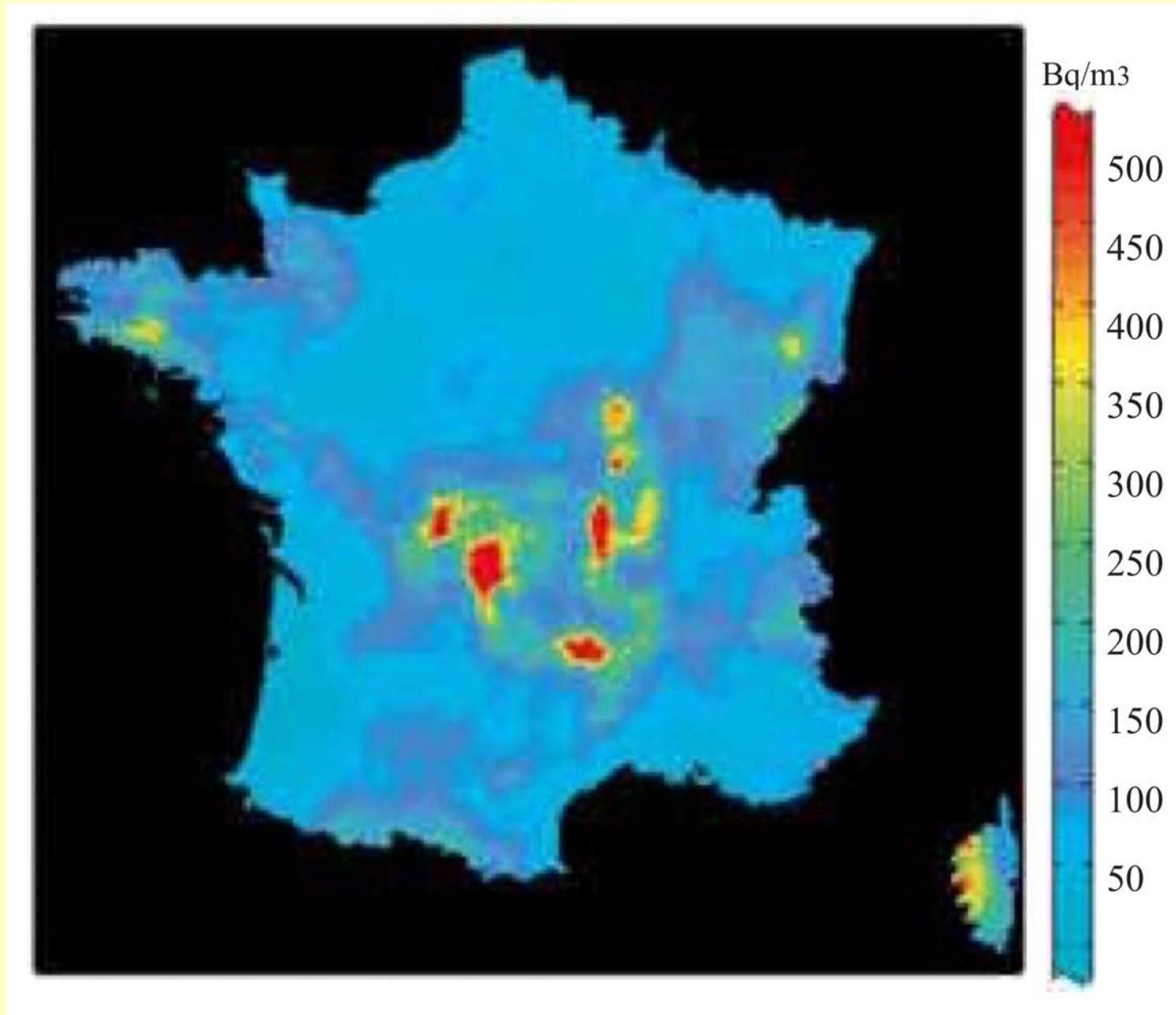
NARBONNE et...



NARBONNE et... la rose des vents



Carte de France des émissions de radon



Radon 222 : les émissions

Sources	Production annuelle (Bq/an)
Sol	$9 \cdot 10^{19}$
Océans	$9 \cdot 10^{17}$
Extraction de gaz naturel	$3 \cdot 10^{14}$
Extraction de charbon	$2 \cdot 10^{13}$

Origine : IRSN

oubli ? exploitation de l'uranium : $5 \cdot 10^{15}$ + déblais, résidus et stériles

1. Émissions annuelles de ^{222}Rn de THOR (pour 8 000 heures) :
 - combustion du charbon : entre 0,2 et 1 GBq (dépend de l'origine) ;
 - rejets gazeux du procédé : 53 GBq.
2. Émanation du radon d'un sol du type Narbonne : $0,03 \text{ MBq/an.m}^2$, soit de l'ordre de 1/10 000 de la production moyenne déduite du tableau (cf. Griffiths & al., *A map of radon flux at the Australian land surface*, 2010).

Il faudrait surveiller la concentration du ^{222}Rn sous le vent dominant

Technétium 99 : les émissions ?

1. Le ^{99}Tc n'est pas recherché dans les aliments (Ministère de l'agriculture, de la pêche, de la ruralité et de l'aménagement du territoire, *Note de service*, 09/12/11).
2. Le ^{99}Tc entre dans des composés anioniques mobiles, à l'inverse des autres produits de fission tels le ^{90}Sr ou ^{137}Cs . C'est la raison pour laquelle il n'est pas retenu avec l'ensemble des sous-produits vitrifiés du retraitement.
3. C'est un métal radioactif de très longue période.
4. Le procédé THOR dispose de filtres qui limitent les rejets de poussières des catégories PM10 et PM2.5 :

Milieu étudié	Substance étudiée
Atmosphérique	Uranium / Poussières (PM ₁₀ et PM _{2,5}) / Dioxyde de soufre / Oxyde d'azote / Ammoniac / Acide chlorhydrique / Acide fluorhydrique / Cadmium / Mercure / Arsenic / Chrome / Manganèse / Nickel
Terrestre	Uranium / Acide fluorhydrique / Cadmium / Mercure / Arsenic / Chrome / Manganèse / Nickel

Tableau 7 : Substances concernées par l'évaluation de l'impact cumulé des rejets chimiques sur l'environnement

Technétium 99 : les émissions ?

5. Le ^{99}Tc n'est pas cité dans le rapport du Commissaire enquêteur alors qu'il est le principal contaminant radioactif solide présent dans les boues nitrées et/ou dissout dans l'eau des bassins (le mot « *poussières* » non plus). Aurait-il été sensible à la formulation de sa présence dans l'étude d'impact d'AREVA ?

1 Rappel du contexte de l'étude d'impact

Le projet, objet de la présente étude d'impact, est une installation industrielle, dénommée TDN (Traitement Des Nitrates). Cette installation a pour but de traiter les effluents liquides des bassins d'évaporation du site AREVA NC Malvési, concentrés en sels, notamment en nitrates (de calcium, d'ammonium, de sodium, ...) et renfermant des traces de radionucléides (notamment des produits de filiation de l'uranium naturel et des traces de ^{99}Tc). Ce traitement aboutit à un colis solidifié constituant le résidu ultime de cette installation.

6. Le rapport traite qualitativement le piégeage des radioéléments (6.2.1) :

Des recherches effectuées par la société STUDSVIK montrent que les radionucléides contenus dans la suspension d'alimentation (ex : ^{99}Tc) sont efficacement piégés dans cette matrice minérale d'aluminosilicates.

7. Question : « *efficacement* » ?

La question est légitime puisque subrepticement on voit que des traces de ^{99}Tc vont contaminer les rejets atmosphériques. Des traces de traces, de traces,...

Technétium 99 : les émissions ?

3.1 Rejets

Le fonctionnement de l'installation génère :

- Des rejets atmosphériques issus :
 - du procédé de l'installation TDN, évacués par la cheminée du bâtiment principal, contenant des oxydes d'azote (NO_x), du protoxyde d'azote (N₂O), du dioxyde de soufre (SO₂), du monoxyde de carbone (CO), du chlorure d'hydrogène (HCl), de l'ammoniac (NH₃), des poussières (PM_{2,5}), des composés organiques volatils (COV), du fluorure d'hydrogène (HF), des traces de métaux et de radionucléides ;

8. Procédés THOR et ⁹⁹Tc : des informations contradictoires.

- Gentilucci @ al., *Technical Review of the Applicability of the Studsvik, Inc. Thors" Process to LNEEL SBW, DoE, 2001*

3.0 Independent Review

- e. Limited understanding of partitioning of certain key chemicals and radionuclides (e.g., sulfate, ¹³⁷Cs, ⁹⁹Tc) between the process off-gas and the final steam-reformed product.

Technétium 99 : les émissions ?

...quelques détails :

- la question de la volatilité des composés

The final residue will contain essentially all radionuclides except for the following radionuclides that exhibit higher volatility or form non-condensable gases: H-3, C-14, I-129, Rn-219/220, Cd-113m, In-115, Sn-119m/121m/126, Te-123, Tl-207/208/209, Pb-209/210/211/212/214, Bi-210m/210/211/212/213/214, Zn, Po-210/211/212/213/214/215/216/218, Se-79, Rb-87, Ru-106, and Nb-94/93m. The partitioning of the following radionuclides is unknown at this time: At-217, FR-221/223, Am-241/242m/242/243, and Cf-249/250/251/252. Additional factors to consider are that many metals are more volatile in the chloride and/or fluoride form, such as Tc-99, and Sb-126, however, the carbonate forms are less volatile. With the excess of carbon dioxide in the fluid bed, there is a high probability of forming less-volatile carbonates with many of the radionuclides. Only testing can determine the relative volatility of such radionuclides in the complex SBW mixture.

- les gaz de procédé

... / ...

Technétium 99 : les émissions ?

Off Gas

13. **Question:** What is the anticipated distribution of any Tc-99 in SBW, i.e., percent of Tc-99 in off gas and percent in final inorganic residue? Can Tc distribution profile be changed significantly by changing the type and amount of reductant, i.e., sucrose, etc., added during process operation? Is it possible to drive more than 99% of the Tc-99 to the inorganic residue?

Answer: The SPF ion exchange resin feed contains minor levels of Tc-99. We have been unable to do a mass balance on the Tc-99 as the actual levels of incoming Tc-99 are only scaled off of other radionuclides at the nuclear power stations that generate the resin waste. Whether the Tc-99 can be fully or partially partitioned to the off-gas is unknown. It is very unlikely that the volatility of Tc-99 can be changed by adjusting the amount of reductant, as the reductant input is controlled by the denitration reaction and energy needs in the bed. The presence of free chlorine and fluorine will have a much greater influence on the volatility of Tc-99 as TcCl_6 and TcF_6 are highly volatile. Technetium oxide is not volatile. Only testing can determine the influence that the halogen gases will have on the Tc volatility.

Technétium 99 : les émissions ?

- Neeway & al., *Radionuclide and Contaminant Immobilization in the Fluidized Bed Steam Reforming Waste Product*, PNNL, 2012.

Rhenium, often used as a non-radioactive surrogate for technetium, is predicted to be only 2 to 6% reduced to the +4 oxidation state at the nominal operating conditions. At the +7 oxidation state, rhenium, and by association, technetium, are predicted to enter the sodalite phase. Mattigod et al. (2006) were able to synthesize sodalite $[\text{Na}_8 (\text{AlSiO}_4)_6 (\text{ReO}_4)_2]$ that contained Re(VII). Its crystal structure was determined from Rietveld refinement of experimental XRD data. This study showed that Re(VII) can be incorporated into NAS solids. REDOX control is important for making certain that the contaminants enter the desired FBSR mineral phases. Only 2.5% of the Re was in the +7 state and 1% of the S was in the +6 state in the HTF product compared to 94 to 95% Re(VII) and 86 to 89% S^{6+} in the PR product.

De ces extraits on constate la complexité de la chimie d'un procédé sensé traiter des composés aux propriétés variées, voire antagonistes. On est alors en droit d'être étonné de la présentation quasi commerciale de THOR en 13 clichés dans le diaporama :

T. Crawford, T. Certa, *Overview : what is Secondary Waste*, Washington River Protection Solutions, June 14, 2010. ... / ...

THOR[®] Process – Studsvik Processing Facility

- **Treats wide range of radioactive wastes (>380,000 cu ft):**
 - **Ion exchange resins (up to 600R/hr)**
 - **Organic or inorganic sludges**
 - **Filters**
 - **Oils**
 - **Aqueous wastes**
 - **Dry active wastes (paper, plastics, rubber, wood)**
- **No liquid waste effluents**
- **Over 10 years successful LLRW operations**
- **High Cs and Tc retention (>99.9999%)**



**Studsvik's THOR[®] facility
Meets All Air Permit
and Emissions Limits**



ACCIDENT : risque d'explosion ?

- remarque du Commissaire enquêteur :

- Contrairement à ce qu'affirme l'association RUBRESUS, l'étude de dangers prend en compte les risques associés à la présence d'hydrogène ; l'analyse du risque d'explosion interne/externe a été réalisée selon la méthodologie définie par arrêté. Les matériels installés dans les zones définies seront spécifiées « ATEX ».

- éléments de l'étude d'impact ;

9.3.2 Explosion du réacteur DMR par inflammation d'une poche de gaz d'hydrogène

Comme mentionné précédemment, la pression de rupture du DMR peut être estimée au triple de la pression maximale de service, soit 18 bar rel.

Un nuage d'hydrogène au sein du DMR, mélangé idéalement à l'air dans des proportions stœchiométriques, pourrait s'enflammer au contact d'une source d'ignition et provoquer une montée en pression significative au sein du DMR. Néanmoins, la pression maximale d'explosion (P_{max}) pour l'hydrogène est comprise entre 7 et 8 bar rel. Une telle pression resterait inférieure à la pression de rupture du DMR.

Voilà mes réponses, offertes par l'expérience : ... / ...



**Merci pour votre
attention**