

Comment se comporteront à long terme les colis de déchets nucléaires...



P. Stroppa/CEA

Des études de comportement à long terme de colis de déchets de haute activité sont menées sur la chaîne blindée C18-C19 de l'installation **Atalante** à Marcoule.

L'étude du comportement à long terme constitue la clé de voûte des études sur la gestion des déchets nucléaires. Les échelles de temps en cause défient l'imagination, mais pas le raisonnement scientifique. À partir des mécanismes physico-chimiques majeurs qui conditionnent ce comportement, les scientifiques peuvent, à défaut de prédire exactement le devenir des colis de déchets, estimer avec de grandes marges de sécurité l'ampleur du relâchement de radionucléides à diverses échelles de temps.

Afin de dimensionner une installation d'**entreposage** ou de **stockage** de **déchets nucléaires** et de quantifier son impact potentiel sur l'environnement, il est nécessaire d'étudier comment se comportent ces déchets sur des échelles de temps qui peuvent se compter en dizaines, voire en centaines, de milliers d'années (encadré D, *De l'entreposage au stockage*, p. 50). Aussi les scientifiques ont-ils entrepris de déterminer avec précision les mécanismes physico-chimiques majeurs qui conditionnent ce comportement. Ils les ont intégrés dans des **modèles** pour se projeter dans le temps et obtenir des prédictions conservatives, c'est-à-dire incluant des marges de sécurité, des termes sources en entreposage ou en stockage, et ce pour tous les types de déchets de moyenne ou haute **activité à vie longue** (**MA-VL**

ou **HA**) et pour les **combustibles usés**. Si ces extrapolations à long terme n'autorisent pas de prédiction exacte du devenir des **colis** de déchets, elles permettent néanmoins de comparer différentes options possibles. Ces modèles sont destinés, de par leur caractère conservatif, à être intégrés dans des modèles de performances afin d'effectuer des calculs de sûreté.

Des échelles de temps qui défient l'imagination... mais pas le raisonnement scientifique

Les programmes de recherche sur le comportement à long terme des colis de déchets radioactifs ont une spécificité : ils doivent permettre d'effectuer des extrapolations sur des échelles de temps très longues, de l'ordre



L'infiniment petit à la rescousse du très long terme

1

Dans des conditions de **stockage** ou d'**entreposage**, les **colis** de **déchets** seront soumis à la décroissance **radioactive** des **radionucléides**, qui tend à désorganiser la **matrice** qui les contient (effets d'**auto-irradiation**). Les principales sources d'irradiation dans les verres nucléaires résultent des **désintégrations alpha** (α) issues des **actinides**, des **désintégrations bêta** (β) provenant des **produits de fission** et des **transitions gamma** (γ) accompagnant les désintégrations β et α . L'émission des rayonnements s'accompagne d'une production de chaleur. Les désintégrations α , caractérisées par la création d'un **noyau de recul** et l'émission d'une particule α (d'énergie 4 à 6 **MeV**), qui en fin de parcours génère un atome d'hélium, sont les principales sources de déplacements atomiques. En particulier, les noyaux de recul qui déposent une énergie importante sur une distance courte conduisent à des cascades de déplacements atomiques, rompant ainsi un grand nombre de liaisons chimiques (dépolymérisation). Ce type de désintégrations est donc la principale cause de dommage potentiel à long terme.

La compréhension de ces phénomènes à l'échelle du **nanomètre**, voire de l'atome, contribue à la robustesse des prévisions du comportement sur plusieurs centaines de milliers d'années. La mise au point d'une méthode basée sur le couplage entre une approche en collisions binaires et la **dynamique moléculaire** classique a été nécessaire pour le calcul de cascades de déplacements atomiques aux énergies réelles (de l'ordre de 70 **keV**) dans des verres nucléaires simplifiés. Cette nouvelle méthode est destinée à remplacer la dynamique moléculaire pure aux hautes énergies pour accélérer les calculs.

Après une étape de validation sur une cascade de 10 keV, durant laquelle les résultats de la méthode sont apparus conformes à ceux de la dynamique moléculaire de référence, une cascade de 70 keV a été simulée (figures 1 et 2). Les résultats sont continus sur la gamme d'énergie (0-70 keV). Il se produit systématiquement une dépolymérisation temporaire, dont l'intensité est linéaire avec l'énergie, suivie d'une restauration progressive de la structure vitreuse. Le nombre de déplacements atomiques croît également linéairement avec l'énergie du projectile.

La restauration de la structure n'est pas homogène, dans le sens où les régions les moins chaudes sont moins bien recuites (les guérisons des défauts sont moindres) par rapport aux régions les plus chaudes. Aucune modification, ni de polymérisation, ni de densité atomique, ne subsiste après le passage de la cascade dans les régions les plus chaudes, alors qu'un déficit en densité atomique, parfois associé à une dépolymérisation résiduelle, est susceptible d'apparaître dans les régions les moins chaudes, c'est-à-dire aux extrémités de la cascade. L'agitation locale dans les régions les plus chaudes s'amortit très rapidement au fur et à mesure de sa propagation et n'influence que très peu les régions voisines, d'où les moins bons recuits dans les zones soumises à des projectiles d'énergie intermédiaire.

Il est envisagé à l'avenir de poursuivre l'exploitation de cette nouvelle méthode, d'une part, pour affiner la compréhension des effets des noyaux de recul dans les verres et d'autre part, pour étudier comment la transférer à d'autres matrices oxydes de confinement.

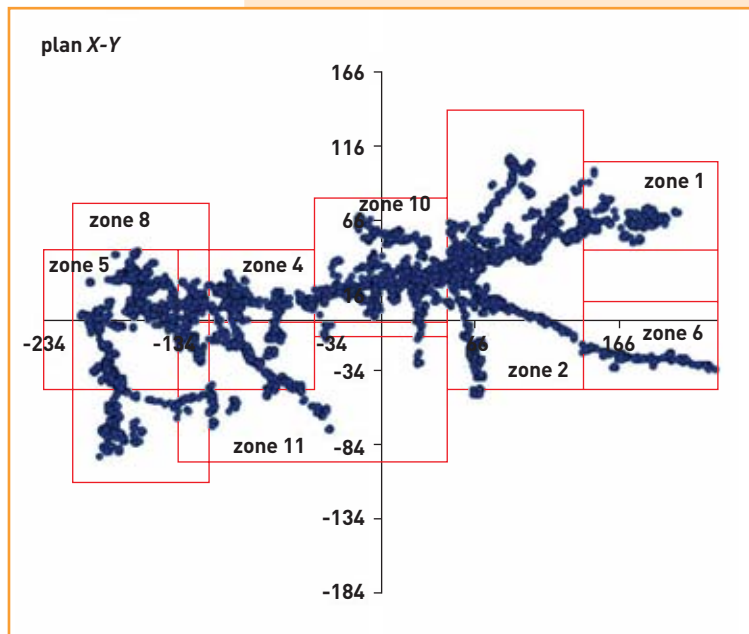


Figure 1. Morphologie d'une cascade initiée par un noyau de recul de 70 keV. Les points correspondent à l'ensemble des atomes d'oxygène déplacés. Les distances sont exprimées en Å (10^{-10} m). Seule une partie du découpage en zones est représentée.

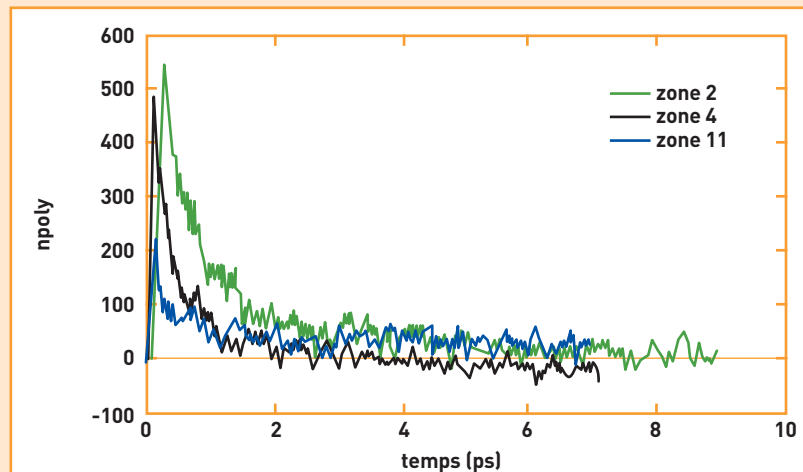


Figure 2. Évolution de la dépolymérisation en fonction du temps dans trois zones choisies pour illustrer la variété des comportements. npoly représente le nombre de liaisons chimiques du réseau vitreux ouvertes à un instant donné. Une valeur positive de npoly correspond donc à une dépolymérisation du verre.

de quelques dizaines à quelques centaines de milliers d'années, afin de s'exprimer sur la durabilité des fonctions attribuées aux colis dans les principaux contextes envisagés (entreposage, **stockage géologique**). Dans ces conditions, une simple extrapolation de résultats acquis en laboratoire n'est pas suffisante. Elle doit impérativement être complétée par la compréhension, l'identification et la hiérarchisation des différents phénomènes physico-chimiques mis en jeu au sein des colis, en tenant compte de leur interaction avec l'environnement. Les connaissances des mécanismes contrôlant l'évolution à long terme des colis sont capitalisées dans des modèles opérationnels qui permettent de prévoir le comportement à long terme des colis en regard des fonctions essentielles qui leur sont allouées. Ces fonctions comprennent le **confinement** à l'échelle séculaire en entreposage de longue durée (voir *Comment rendre compatibles entreposage et longue durée?*, p. 64), la possibilité de reprise des colis de déchets après l'entreposage de longue durée ou durant la phase **réversible** de stockage, et le confinement à l'échelle millénaire en conditions de stockage géologique.

Une méthodologie a été mise en place afin d'assurer la rigueur scientifique des prévisions de comportement à long terme. Cette démarche combine *expérimentation* (irradiations externes ou étude de matériaux **dopés**, **lixiviation** en solutions aqueuses ou en présence de divers matériaux d'environnement, recours à de nombreuses techniques d'analyses fines du solide) et **modélisation** (de la **dynamique moléculaire** aux modèles plus intégrés décrivant l'évolution d'un colis dans un stockage), encadré 1. En outre, elle comporte un volet d'études sur des analogues archéologiques ou géologiques, comme par exemple les verres volcaniques ou les éléments retrouvés dans les réacteurs naturels d'Oklo au Gabon. La caractérisation de ces divers matériaux fournit des éléments d'appui pour la validation des modèles d'évolution à long terme (encadré 2).

Différentes conditions d'environnement sont prises en compte pour ces études : système fermé, système ouvert insaturé en eau et système ouvert saturé en eau.

Dans le cas du *système fermé*, le colis n'échange que de l'énergie avec l'extérieur, sous forme de chaleur ou de **radioactivité**. Le système peut aussi être soumis à des contraintes mécaniques externes. En revanche, il n'échange pas de matière solide ou liquide avec l'environnement extérieur. Ces conditions sont les conditions nominales de fonctionnement en entreposage. Elles sont aussi celles de la première phase d'un stockage géologique profond, tant que le **conteneur** n'est pas corrodé.

Dans le cas du *système ouvert insaturé en eau*, il y a eu dégradation du conteneur et le colis peut donc échanger de la matière avec l'extérieur (en plus des échanges d'énergie évoqués en système fermé). L'altération du colis est gouvernée par les échanges de matières avec les phases aqueuses et gazeuses à son contact. Il s'agit par exemple de conditions dégradées d'un entreposage.

Le *système ouvert saturé en eau* est un cas extrême où le conteneur a perdu toutes ses propriétés de confinement. Le système échange donc de l'énergie et de la matière avec le milieu environnant, essentiellement par altération par la phase aqueuse. Il s'agit de la situation nominale à très long terme en stockage après dégradation des différentes **barrières de confinement** et mise en contact du colis avec l'eau du site.

Les types de colis étudiés regroupent les colis de déchets cimentés, ceux de boues bitumées, ceux de déchets vitrifiés, ceux de combustibles usés et les colis standard de déchets compactés (CSD-C), voir encadré A, **Que sont les déchets radioactifs?**, p. 16.

Les résultats acquis à l'issue de la loi de 1991

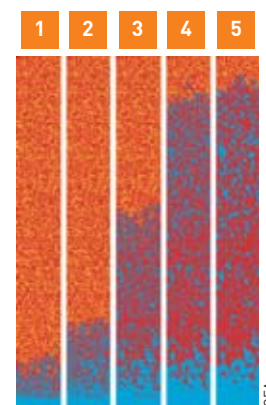
Le cadre de la loi de 1991 (voir l'encadré 2 de *Les recherches pour la gestion des déchets radioactifs : un processus de progrès continu*, p. 4) a été l'occasion d'effectuer une synthèse de toutes les connaissances disponibles sur le comportement à long terme des colis, et de les compléter afin de fournir des modèles opérationnels. Ces derniers sont des outils simples, robustes et conservatifs sur lesquels se sont appuyés les calculs de "termes sources" colis, c'est-à-dire le relâchement des **radio-nucléides** par le colis, dans les différentes situations de stockage ou d'entreposage envisagées. Pour chaque type de colis, ces résultats ont été rassemblés dans un dossier de synthèse⁽¹⁾. Celui-ci regroupe d'une part le *Dossier de référence phénoménologique*, référentiel décrivant l'état de la connaissance scientifique sur le comportement à long terme du colis étudié et exposant notamment les fondements de la modélisation opérationnelle; d'autre part, le *Dossier opérationnel*, présentant et justifiant la modélisation opérationnelle du colis étudié dans les diverses conditions génériques susceptibles d'être rencontrées par les colis au cours de leur évolution.

Des modèles opérationnels simples, robustes et conservatifs

Les modèles opérationnels ne prétendent pas prévoir le comportement *exact* des colis sur des durées extrêmement longues, pouvant atteindre le million d'années, car cela conduit à effectuer des extrapolations sur des durées sans commune mesure avec celles accessibles par l'expérience. Ils ne reproduisent ni ne prédisent toute la complexité des phénomènes mis en jeu, mais ont pour ambition de fournir une estimation majorante des termes sources. Ainsi, ils majorent les quantités de radionucléides relâchées ou minorent les durées de vie des **matrices** de confinement. Cette démarche a été appliquée systématiquement pour tous les types de colis.

Les colis de déchets MA-VL

Pour les *déchets cimentés*, en système fermé ou ouvert insaturé en eau, le principal risque à prendre en compte est la fissuration du béton, du fait de son évolution physico-chimique. Ce risque peut être réduit par une **formulation** de béton et un matériau de fibre ou d'armature adaptés. En système ouvert saturé en eau, le phénomène majeur affectant le comportement des matériaux cimentaires est la dégradation chimique sous eau (**hydrolyse**/décalcification) qui dépend fortement de la teneur en **ions** sulfates (SO_4^{2-}) et carbonates (CO_3^{2-}). Différents modèles ont été développés pour traduire le couplage entre la dégradation chimique du matériau, la migration des radionucléides au sein du matériau et la résistance mécanique du colis. Ces modèles permettent, entre autres, de prédire



Modélisation Monte-Carlo de l'altération d'un verre nucléaire simplifié en fonction du temps.
 1 : $t = 25\ 000\ \text{s}$;
 2 : $t = 50\ 000\ \text{s}$;
 3 : $t = 125\ 000\ \text{s}$;
 4 : $t = 250\ 000\ \text{s}$;
 5 : $t = 450\ 000\ \text{s}$.

(1) http://www.cea.fr/fr/sciences/dechets_radioactifs/



Comprendre le passé pour prédire le futur

2



Un verre volcanique (à gauche) peut être considéré comme un analogue naturel du verre nucléaire de type R7T7 (à droite).

CEA



Le produit d'altération des verres basaltiques, la palagonite, est un analogue du gel d'altération des verres nucléaires borosilicatés.

Muséum national d'histoire naturelle

Les recherches menées sur les analogues naturels contribuent à valider les **modèles** d'évolution à long terme. En effet, un examen approfondi de ces analogues permet de reconstituer leur histoire. Le scientifique connaît alors le résultat de l'évolution du matériau sur de très longues durées (quelques milliers à quelques millions d'années), et il peut ainsi vérifier la cohérence de cette évolution avec les connaissances acquises en laboratoire.

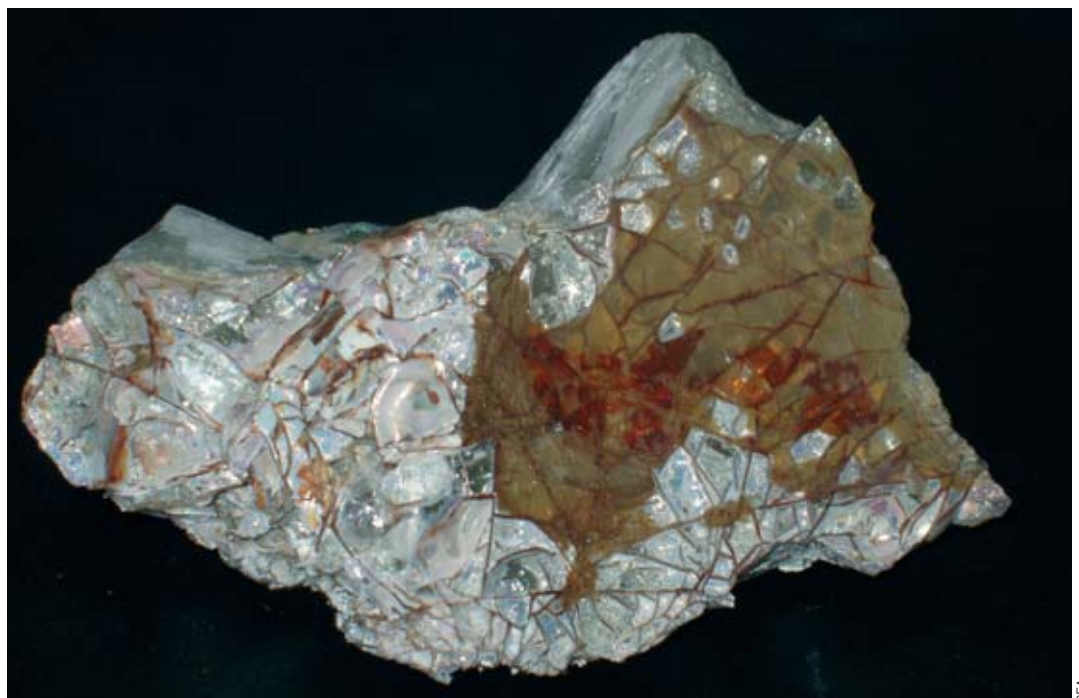
Par exemple, pour les **déchets vitrifiés**, les analogues peuvent être des verres volcaniques (avec leur produit d'altération appelé *palagonite*, analogue du gel d'altération) ou des verres archéologiques. En particulier, une étude approfondie de l'altération de verres basaltiques, dont les caractéristiques sont très proches de celles des verres nucléaires borosilicatés, a permis de vérifier que la cinétique d'altération des verres basaltiques était parfaitement comparable à celle des verres nucléaires (succession des régimes de vitesse initiale, de chute de vitesse, et enfin de vitesse résiduelle). De plus, les vitesses moyennes apparentes d'altération des verres basaltiques sur plusieurs millions d'années – obtenues en divisant l'épaisseur altérée (mesurée au microscope) par l'âge de l'échantillon tiré des données géologiques – sont proches de la vitesse résiduelle d'altération mesurée en laboratoire.

Toujours dans le domaine des analogues, l'étude de blocs de verres archéologiques ayant séjourné près de 2 000 ans au fond de la Méditerranée renseigne sur l'influence de la fracturation des verres : non seulement l'existence même de ces blocs démontre qu'un bloc de verre industriel fracturé est capable de résister sur des durées millénaires à des conditions très agressives (renouvellement permanent d'eau de mer), mais également que les fissures des blocs peuvent se colmater au cours du temps.

l'évolution du confinement des éléments radioactifs dans le cas de l'altération externe d'un conteneur en béton par de l'eau.

En ce qui concerne les *colis de boues bitumées*, deux phénomènes principaux peuvent affecter significativement leur évolution à long terme : le gonflement de la matrice et le relâchement des radionucléides dû à l'altération par l'eau (en système ouvert saturé en eau).

Le premier phénomène est provoqué par la production de gaz de **radiolyse**, qui devient négligeable après 1 000 ans, d'après les résultats du modèle opérationnel Jacob2. Le second résulte du couplage de différents phénomènes à la fois chimiques, comme la reprise d'eau par les sels solubles, et hydrodynamiques, comme la diffusion de l'eau dans la matrice bitume. Le modèle opérationnel Colonbo s'applique, dans des conditions



Analogue archéologique ayant séjourné près de 2 000 ans au fond de la Méditerranée. Son étude fournit des renseignements sur l'influence de la fracturation des verres (voir l'encadré 2).

CEA

représentatives du stockage profond, aux colis produits et à produire par les usines de La Hague, ainsi qu'à une grande partie des colis élaborés par les stations de traitement des effluents de Marcoule et Saclay. Il prédit un taux de relâchement de 90 % du stock de radionucléides initial après 2 millions d'années.

Enfin, le modèle opérationnel développé pour les *colis standard de déchets compactés* est basé sur la localisation de l'inventaire radiologique dans les différents matériaux du colis (fines et dépôts, zircon, Zircaloy®, matériaux de structure en acier inoxydable et Inconel®) auxquels est associée une certaine performance de confinement, sauf pour les fines et dépôts et pour la zircon, dont l'inventaire radiologique est considéré comme labile, de façon majorante.

Les colis de déchets vitrifiés

Pour les déchets **vitrifiés**, l'évolution en système fermé ou ouvert insaturé en eau, sous l'effet de l'**auto-irradiation** ou de la thermique, n'induit pas de conséquences notables en termes de relâchement de radionucléides sur le long terme. Les principaux phénomènes qui peuvent affecter de façon significative le comportement à long terme se rencontrent donc uniquement en système ouvert saturé en eau. Dans ces conditions, différents régimes de vitesse sont observés (figure 1).

Le régime d'interdiffusion. L'interdiffusion consiste en un échange entre les alcalins du verre et les ions hydronium (H_3O^+) de l'eau. Elle est prépondérante aux premiers instants de l'altération mais est rapidement masquée par l'hydrolyse du réseau vitreux (en quelques heures à quelques jours).

Le régime de vitesse initiale. Gouverné par l'hydrolyse du réseau vitreux (rupture des liaisons chimiques Si-O-Si), ce régime correspond à la vitesse maximale qui peut être observée. La valeur de cette vitesse ne dépend au premier ordre que de la composition du verre, du **pH** et de la température. Ce régime se maintient tant qu'un gel protecteur ne se forme pas.

Le régime de chute de vitesse. La recondensation *in situ* de certaines espèces hydrolysées conduit à la transformation locale du verre en un matériau **amorphe** appelé **gel**. Ce phénomène est systématiquement observé lors de l'altération des verres nucléaires. Majoritairement composé de silice, le gel forme une barrière diffusive entre le verre sain et la solution, ralentissant ainsi fortement la vitesse d'altération. L'évolution du gel au cours du temps a été étudiée en laboratoire, ce qui a permis de démontrer que dans un système confiné tel qu'un stockage, il est possible non seulement de garantir la pérennité du gel mais aussi de prédire un renforcement de son pouvoir protecteur au cours du temps. Des résultats de modélisation ont établi qu'en conditions de stockage, la durée du régime de chute de vitesse est relativement courte (quelques années au plus) et que la quantité de verre altérée pendant cette période peut être négligée.

Le régime de vitesse résiduelle. Les vitesses mesurées dans ces conditions sont très faibles, proches des incertitudes expérimentales, de l'ordre de $6 \cdot 10^{-6} \text{ g/m}^2 \cdot \text{j}$ à 25 °C pour le **verre R7T7**, ce qui signifie qu'il faut 1 000 ans pour altérer le verre sur une épaisseur d'un **micron**. Ce régime est gouverné à la fois par des phénomènes diffusifs dans la couche d'altération et par

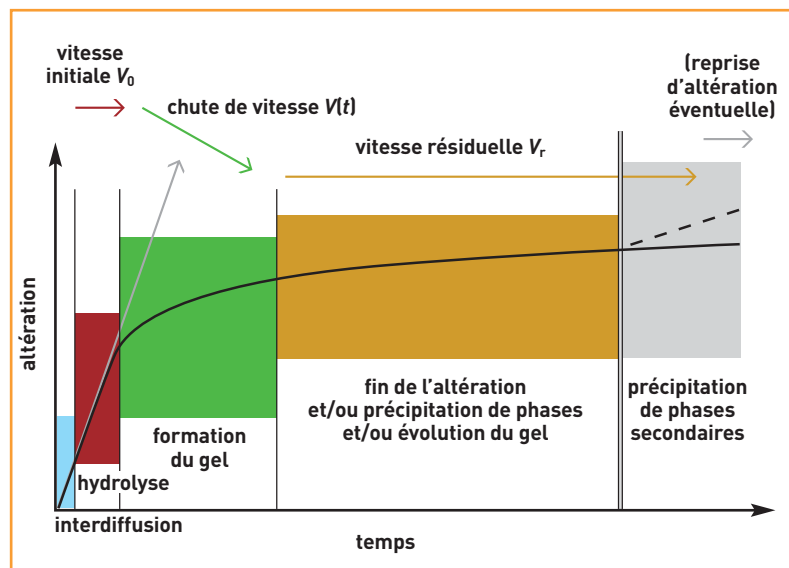


Figure 1. Représentation des différents régimes de vitesse d'altération des verres nucléaires par l'eau.

la très lente **précipitation** de phases secondaires. Le régime de vitesse résiduelle est le régime attendu à long terme en conditions de stockage.

Le régime de reprise d'altération. Il ne s'observe que dans des conditions très particulières, uniquement en conditions alcalines (pH supérieur à 10). Il est dû à la précipitation de phases secondaires de cinétique rapide. Dans ce cas, la vitesse peut être proche de la vitesse initiale.

Outre la connaissance de la cinétique d'altération du verre en fonction du temps et des conditions d'altération, la détermination du terme source verre nécessite de prendre en compte plusieurs considérations. Tout d'abord, la rétention des radionucléides dans le gel et les produits d'altération, par **adsorption** ou **précipitation**, est un phénomène majeur lors de l'altéra-

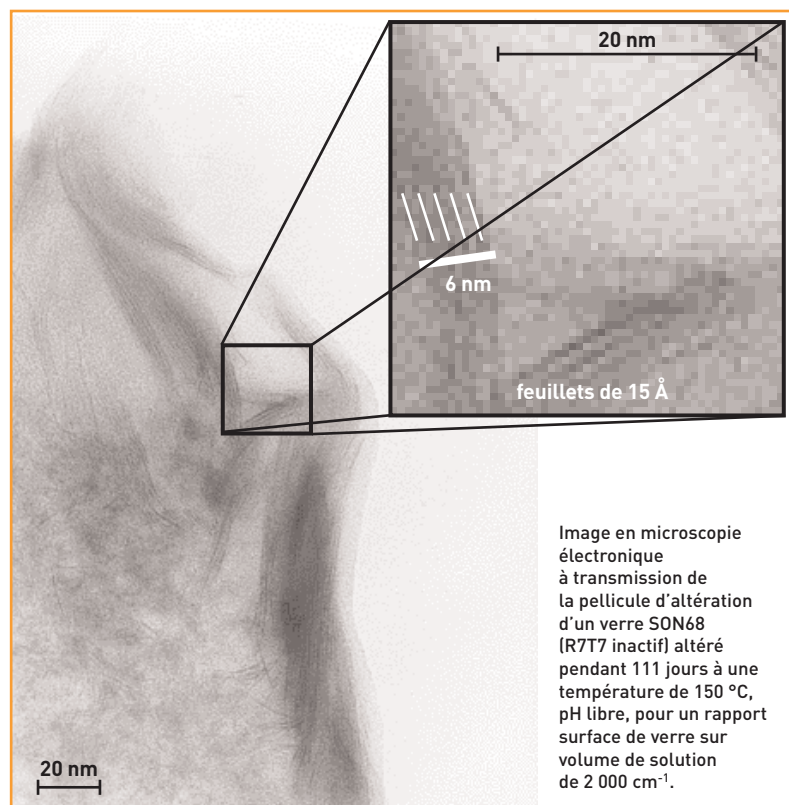


Image en microscopie électronique à transmission de la pellicule d'altération d'un verre SON68 (R7T7 inactif) altéré pendant 111 jours à une température de 150 °C, pH libre, pour un rapport surface de verre sur volume de solution de 2 000 cm^{-1} .



tion des verres nucléaires. L'amplitude de cette rétention dépend à la fois des conditions d'altération et de la nature des radionucléides. En effet, elle est très importante pour les **actinides** et les **terres rares** et moindre pour des **produits de fission** comme le césium. Ensuite, l'accessibilité de l'eau dans les fissures ou les fractures des blocs de verre joue un rôle prépondérant dans le contrôle de la vitesse d'altération. Cette caractéristique conduit à définir la notion de "surface utile", qui permet de passer de la vitesse d'altération à la quantité de verre altérée à l'échelle d'un bloc industriel. Enfin, la présence de matériaux d'environnement réactifs vis-à-vis du verre joue significativement sur le régime de vitesse. Ainsi, la **sorption** rapide des éléments constitutifs du gel sur certaines argiles ou sur les produits de corrosion des conteneurs peut maintenir des vitesses d'altération relativement élevées, proches de la vitesse initiale, tant que leur capacité réactive n'est pas saturée. Après saturation, la vitesse chute jusqu'à la valeur de la vitesse résiduelle. Deux modèles opérationnels ont été développés en s'appuyant sur ces résultats. Le modèle V_0S est le plus simple. Sa principale hypothèse est que le verre

s'altère constamment à la vitesse initiale, vitesse maximale qu'il est possible de mesurer, compte tenu des conditions de pH et de température. Il introduit de ce fait des marges considérables. Le modèle opérationnel $V_0 \rightarrow V_r$, plus réaliste, prend en compte les différents régimes de vitesse d'altération du verre. La vitesse d'altération est supposée égale à la vitesse initiale tant que le milieu environnant est réactif, puis chute rapidement jusqu'à la valeur de la vitesse résiduelle. Les calculs effectués avec ce modèle opérationnel conduisent à des durées de vie des colis vitrifiés R7T7 qui peuvent dépasser plusieurs centaines de milliers d'années selon les conditions d'altération. Cependant, ce modèle est également très conservatif, car il n'intègre pas les phénomènes de rétention des radionucléides dans les produits d'altération. La marge induite en termes de **radiotoxicité potentielle** a été évaluée à plus d'un ordre de grandeur (figure 2). Au-delà des différents résultats expérimentaux disponibles, les études d'analogues naturels du verre (verres basaltiques ou archéologiques) ou du gel (palagonite) contribuent également à la validation des modèles sur le très long terme (encadré 2).

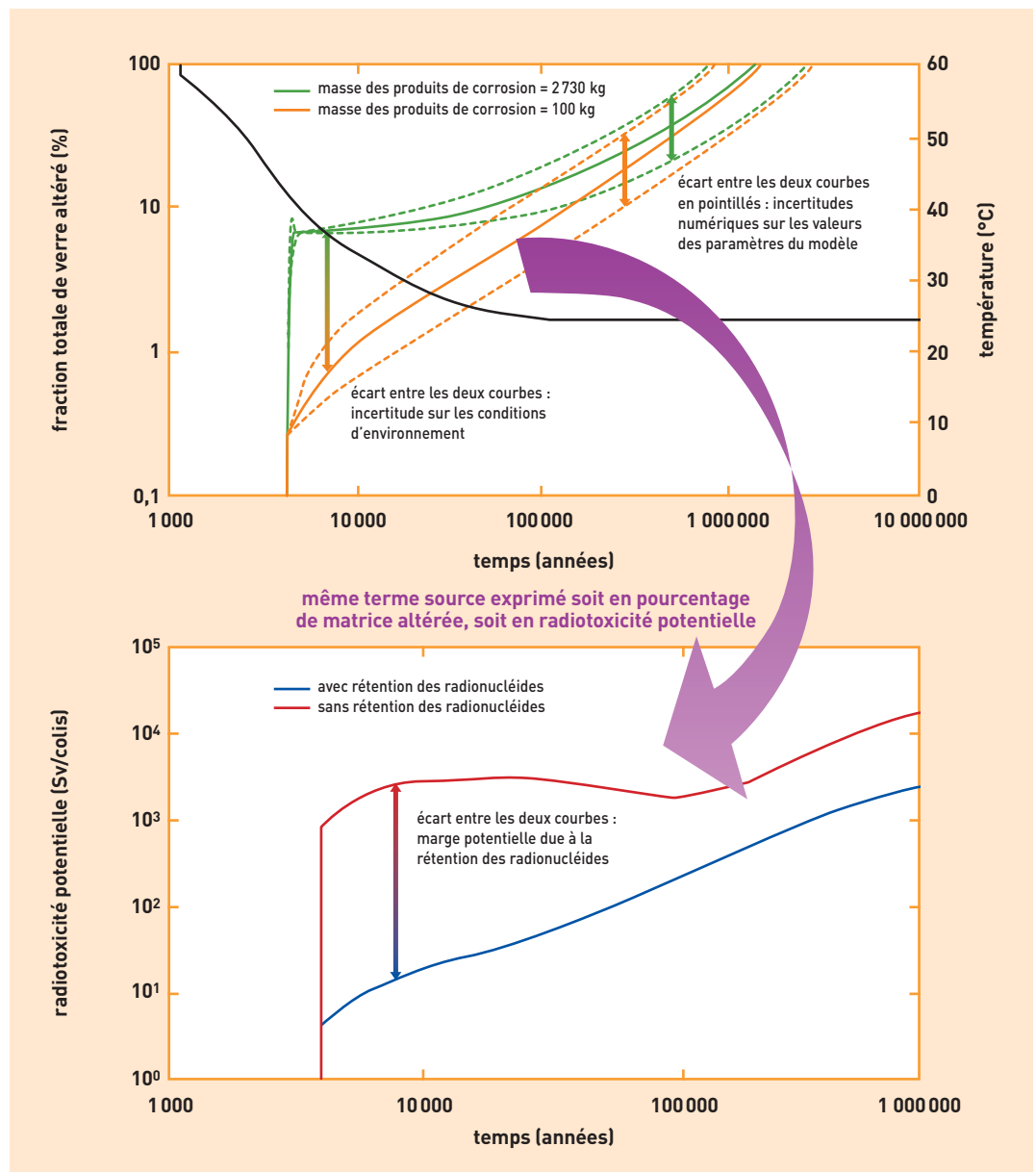


Figure 2. Calcul du terme source verre à l'aide du modèle opérationnel $V_0 \rightarrow V_r$ dans le cas d'un verre de type R7T7.

A Que sont les déchets radioactifs ?

Selon la définition de l'**Agence internationale de l'énergie atomique (AIEA)**, est considérée comme **déchet radioactif** "toute matière pour laquelle aucune utilisation n'est prévue et qui contient des **radio-nucléides** en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles dans des matériaux propres à une utilisation sans contrôle". La loi française introduit pour sa part une distinction, valable pour les déchets nucléaires comme pour les autres, entre déchet et **déchet ultime**. Dans son article L541-1, le Code de l'environnement indique que "est considéré comme un déchet tout résidu d'un processus de production, de transformation ou d'utilisation, toute substance, matériau, produit ou plus généralement tout bien meuble abandonné ou que son détenteur destine à l'abandon" et précise qu'est ultime "un déchet résultant ou non du traitement d'un déchet, qui n'est plus susceptible d'être traité dans les conditions techniques et économiques du moment, notamment par extraction de la part valorisable ou par réduction de son caractère polluant ou dangereux".

Sur le plan international, les experts de l'AIEA et de l'**Agence pour l'énergie nucléaire** de l'OCDE (**AEN**), comme ceux de la **Commission européenne**, constatent que les déchets à vie longue produits dans les pays dotés d'un programme électronucléaire sont aujourd'hui entreposés de façon sûre, tout en reconnaissant le besoin d'une solution définitive de gestion à long terme de ces déchets. À leurs yeux, l'évacuation dans des formations géologiques profondes semble, pour le moment, être le moyen le plus sûr de stocker de manière définitive ce type de déchets.

De quoi sont-ils constitués ? Quels volumes représentent-ils aujourd'hui ?

Les déchets radioactifs sont classés en différentes catégories, suivant leur niveau de radioactivité et la **période** radioactive des radionucléides qu'ils contiennent. Ils sont dits **à vie longue** lorsque leur période dépasse trente ans, **à vie courte** dans le cas contraire. La classification française comporte les catégories suivantes :

– les déchets de **très faible activité (TFA)** ; ils contiennent une quantité très faible de radionucléides, de l'ordre de 10 à 100 Bq/g (**becquerels** par gramme) qui empêche de les considérer comme des déchets conventionnels ;

– les déchets de **faible et moyenne activité à vie courte (FAMA-VC)** ; le niveau de radioactivité de ces déchets se situe en général entre quelques centaines et un million de Bq/g, dont moins de dix mille Bq/g de radionucléides à vie longue. Leur radioactivité devient comparable à la radioactivité naturelle en moins de trois cents ans. Leur production est de l'ordre de 15 000 m³ par an en France ;

– les déchets de **faible activité à vie longue (FA-VL)** ; cette catégorie est constituée des déchets "radifères" provenant de l'extraction de **terres rares** dans des minerais radioactifs et des déchets "graphites" provenant de la première génération de réacteurs ;

– les déchets de **moyenne activité à vie longue (MA-VL)**, très divers, que ce soit par leur origine ou par leur nature, dont le stock global représentait en France 45 000 m³ fin 2004. Principalement issus des structures de **combustibles usés (coques et embouts)** ou de l'exploitation et de la maintenance des installations, ils comprennent notamment des déchets conditionnés lors des opérations de traitement du combustible usé (depuis 2002, les déchets de ce type sont compactés et représentent environ 200 m³ par an), des **déchets technologiques** provenant de l'exploitation ou de la maintenance courante des usines de production ou de traitement du combustible, des réacteurs nucléaires ou encore des centres de recherche (environ 230 m³ par an) ainsi que des boues de traitement d'effluents (moins de 100 m³ par an). La plus grande partie de ces déchets dégagent peu de chaleur mais certains d'entre eux sont susceptibles de relâcher des gaz ;

– les déchets de **haute activité (HA)**, qui contiennent les **produits de fission** et les **actinides mineurs** séparés lors du traitement des combustibles usés (encadré B, p. 20) et incorporés à chaud dans une **matrice** vitreuse. Environ 120 m³ de "verre nucléaire" sont ainsi coulés chaque année. Ces déchets contiennent l'essentiel de la radioactivité (plus de 95 %) et sont, par conséquent, le siège d'un fort dégagement de chaleur qui demeure significatif à l'échelle de plusieurs siècles.

Globalement, les déchets radioactifs conditionnés en France représentent moins de 1 kg par an et par habitant. Ce kilogramme est composé à plus de 90 % de déchets FAMA-VC ne contenant que 5 % de la radioactivité totale ; 9 % de déchets MA-VL, moins de 1 % de déchets HA et pratiquement pas de déchets FA-VL.

Que seront ces déchets demain ?

Depuis 1991, l'**Andra** réalise annuellement un inventaire géographique des déchets présents sur le territoire français. En 2001, les pouvoirs publics lui ont demandé d'approfondir cet "Inventaire national" dans le triple objectif de caractérisation des stocks existants (état de leur conditionnement, traçabilité des traitements), de prospective sur leur production jusqu'en 2020 et d'information du public (voir *Un inventaire qui se projette dans l'avenir*, p. 14). L'Andra a publié cet inventaire national de référence à la fin de l'année 2004. Pour les besoins des recherches correspondant aux orientations définies dans la loi du 30 décembre 1991 (voir *Les recherches pour la gestion des déchets radioactifs : un processus de progrès continu*, p. 4), l'Andra, en collaboration avec les producteurs de déchets, a établi un Modèle d'inventaire de dimensionnement (MID) destiné à estimer les volumes de colis de déchets à prendre en compte dans la conduite des recherches sur l'axe 2 (**stockage**). Ce modèle, qui comporte des prévisions sur la production totale des déchets radioactifs émanant du parc actuel de réacteurs pendant toute leur durée de vie, vise à regrouper les déchets en familles homogènes en termes de caractéristiques et à formuler les hypothèses les plus vraisemblables concernant les modes de conditionnement afin d'en déduire les volumes à prendre en considération pour les études. Enfin, il s'attache à donner une compatibilité devant englober les déchets de manière aussi large que possible. Le MID (qui ne doit pas être confondu avec l'inventaire national qui doit faire foi de manière détaillée des quantités réelles de déchets français) permet ainsi de réduire la variété des familles de colis à un nombre restreint d'objets représentatifs et d'identifier les marges nécessaires pour rendre la conception et l'évaluation de sûreté du stockage aussi robustes que possible vis-à-vis des évolutions potentielles des données.

Pour assurer la cohérence entre les études menées au titre de l'axe 2 et celles menées au titre de l'axe 3 (**conditionnement et entreposage de longue durée**), le CEA a adopté le MID comme donnée d'entrée. Le MID regroupe les colis de déchets par colis-types et calcule le nombre et le volume des colis de déchets HA et MA-VL selon plusieurs scénarios qui considèrent tous que les centrales nucléaires actuelles sont exploitées durant quarante ans et que leur production est stabilisée à 400 TWh par an.

Le tableau 1 donne les nombres et volumes

colis types du MID	symboles	producteurs	catégories	nombre	volume (m ³)
colis de déchets vitrifiés	CO à C2	Cogema	HA	42470	7410
colis de déchets métalliques activés	B1	EDF	MA-VL	2560	470
colis de boues bitumées	B2	CEA, Cogema	MA-VL	105010	36060
colis de déchets technologiques cimentés	B3	CEA, Cogema	MA-VL	32940	27260
colis de coques et embouts cimentés	B4	Cogema	MA-VL	1520	2730
colis de déchets de structure et technologiques compactés	B5	Cogema	MA-VL	39900	7300
colis de déchets de structure et technologiques mis en vrac en conteneur	B6	Cogema	MA-VL	10810	4580
total B				192740	78400
total général				235210	85810

Tableau 1. Quantités (nombre et volume) de colis de déchets prévues en France pour quarante ans de fonctionnement des réacteurs du parc actuel selon le Modèle d'inventaire de dimensionnement (MID) de l'Andra.

de chaque colis-type pour le scénario qui suppose la continuité de la stratégie actuelle en termes de **traitement** de combustibles usés : traitement des 79 200 **assemblages** de combustible **UOX** et entreposage des 5400 assemblages **MOX** déchargés par le parc REP actuel exploité durant quarante ans.

Sous quelles formes se présentent-ils ?

Cinq types de colis génériques (retrouvés dans le MID) sont considérés :

- les **colis de déchets cimentés**, colis de déchets MA-VL qui font appel à des matériaux à base de liant hydraulique comme matrice de conditionnement ou comme matériau de blocage, ou encore comme constituant de conteneur ;
- les **colis de boues bitumées** : colis de déchets de type FA et MA-VL dans lesquels le bitume est utilisé comme matrice de confinement pour les résidus issus du traitement de divers effluents liquides (traitement du combustible, centre de recherche, etc.) de faible et moyenne activité ;
- les **colis standard de déchets compactés (CSD-C)** : colis de type MA-VL issus du

conditionnement par compactage des déchets de structure provenant des assemblages combustibles et des déchets technologiques issus des ateliers de La Hague ;

- les **colis standard de déchets vitrifiés (CSD-V)** : colis de type HA résultant essentiellement de la **vitrification** des solutions très actives issues du traitement des combustibles usés ;

- les **colis de combustibles usés** : colis constitués des assemblages de combustibles nucléaires après leur sortie des réacteurs, et qui ne sont pas considérés en France comme des déchets.

Les seuls colis de déchets à vie longue générés significativement par la production actuelle d'électricité (encadré B) sont les colis de déchets vitrifiés et les colis standard de déchets compactés, les autres colis ayant pour leur plus grande part déjà été produits et contenant une faible part de la radioactivité totale.

Que fait-on actuellement des déchets ? Qu'en fera-t-on à long terme ?

L'objectif de la gestion à long terme des déchets radioactifs est de protéger l'homme

et son environnement contre les effets des matières les constituant et notamment contre les risques radiologiques. Il faut donc éviter toute émission ou dissémination de matières radioactives en isolant durablement les déchets de l'environnement. Cette gestion obéit aux principes suivants : produire le moins possible de déchets ; réduire autant que possible leur dangerosité ; prendre en compte les spécificités de chaque catégorie de déchets et choisir des dispositions qui minimisent les charges (de surveillance, de maintenance) pour les générations futures. Comme pour l'ensemble des activités nucléaires soumises au contrôle de l'**Autorité de sûreté nucléaire**, des règles fondamentales de sûreté (RFS) ont été édictées pour la gestion des déchets radioactifs : tri, réduction de volume, pouvoir de confinement des colis, mode d'élaboration, concentration en radionucléides. La RFS III-2-f, notamment, définit les conditions à remplir pour la conception et la démonstration de sûreté d'un stockage souterrain, et constitue donc un guide de base pour les études sur le stockage. Des solutions industrielles (voir *Des solutions industrielles pour tous les déchets de faible activité*, p.32) existent aujourd'hui pour près de 85 % (en volume) des déchets, les déchets TFA et les déchets FMA-VC. Une solution pour les déchets FA-VL est en cours d'étude par l'Andra à la demande des producteurs de déchets. Les déchets MA-VL et HA, qui contiennent des radionucléides de période radioactive très longue (parfois supérieure à plusieurs centaines de milliers d'années), sont aujourd'hui conservés dans des installations d'entreposage placées sous le contrôle de l'Autorité de sûreté nucléaire. C'est leur devenir à long terme, au-delà de cette période d'entreposage, qui est l'objet de la loi du 30 décembre 1991 (tableau 2). Pour l'ensemble de ces déchets, l'Autorité de sûreté nucléaire rédige un Plan national de gestion des déchets radioactifs afin de définir pour chacun d'entre eux une filière de gestion.

	vie courte période < 30 ans pour les principaux éléments	vie longue période > 30 ans
très faible activité (TFA)	stockage dédié de Morvilliers (ouvert depuis 2003) Capacité : 650 000 m ³	
faible activité (FA)	centre de l'Aube (ouvert depuis 1992) capacité : 1 million de m ³	stockage dédié à l'étude pour les déchets radifères (volume : 100 000 m ³) et graphites (volume : 14 000 m ³)
moyenne activité (MA)		volume estimé MID ⁽¹⁾ : 78 000 m ³
haute activité (HA)	volume estimé MID ⁽¹⁾ : 7 400 m ³	

Tableau 2. Modes de gestion à long terme actuellement pratiqués ou envisagés en France selon les catégories de déchets radioactifs. La zone orangée indique celles concernées par les recherches couvertes par la loi du 30 décembre 1991.

(1) Selon le Modèle d'inventaire de dimensionnement (MID).

B Les déchets du cycle électronucléaire

L'essentiel des **déchets radioactifs** de haute **activité (HA)** provient, en France, de l'irradiation dans les réacteurs électronucléaires de **combustibles** constitués de pastilles d'oxyde d'**uranium enrichi UOX** ou aussi, pour partie, d'oxyde mixte d'**uranium** et de **plutonium MOX**. De l'ordre de 1 200 tonnes de **combustibles usés** sont déchargées annuellement du parc des **58 réacteurs à eau sous pression (REP)** d'**EDF**, qui fournit plus de 400 **TWh** par an, soit plus des trois quarts de la consommation électrique nationale.

La composition du combustible a évolué au cours de l'irradiation en réacteur. Peu après son déchargement, le combustible est constitué en moyenne⁽¹⁾ d'environ 95 % d'uranium résiduel, 1 % de plutonium et autres **transuraniens**, à hauteur de 0,1 %, et 4 % de produits issus de la **fission**. Ces derniers présentent une radioactivité très importante, au sens où elle nécessite des précautions de gestion mobilisant des moyens industriels puissants, de l'ordre de 10^{17} **Bq** par tonne d'uranium initial (tUi), figure 1.

L'**uranium** contenu dans le combustible usé présente une composition évidemment différente de celle du combustible initial. Plus l'irradiation aura été importante, plus la consommation de noyaux **fissiles** aura été forte, et plus l'**uranium** aura donc été **appauvri** en isotope ^{235}U fissile. Les conditions d'irradiation généralement mises en œuvre dans les réacteurs du parc français, avec un temps de

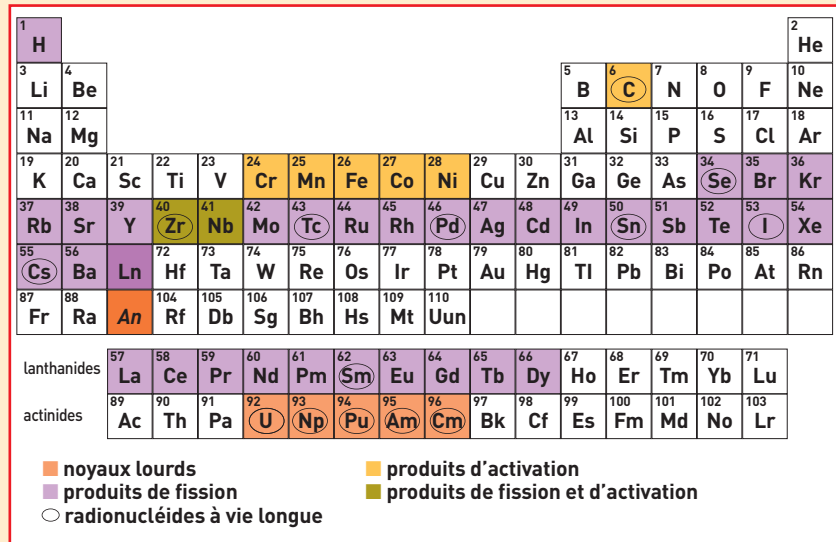


Figure 1. Principaux éléments présents dans le combustible nucléaire usé.

séjour moyen du combustible en réacteur de l'ordre de quatre années pour un **taux de combustion** proche de **50 GWj/t**, conduisent à ramener la teneur finale en ^{235}U à une valeur assez proche de celle de l'**uranium naturel** (moins de 1 %), ce qui induit que son potentiel énergétique est très voisin de celui de ce dernier. En effet, même si cet uranium reste légèrement plus riche en isotope fissile que l'uranium naturel, pour lequel la teneur en ^{235}U est de 0,7 %, il faut également mentionner la présence, en quantités plus faibles mais significatives, d'autres isotopes pénalisants au plan

neutronique ou radiologique (^{232}U , ^{236}U) absents du combustible initial (tableau 1). Le **plutonium** présent dans le combustible usé provient des processus de **captures neutroniques** et de **désintégrations** successives. Une partie du Pu disparaît par fission : ainsi, de l'ordre du tiers de l'énergie produite provient du "recyclage *in situ*" de cet élément. Ces phénomènes donnent également lieu à la formation de **noyaux lourds** présentant eux-mêmes, ou par l'intermédiaire de leurs produits de filiation, une **période radioactive** longue. Ce sont les éléments de la famille des **actinides**, et parmi eux essentiellement le plutonium (^{238}Pu à ^{242}Pu , les isotopes impairs formés ayant pour partie eux aussi subi des fissions durant l'irradiation), mais également

(1) Il convient de considérer ces valeurs comme indicatives. Elles permettent de situer les ordres de grandeur pour les combustibles à oxyde d'uranium enrichi issus de la principale filière nucléaire française actuelle, mais dépendent de divers paramètres tels que la composition du combustible initial et les conditions d'irradiation, notamment sa durée.

élément	isotope	période (années)	UOX 33 GWj/tUi (E ^{235}U : 3,5 %)		UOX 45 GWj/tUi (E ^{235}U : 3,7 %)		UOX 60 GWj/tUi (E ^{235}U : 4,5 %)		MOX 45 GWj/tmli (Ei Pu: 8,65 %)	
			teneur isotopique (%)	quantité (g/tUi)	teneur isotopique (%)	quantité (g/tUi)	teneur isotopique (%)	quantité (g/tUi)	teneur isotopique (%)	quantité (g/tmli)
U	234	246 000	0,02	222	0,02	206	0,02	229	0,02	112
	235	$7,04 \cdot 10^8$	1,05	10 300	0,74	6 870	0,62	5 870	0,13	1 070
	236	$2,34 \cdot 10^7$	0,43	4 224	0,54	4 950	0,66	6 240	0,05	255
	238	$4,47 \cdot 10^9$	98,4	941 000	98,7	929 000	98,7	911 000	99,8	886 000
Pu	238	87,7	1,8	166	2,9	334	4,5	590	3,9	2 390
	239	24 100	58,3	5 680	52,1	5 900	48,9	6 360	37,7	23 100
	240	6 560	22,7	2 214	24,3	2 760	24,5	3 180	32	19 600
	241	14,4	12,2	1 187	12,9	1 460	12,6	1 640	14,5	8 920
	242	$3,75 \cdot 10^5$	5,0	490	7,8	884	9,5	1 230	11,9	7 300

Tableau 1. Inventaire en actinides majeurs de combustibles usés UOX et MOX après trois ans de refroidissement, pour divers taux d'enrichissement et de combustion. Le taux de combustion et la quantité sont exprimés par tonne d'uranium initial (tUi) pour les UOX et par tonne de métal lourd initial (tmli) pour le MOX.

le neptunium (Np), l'américium (Am) et le curium (Cm), dénommés **actinides mineurs (AM)** en raison de leur abondance moindre que celle de l'U et du Pu, qualifiés d'**actinides majeurs**.

Les **phénomènes d'activation** de noyaux d'éléments non radioactifs concernent surtout les matériaux de structure, c'est-à-dire les matériaux des tubes, grilles, plaques et embouts qui assurent la cohésion mécanique du combustible nucléaire. Ils conduisent notamment, pour ce qui est du combustible, à la formation de **carbone 14** (^{14}C), de période 5 730 ans, en quantités toutefois très limitées, largement inférieures au gramme par tonne d'uranium initial (g/tUi) dans les conditions usuelles.

Ce sont les **produits issus de la fission** de l'uranium 235 initial mais aussi de celle du Pu formé (isotopes 239 et 241), appelés **produits de fission (PF)**, qui constituent la source essentielle de la radioactivité du combustible utilisé peu après son déchargement. Plus de 300 **radionucléides**, dont les deux tiers auront toutefois disparu par décroissance radioactive dans les quelques années qui suivent l'irradiation, sont dénombrés. Ces radionucléides sont répartis selon une quarantaine d'éléments de la classification périodique, du germanium (^{32}Ge) au dysprosium (^{64}Dy), avec la présence de **tritium issu de la fission** en trois fragments de ^{235}U (fission ternaire). Ils sont donc caractérisés par



Après déchargement, les combustibles usés sont entreposés dans des piscines de refroidissement pour que leur radioactivité diminue de façon significative. Ici, piscine d'entreposage de l'usine de traitement des combustibles usés d'Areva à La Hague.

famille	UOX 33 GWj/tUi (E ^{235}U : 3,5 %)	UOX 45 GWj/tUi (E ^{235}U : 3,7 %)	UOX 60 GWj/tUi (E ^{235}U : 4,5 %)	MOX 45 GWj/tmli (Ei Pu : 8,65 %)
	quantité (kg/tUi)	quantité (kg/tUi)	quantité (kg/tUi)	quantité (kg/tmli)
gaz rares (Kr, Xe)	5,6	7,7	10,3	7
alcalins (Cs, Rb)	3	4	5,2	4,5
alcalino-terreux (Sr, Ba)	2,4	3,3	4,5	2,6
Y et lanthanides	10,2	13,8	18,3	12,4
zirconium	3,6	4,8	6,3	3,3
chalcogènes (Se, Te)	0,5	0,7	1	0,8
molybdène	3,3	4,5	6	4,1
halogènes (I, Br)	0,2	0,3	0,4	0,4
technétium	0,8	1,1	1,4	1,1
Ru, Rh, Pd	3,9	5,7	7,7	8,3
divers : Ag, Cd, Sn, Sb...	0,1	0,2	0,3	0,6

Tableau 2. Répartition selon la famille chimique des produits de fission de combustibles usés UOX et MOX après trois ans de refroidissement, pour divers taux d'enrichissement et de combustion.

une grande diversité : diversité des propriétés radioactives, avec des nucléides très radioactifs à durée de vie très courte et, à l'opposé, d'autres dont la période radioactive se mesure en millions d'années, et diversité des propriétés chimiques, telle qu'elle apparaît lorsqu'est analysée, pour les combustibles de "référence" des REP du parc français, la répartition des PF générés selon les familles de la classification périodique (tableau 2). Ces PF ainsi que les actinides produits sont, pour la plupart, présents sous la forme d'oxydes inclus dans l'oxyde d'uranium initial, encore très majoritaire. Parmi les exceptions notables, il convient de citer l'iode (I), présent sous la forme d'**iodure de césium**, les gaz rares, tels le krypton (Kr) et le xénon (Xe), ou certains **métaux nobles**, comme le ruthénium (Ru), le rhodium (Rh) et le palladium (Pd), susceptibles de créer des inclusions métalliques au sein de la matrice oxyde.

Le Pu est aujourd'hui **recyclé** sous forme de combustible MOX dans une partie du parc (une vingtaine de réacteurs à présent). L'U résiduel peut être pour sa part ré-**enrichi** (et recyclé en lieu et place de l'uranium minier). L'intensité de ce recyclage dépend du cours de l'uranium naturel, dont la hausse récente devrait conduire à augmenter le taux actuel (de l'ordre du tiers est recyclé en ce moment).

Ce recyclage de l'U et du Pu est à la base de la stratégie de **traitement** aujourd'hui appliquée en France à la majeure partie des combustibles usés (actuellement, les deux

tiers). Pour les quelque 500 kg d'U initialement contenu dans chaque élément combustible et après la séparation de 475 kg d'U résiduel et d'environ 5 kg de Pu, ces **déchets "ultimes"** représentent moins de 20 kg de PF et moins de 500 grammes d'AM. Cette voie de gestion des déchets (ou **cycle fermé**), qui consiste à traiter aujourd'hui les combustibles usés pour séparer matières encore valorisables et déchets ultimes, se distingue des stratégies dans lesquelles le combustible usé est gardé en l'état, que ce soit dans une logique d'attente (choix différé de mode de gestion à long terme) ou dans une logique dite du **cycle ouvert**, où les combustibles usés sont considérés comme des déchets et sont destinés à être **conditionnés** tels quels dans des **conteneurs et stockés** en l'état.

Dans le cycle électronucléaire tel qu'il est pratiqué en France, les déchets se répartissent en deux, en fonction de leur origine. Les déchets directement issus du combustible usé sont subdivisés en **actinides mineurs et produits de fission** d'une part, et **déchets de structure**, renfermant les **coques** (tranches de gaines métalliques ayant contenu le combustible des REP) et les **embouts** (pièces qui constituent les extrémités des assemblages combustibles de ces mêmes REP), d'autre part. Le procédé de traitement des combustibles usés, mis en œuvre pour extraire l'U et le Pu, génère des **déchets technologiques** (déchets d'exploitation comme les pièces de rechange, les gants de protection...) et des **effluents liquides**.

C Qu'y a-t-il entre le déchet et l'environnement ?

Les **déchets radioactifs** solides ou liquides bruts font l'objet, après caractérisation (détermination de leur composition chimique, radiologique et de leurs propriétés physico-chimiques) d'un **conditionnement**, terme qui recouvre l'ensemble des opérations consistant à mettre ces déchets (ou des **assemblages combustibles usés**) sous une forme convenant à leur transport, leur **entreposage** et leur **stockage** (voir l'encadré D, p. 50). L'objectif est de mettre les déchets radioactifs sous une forme solide physiquement et chimiquement stable et d'assurer le **confinement** efficace et durable des **radionucléides** qu'ils contiennent.

Pour cela, deux opérations complémentaires sont mises en œuvre. En règle générale, un matériau immobilise, soit par enrobage ou incorporation homogène (déchets liquides, déchets pulvérulents, boues), soit par blocage (déchets solides) des déchets au sein d'une **matrice** dont la nature et les performances dépendent du type de déchets (ciment pour les boues, les concentrats d'évaporation et les cendres d'incinération, bitume pour l'**enrobage** de boues et de concentrats d'évaporation résultant du traitement des effluents liquides ou matrice vitreuse liant intimement les nucléides au réseau vitreux pour les solutions de **produits de fission** et d'**ac-**



A. Gomin/CEA

Coupe d'un puits d'entreposage expérimental d'un conteneur de combustible usé (le bas de l'assemblage est visible en haut à droite) dans la galerie Galatée du Cecer (Centre d'expertise sur le conditionnement et l'entreposage des matières radioactives) au centre CEA de Marcoule, mettant en évidence la juxtaposition d'enveloppes.

tinides mineurs). Cette matrice contribue à la fonction de confinement. Les déchets ainsi conditionnés sont placés dans un **conteneur** étanche (cylindrique ou parallélépipédique) formé d'une ou plusieurs enveloppes. L'ensemble est appelé **colis**. Il est également possible que les déchets soient compactés et bloqués mécaniquement dans une **enveloppe**, l'ensemble constituant le colis.

Dans l'état où ils sont issus de la produc-

tion industrielle, ils sont qualifiés de **colis primaires**, le conteneur primaire étant l'enveloppe, en ciment ou métallique, dans laquelle les déchets conditionnés sont finalement placés afin de permettre leur manutention. Le conteneur peut jouer le rôle de première **barrière** de confinement, la répartition des fonctions entre la matrice et le conteneur est déterminée selon la nature des déchets. C'est ainsi que l'ensemble formé par le regroupement, dans

C (suite)

un conteneur, de plusieurs colis primaires **MA-VL**, peut assurer le confinement de la radioactivité de ce type de déchets. Si une phase d'**entreposage de longue durée** s'avère nécessaire, au-delà de la phase d'entreposage industriel chez les producteurs, les colis primaires de déchets doivent pouvoir être éventuellement repris : il faut donc disposer d'un conteneur primaire durable dans de telles conditions pour tous les types de déchets.

Dans ce cas et pour les assemblages de combustibles usés dont on pourrait un jour décider qu'ils soient destinés à un tel entreposage de longue durée, voire au stockage, il n'est pas possible de démontrer, sur des durées séculaires, l'intégrité des gaines contenant le combustible et qui constituent la première barrière de confinement en phase d'utilisation en réacteur. Leur mise en **étui** individuel et étanche est donc envisagée, cet étui en acier inoxydable étant compatible avec les différentes étapes de gestion ultérieures imaginables : traitement, nouvel entreposage ou stockage. Le placement en conteneur étanche de ces étuis assure une deuxième barrière de confinement, comme c'est le cas pour les colis de déchets de **haute activité**.

En conditions de stockage ou d'entreposage, les colis de déchets seront soumis à diverses agressions internes et exter-

nes. Tout d'abord, la décroissance **radioactive** des radionucléides se poursuit dans le colis (phénomène d'**auto-irradiation**). L'émission des rayonnements s'accompagne d'une production de chaleur. Par exemple, dans les verres de confinement des déchets de haute activité, les principales sources d'irradiation résultent des **désintégrations alpha** issues des actinides mineurs, des **désintégrations bêta** provenant des produits de fission et des transitions gamma. Les désintégrations alpha caractérisées par la création d'un **noyau de recul** et l'émission d'une particule qui, en fin de parcours, génère un atome d'hélium, provoquent la majorité des déplacements atomiques. En particulier, les noyaux de recul, qui déposent une énergie importante sur une distance courte, conduisent à des déplacements atomiques en cascade, rompant ainsi un grand nombre de liaisons chimiques. C'est donc la principale cause de dommage potentiel à long terme. Les matrices doivent alors être stables thermiquement et résistantes aux dégâts d'irradiation.

Les colis de déchets stockés seront également soumis à l'action de l'eau (**lixiviation**). Les enveloppes des conteneurs peuvent présenter une certaine résistance aux phénomènes de corrosion (les **surconteneurs** des verres peuvent ainsi retarder

de quelque 4 000 ans l'arrivée de l'eau) et les matrices de confinement faire preuve d'une durabilité chimique élevée.

Entre les conteneurs et la barrière ultime que constitue, dans une installation de stockage profond de déchets radioactifs, le milieu géologique lui-même, peuvent de plus être interposées, outre un éventuel surconteneur, d'autres barrières dites **barrières ouvragées** pour le remplissage et le scellement. Inutiles dans les formations argileuses pour le remplissage, elles seraient capables dans d'autres milieux (granite) de ralentir encore tout flux de radionucléides vers la **géosphère**, malgré une dégradation des barrières précédentes.



Démonstrateurs technologiques de colis MA-VL pour boues bitumées.

D De l'entreposage au stockage

La raison d'être de l'**entreposage** et du **stockage** des déchets nucléaires est d'assurer leur confinement à long terme de la **radioactivité**, c'est-à-dire de maintenir les **radionucléides** à l'intérieur d'un espace déterminé, à l'écart de l'homme et de l'environnement, aussi longtemps que nécessaire, de telle sorte que l'éventuel retour dans la **biosphère** d'infimes quantités de radionucléides ne puisse avoir d'impact sanitaire ou environnemental inacceptable. Selon les termes de la Convention commune sur la sûreté de la gestion du **combustible** usé et sur la sûreté de la gestion des déchets radioactifs signée le 5 septembre 1997, l'entreposage "s'entend de la détention de combustible usé ou de déchets radioactifs dans une installation qui en assure le confinement, dans l'intention de les récupérer". Il est donc, par définition, temporaire, représentant une solution d'attente, même si celle-ci peut être de très longue durée (quelques dizaines à quelques centaines d'années), alors qu'un stockage peut être définitif.

Pratiqué depuis les débuts du nucléaire, l'entreposage industriel met les combustibles usés en attente de traitement et les déchets conditionnés de **haute activité (HA)** ou de **moyenne activité à vie longue (MA-VL)** en condition sûre, en

attente d'un mode de gestion à long terme de ces déchets. La reprise des colis entreposés est prévue à l'issue d'une période de durée limitée (années ou dizaines d'années).



Concept étudié par le CEA de conteneur commun pour l'entreposage de longue durée et le stockage de déchets de moyenne activité à vie longue.

L'**entreposage de longue durée (ELD)** se conçoit notamment dans le cas d'une mise en œuvre différée dans le temps du stockage ou des réacteurs devant effectuer le **recyclage/transmutation** ou simplement pour tirer profit de la

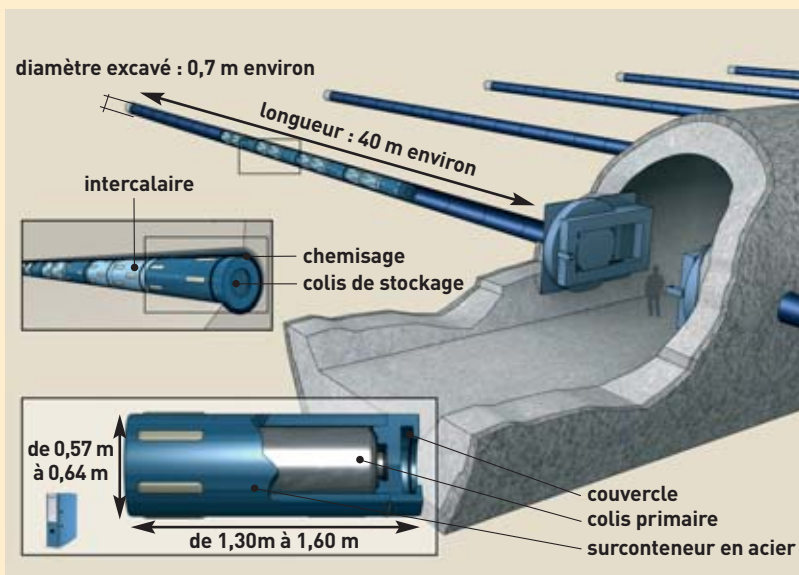
décroissance naturelle de la radioactivité (et donc de l'émission de chaleur des déchets de haute activité) avant une mise en **stockage géologique**. La longue durée s'entend sur des durées pouvant aller

jusqu'à trois cents ans. L'entrepôt de longue durée peut se trouver en **surface** ou en **subsurface**.

Dans le premier cas, il sera, par exemple, protégé par une structure en béton renforcée. Dans le second, il sera situé à une profondeur de quelques dizaines de mètres, protégé par un milieu naturel (par exemple, situé à flanc de colline) et sa roche d'accueil. Quelle que soit la stratégie de gestion choisie, il sera nécessaire de protéger la biosphère des déchets résiduels ultimes. La nature des radioéléments que ces derniers contiennent nécessite une solution capable d'assurer leur confinement durant plusieurs dizaines de milliers d'années pour les déchets à vie longue, voire plus. À ces échelles de temps, la stabilité sociétale est une incertitude majeure à prendre en compte. C'est pourquoi le stockage en couches

géologiques profondes (typiquement 500 m) constitue une solution de référence, dans la mesure où elle permet intrinsèquement la mise en œuvre d'une solution technique plus passive, s'accommodant sans risque accru d'un manque de surveillance et permettant ainsi de palier une éventuelle perte de mémoire de la société. Le milieu géologique d'un tel stockage constitue donc une barrière supplémentaire tout à fait essentielle qui n'existe pas dans le cas de l'entreposage.

Un stockage peut être conçu pour être **réversible** sur une certaine période. Le concept de réversibilité exige de garantir la possibilité, pour diverses raisons, d'accéder aux **colis**, voire de les retirer de l'installation, et ce, pendant un certain temps ou de choisir la fermeture définitive de l'installation de stockage. La réversibilité peut se concevoir comme une suite d'étapes successives présentant des "niveaux de réversibilité" décroissants. Schématiquement, chaque étape consiste à effectuer une opération technique supplémentaire vers la fermeture finale qui rendra la reprise des colis plus difficile qu'à l'étape précédente, en fonction de critères bien définis.



Concept de stockage, conçu par l'Andra, de colis standard de déchets vitrifiés dans des galeries horizontales illustrant en particulier les différentes enveloppes des colis et certaines caractéristiques liées à la réversibilité éventuelle du stockage.

E Qu'est-ce que la transmutation ?

La **transmutation** est la transformation d'un noyau en un autre par une réaction nucléaire induite par des particules avec lesquelles on le bombarde. Appliquée au traitement des déchets nucléaires, elle consiste à utiliser ce type de réactions pour transformer des **isotopes radioactifs à vie longue** en isotopes à vie nettement plus courte ou même stables, en vue de réduire l'**inventaire radiotoxique** à long terme. Il est en théorie possible d'utiliser comme projectiles des **photons**, des **protons** ou des **neutrons**. Dans le premier cas, il s'agit d'obtenir par *Bremsstrahlung*⁽¹⁾ des photons qui peuvent donner lieu à des réactions $[\gamma, xn]$ en bombardant une cible avec un faisceau d'électrons fournis par un accélérateur. Sous l'effet du rayonnement gamma incident, x neutrons sont éjectés du noyau. Appliquées à des corps trop riches en neutrons et de ce fait instables comme certains **produits de fission** (strontium 90, césium 137...), ces réactions aboutissent en général à des corps stables. Mais compte tenu de leur rendement très faible et du très haut niveau de courant d'électrons nécessaire, cette voie est jugée non viable. Dans la deuxième formule, l'interaction proton-noyau induit une réaction complexe, appelée **spallation**, qui conduit à la fragmentation du noyau et à la libération d'un certain nombre de particules dont des

neutrons de haute énergie. La transmutation par interaction *directe* des protons n'est pas économiquement rentable, car elle nécessite pour surmonter la barrière coulombienne⁽²⁾ des protons de très haute énergie (1 à 2 **GeV**) dont l'énergie de production est supérieure à celle récupérée lors du processus qui a conduit à la génération du déchet. En revanche, la transmutation *indirecte*, en utilisant les neutrons de haute énergie (produits au nombre d'une trentaine environ, suivant la nature de la cible et l'énergie du proton incident) permet d'améliorer très sensiblement les performances. C'est cette voie qui est à la base des concepts des **réacteurs dits hybrides** couplant un cœur **sous-critique** et un accélérateur de protons de haute intensité (encadré F, *Qu'est-ce qu'un ADS ?*, p. 103). Troisième particule utilisable, donc, le neutron. De par l'absence de charge électrique, c'est de loin la particule qui satisfait au mieux les critères recherchés. Il est "naturellement" disponible en grande quantité dans les réacteurs nucléaires où il est utilisé pour générer des réactions de **fission** et produire ainsi de l'énergie et où d'ailleurs il induit en permanence des transmutations, la plupart non recherchées (figure). La meilleure voie de **recyclage** des déchets serait donc de les réinjecter dans l'installation qui peu ou prou les a créés...

Lorsqu'un neutron entre en collision avec un noyau, il peut rebondir sur le noyau ou bien pénétrer dans celui-ci. Dans ce second cas, le noyau, en absorbant le neutron, acquiert un excès d'énergie qu'il va libérer de différentes manières :

- en éjectant des particules (un neutron par exemple) et en émettant éventuellement un rayonnement ;
- en émettant seulement un rayonnement ; on parle dans ce cas de **réaction de capture** puisque le neutron reste captif du noyau ;
- en se scindant en deux noyaux de taille plus ou moins égale et en émettant simultanément deux à trois neutrons ; on parle ici de **réaction de fission** durant laquelle une importante quantité d'énergie est délivrée.

La transmutation d'un **radionucléide** peut se réaliser soit par capture d'un neutron, soit par fission. Les **actinides mineurs**, noyaux de grande taille (**noyaux lourds**), peuvent subir à la fois des réactions de fission et de capture. Par fission, ils sont transformés en radionucléides majoritairement à vie courte, voire en noyaux stables. Les noyaux provenant d'une fission (appelés produits de fission), de plus petite taille, ne sont sujets qu'aux réactions de capture et subissent, en moyenne, quatre décroissances radioactives, de **période** n'excédant pas généralement quelques années, avant de devenir stables. Par capture, ils sont transformés en d'autres radionucléides, souvent à vie longue, qui se transforment eux-mêmes par **désintégration** naturelle, mais aussi par capture et fission.

(1) En allemand : rayonnement de freinage. Rayonnement photonique de haute énergie généré par des particules (électrons) accélérées (ou décélérées) qui décrivent une trajectoire circulaire en émettant tangentiellement des photons de freinage dont les plus énergétiques sont préférentiellement émis dans l'axe du faisceau d'électrons.

(2) Force de répulsion qui s'oppose au rapprochement de charges électriques de même signe.

E (suite)

La probabilité qu'un neutron a de provoquer une réaction de capture ou de fission est évaluée à partir respectivement de la **section efficace** de capture et de la section efficace de fission. Les sections efficaces sont fonction de la nature du noyau (elle varie énormément d'un noyau à l'autre et, plus encore, d'un isotope à l'autre pour un même noyau) et de l'énergie du neutron.

Pour un neutron d'énergie inférieure à 1 eV (domaine des **neutrons lents** ou **thermiques**), la section efficace de capture est

prédominante ; la capture est environ cent fois plus probable que la fission. C'est également le cas pour une énergie allant de 1 eV à 1 MeV (domaine des **neutrons épithermiques** où captures ou fissions se produisent à des niveaux précis d'énergies). Au-delà de 1 MeV (domaine des neutrons rapides), les fissions deviennent plus probables que les captures.

Deux filières de réacteurs sont possibles selon le domaine d'énergie des neutrons dans lequel la majorité des réactions de fission se produit : les réacteurs à neutrons

thermiques et les réacteurs à **neutrons rapides**. La filière des réacteurs à neutrons thermiques est celle qui équipe la France avec près de soixante réacteurs à eau sous pression. Dans un réacteur à neutrons thermiques, les neutrons produits par fission sont ralentis (modérés) par des chocs contre des noyaux légers constitutifs de matériaux appelés **modérateurs**. Grâce au modérateur (eau ordinaire pour les réacteurs à eau sous pression), la vitesse des neutrons diminue jusqu'à atteindre quelques kilomètres par seconde, valeur pour laquelle les neutrons se trouvent en équilibre thermique avec le milieu. Les sections efficaces de fission de ^{235}U et ^{239}Pu induites par des neutrons thermiques étant très élevées, une concentration de quelques pour cent de ces noyaux **fissiles** est suffisante pour entretenir la cascade de fissions. Le flux d'un réacteur à neutrons thermiques est de l'ordre de 10^{18} neutrons par mètre carré et par seconde.

Dans un réacteur à neutrons rapides, tel que Phénix, les neutrons issus des fissions produisent directement, sans être ralentis, de nouvelles fissions. Il n'y a pas de modérateur dans ce cas. Comme dans ce domaine d'énergie les sections efficaces sont faibles, il faut utiliser un combustible riche en radionucléides fissiles (jusqu'à 20% d'**uranium 235** ou de **plutonium 239**) pour que le **facteur de multiplication** soit égal à 1. Le flux d'un réacteur à neutrons rapides est dix fois plus élevé (de l'ordre de 10^{19} neutrons par mètre carré et par seconde) que celui d'un réacteur à neutrons thermiques.

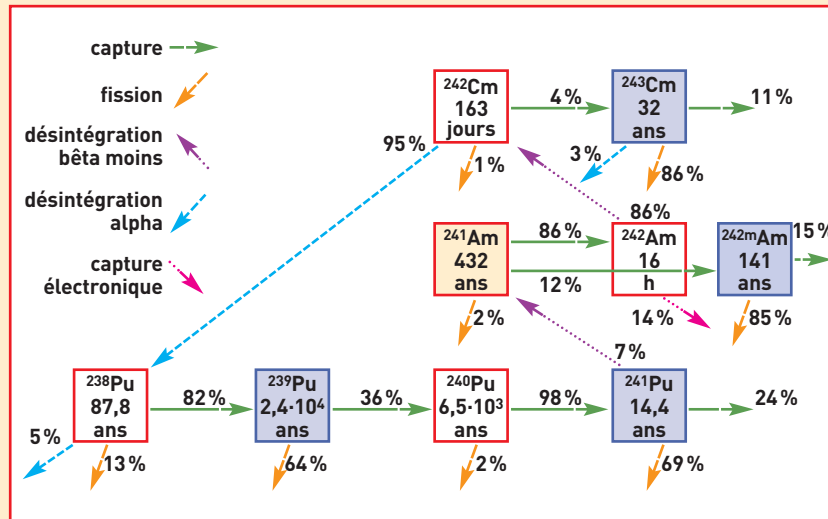


Figure.

Représentation simplifiée de la chaîne d'évolution de l'américium 241 dans un réacteur à neutrons thermiques (en bleu, les radionucléides qui disparaissent par fission). Par capture, ^{241}Am se transforme en ^{242}mAm qui disparaît majoritairement par fission, et en ^{242}Cm qui décroît (période de 16 heures) principalement par désintégration bêta en ^{242}Cm . ^{242}Cm se transforme par désintégration alpha en ^{238}Pu et par capture en ^{243}Cm qui, lui-même, disparaît majoritairement par fission. ^{238}Pu se transforme par capture en ^{239}Pu qui disparaît majoritairement par fission.

F Qu'est-ce qu'un ADS ?

Un **ADS** (de l'anglais Accelerator Driven System) est un **système hybride** constitué par un réacteur nucléaire fonctionnant en mode **sous-critique**, c'est-à-dire incapable à lui seul d'entretenir une **réaction en chaîne** de **fission**, "pilote" par une source externe capable de fournir le complément de **neutrons** nécessaire⁽¹⁾.

Dans le cœur d'un réacteur nucléaire, en effet, est libérée l'énergie de fission des **noyaux lourds** comme ceux de l'**uranium 235** ou du **plutonium 239**. L'uranium 235 produit en fissionnant en moyenne 2,5 neutrons qui pourront à leur tour provoquer une nouvelle fission s'ils heurtent un noyau d'uranium 235. Il est donc concevable qu'une fois la première fission amorcée, une réaction en chaîne puisse se développer et conduite, par une succession de fissions, à un accroissement de la population de neutrons. Mais parmi les neutrons produits par la première fission, certains sont capturés et ne donnent pas naissance à de nouvelles fissions. Le nombre de fissions générées à partir d'une fission initiale est caractérisé par le **facteur de multiplication effectif k_{eff}** , égal au rapport des neutrons de fission produits sur les neutrons disparus. De la valeur de ce coefficient dépend le devenir de la population de neutrons : si k_{eff} est nettement plus grand que 1, cette population augmente très rapidement ; si k_{eff} est très légèrement supérieur à 1, la multiplication des neutrons s'enclenche mais reste sous contrôle ; c'est cet état qui est recherché lors du démar-

rage d'un réacteur ; si k_{eff} est égal à 1, la population reste stable ; c'est la situation d'un réacteur en fonctionnement normal et si k_{eff} est plus petit que 1, la population de neutrons décline et s'éteint sauf si, et c'est le cas dans un système hybride, une

vont ensuite interagir avec le combustible du **milieu multiplicateur** de neutrons sous-critique et produire d'autres neutrons (neutrons de fission) (figure).

La plupart des projets de systèmes hybrides ont pour cœur (généralement annulaire) des milieux à **neutrons rapides**, ces derniers permettant d'obtenir les bilans neutroniques les plus favorables à la **transmutation**, opération qui permet de "brûler" des déchets mais peut également servir à produire de nouveaux noyaux **fissiles**. Un tel système peut également être utilisé pour la production d'énergie, même si une partie de celle-ci doit être réservée à l'alimentation de l'accélérateur de protons, part d'autant plus importante que le système est plus sous-critique. Il est, par principe, à l'abri de la plupart des accidents de réactivité, son facteur de multiplication étant inférieur à 1, contrairement à un réacteur fonctionnant en mode critique : la réaction s'arrêterait si elle n'était entretenue par cet apport de neutrons externes.

Composant important d'un réacteur hybride, la **fenêtre**, positionnée en bout de la ligne de faisceau, isole l'accélérateur de la cible et permet de le maintenir sous vide. Traversée par le faisceau de protons, c'est une pièce sensible du système : sa durée de vie dépend de contraintes thermiques, mécaniques et de la corrosion. Il existe toutefois des projets d'ADS sans fenêtre. Dans ce cas, ce sont les contraintes de confinement et d'extraction des produits radioactifs de spallation qui doivent être pris en compte.

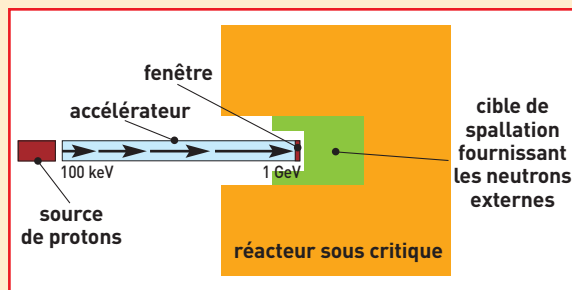


Schéma de principe d'un ADS.

source extérieure apporte des neutrons. À partir du facteur de multiplication effectif, la **réactivité** d'un réacteur est définie par le rapport $(k_{\text{eff}} - 1) / k_{\text{eff}}$. La condition de stabilité s'exprime alors par une réactivité nulle. Pour stabiliser la population de neutrons, on joue sur la proportion de matériaux à forte section de **capture de neutrons** (matériaux absorbants) au sein du réacteur. Dans un ADS, la **source** de neutrons supplémentaires est alimentée par des **protons** créés à une énergie d'environ 100 keV, puis injectés dans un **accélérateur** (linéaire ou cyclotron) qui les amène à une énergie de l'ordre du **GeV** et les conduit vers une **cible** de métal lourd (plomb, plomb-bismuth, tungstène ou tantale). Irradiée par le faisceau de protons, cette cible génère, par des réactions de **spallation**, un flux intense de neutrons d'énergie élevée (entre 1 et 20 MeV), un seul proton incident pouvant générer jusqu'à 30 neutrons. Ces derniers

■ Voir à ce sujet *Clefs CEA n°37*, p. 14.

Les caractéristiques de la plus grande part des **déchets radioactifs** générés en France résultent de celles du parc national de production électronucléaire et des unités de traitement des **combustibles** usés, construites en application du principe consistant à traiter ces combustibles pour séparer matières énergétiques encore valorisables (**uranium** et **plutonium**) et déchets (**produits de fission** et **actinides mineurs**) non recyclables dans l'état actuel de la technique.

Cinquante-huit **réacteurs à eau sous pression (REP)** à **uranium enrichi** ont été mis en service par EDF entre 1977 (à Fessenheim) et 1999 (à Civaux), constituant une deuxième génération de réacteurs succédant à la première, essentiellement composée de huit réacteurs **UNGG (uranium naturel** graphite gaz) tous arrêtés et, pour les plus anciens, en cours de déconstruction. Une vingtaine de ces réacteurs REP assurent le recyclage industriel du plutonium inclus dans des combustibles **MOX**, fournis depuis 1995 par l'usine **Melox** de Marcoule (Gard).

EDF envisage de remplacer progressivement les REP actuels par des réacteurs de troisième génération appartenant à cette même filière de réacteurs à eau sous pression, de type **EPR** (European Pressurized water Reactor) conçu par **Framatome-ANP**, filiale du groupe **Areva**. Le tout premier EPR est en cours de construction en Finlande, le premier construit en France devant l'être à Flamanville (Manche).

La plus grande partie des combustibles usés du parc est actuellement traitée dans l'usine **UP2-800⁽¹⁾** exploitée depuis 1994 à La Hague (Manche) par Cogema, autre composante du groupe Areva (l'usine UP3, mise en service en 1990-92, traite pour sa part les combustibles étrangers). Les ateliers de **vitrification** des déchets de ces usines, fruits d'un développement commencé à Marcoule, ont donné leur nom (**R7T7**) au verre "nucléaire" utilisé pour confiner les éléments de **haute activité et à vie longue**.

Une quatrième génération de réacteurs pourrait apparaître à partir de 2040 (ainsi que de nouvelles unités de traitement) avec un prototype dès 2020. Il pourrait s'agir de réacteurs à **neutrons rapides (RNR)** à **caloporteur** sodium (RNR-Na) ou à caloporteur gaz (**RCG**). Depuis l'arrêt de Superphénix en 1998, un seul RNR fonctionne en France, Phénix, qui doit être arrêté en 2009.

■ (1) Refonte de l'unité **UP2-400** qui, à la suite de l'usine **UP1** de Marcoule, était destinée au traitement des combustibles usés de la filière UNGG.