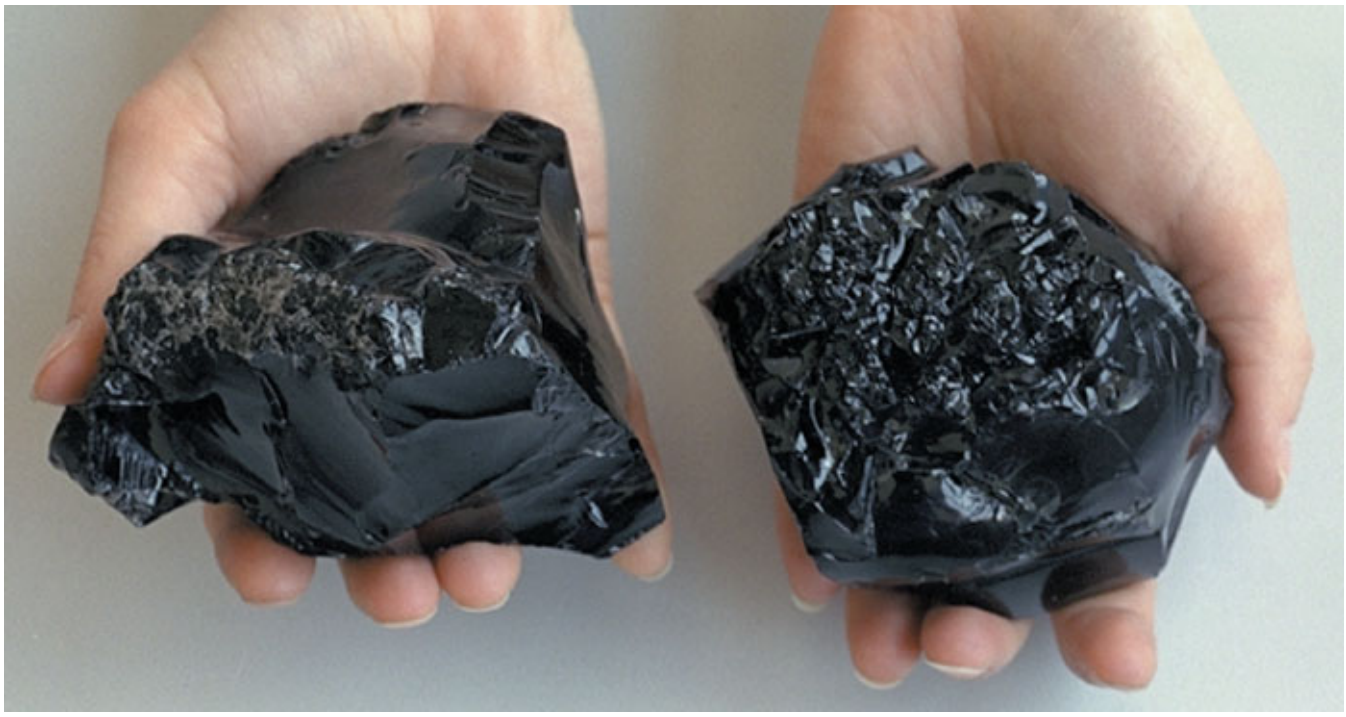
PRÉDIRE LE COMPORTEMENT À LONG TERME DES COLIS DE DÉCHETS

Faute de pouvoir expérimenter directement le comportement à long terme des colis de déchets nucléaires entreposés ou stockés dans un milieu donné, les scientifiques ont 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 donner des ordres de grandeur représentatifs de la durée de vie des éléments d'un entreposage ou d'un stockage, qu'il s'agisse de combustibles usés conservés en l'état ou de colis de déchets vitrifiés ou encore de radioéléments intégrés à d'autres matrices comme des céramiques. La validité des extrapolations fournies par ces modèles est l'objet d'analyses approfondies. Si elles n'autorisent pas la prédiction exacte du devenir d'un colis de déchets précis, elles permettent de prévoir les conséquences de ce qui pourrait lui arriver. La conclusion de ces travaux est qu'un éventuel relâchement d'une quantité infime de radioéléments n'interviendrait pas avant des dizaines de milliers d'années.



Thierry Foulon/CEA

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

Si l'objectif du conditionnement des déchets sous forme de **colis** est dans un premier temps d'assurer la possibilité de leur manutention, il est surtout de garantir un **confinement** performant et durable des **radionucléides** contenus (encadré G, ***Le conditionnement, une étape essentielle***). En effet les déchets **radioactifs** présentent la particularité de perdre leur nocivité au cours du temps, mais cette décroissance peut être très lente : les colis doivent donc rester isolés de la **biosphère** pendant de très longues périodes.

Afin de pouvoir garantir les performances du conditionnement des déchets **à vie longue** et d'éclairer les décisions futures sur leurs modes de gestion, le CEA conduit un programme d'études du comportement à long terme des colis. Ce programme vise à établir l'évolution, dans la durée, des colis de déchets, en étudiant notamment leur comportement face aux diverses agressions internes ou externes auxquelles ils seront soumis dans des conditions de **stockage** ou d'**entreposage**. Il a été rendu possible par les progrès enregistrés tant dans le domaine de la simulation que dans la connaissance des effets, sur le long terme, de ces agressions. Réalisés en coopération avec les industriels producteurs des déchets, ces travaux permettent d'organiser les résultats dans une base de connaissances commune. Fondée sur une approche scientifique structurée qui fait appel à de nombreuses spécialités, cette démarche permet d'évaluer, puis de faire partager, le degré de confiance qui peut être accordée aux prédictions. Elle conduit finalement à l'élaboration de **modèles** de comportement suffisamment simples pour être intégrés dans la

Hosatte/CEA

Cœur de la zone 10 du réacteur nucléaire naturel d'Oklo, au Gabon, dont l'étude permet d'évaluer le devenir de radionucléides de très longues périodes dans un environnement présentant des similitudes avec un stockage géologique.

procédure globale d'évaluation des modes de gestion (modèles « opérationnels »). Elle permettra de disposer en 2005 d'une base de données de référence sur le comportement à long terme des colis de déchets.

Déterminer les mécanismes et extrapoler dans le temps

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 dans le temps et de s'exprimer sur la durabilité des fonctions attribuées aux colis dans les principaux contextes envisagés (entreposage, stockage géologique). C'est pourquoi les scientifiques cherchent à déterminer les mécanismes physico-chimiques majeurs qui contrôlent le comportement des colis puis les intègrent dans des modèles qui pourront être utilisés pour se projeter dans le temps.

Les chercheurs s'attachent en premier lieu à comprendre ces phénomènes, notamment en réalisant des expériences en laboratoire ou en observant des analogues naturels (verres volcaniques, éléments retrouvés dans les réacteurs naturels d'Oklo au Gabon, etc.). Les principaux phénomènes étudiés sont ceux qui impliquent l'eau (sous forme liquide ou de vapeur), la chaleur et les rayonnements du colis lui-même. Ils élaborent ensuite des modèles mathématiques leur permettant de prédire le comportement du colis sur le long terme, puis les valident, en utilisant ces analogues naturels ou l'expertise scientifique extérieure.

Trois grands types de conditions d'environnement

Le comportement à long terme des colis est systématiquement envisagé dans trois grands types de conditions d'environnement : en système fermé, en système ouvert insaturé en eau et en système ouvert saturé en eau.

Évolution en système fermé

C'est tout d'abord l'évolution des colis en système fermé, celle où l'**enveloppe** du colis est intègre et où le confinement est totalement assuré, qui est étudiée. Le colis subit une évolution interne, mais n'échange pas de matière avec son environnement. Il peut ainsi subir des réactions chimiques ou **radiolytiques** pouvant provoquer une corrosion interne et un gonflement sous l'effet de gaz. Cette évolution peut solliciter les enveloppes des **conteneurs** et compromettre ainsi la manipulation ultérieure des colis et le confinement des radioéléments. Pour de nombreux colis industriels, ces phénomènes sont actuellement bien maîtrisés : les chercheurs sont capables de les simuler et donc d'estimer des ordres de grandeur des durées de protection associées.

Évolution en système ouvert insaturé

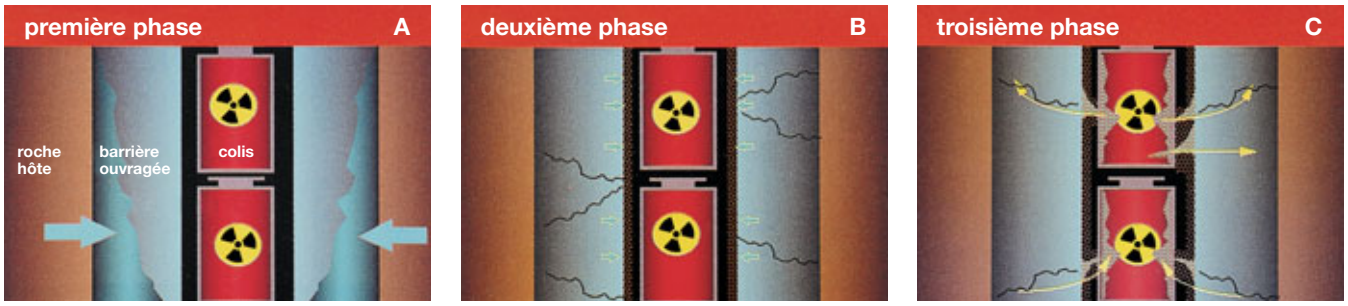
Il s'agit ensuite d'évaluer les effets d'une agression de la **matrice** par le milieu extérieur, dans le cas où le milieu environnant n'est pas saturé en eau. Les agents agresseurs sont l'air, plus ou moins humide, ainsi que d'éventuels gaz corrosifs se formant par radiolyse de l'air au contact des colis. Certains colis ou matrices, sensibles à ces agents, peuvent se transformer puis perdre tout ou partie de leurs propriétés de confinement. C'est notamment le cas de l'oxyde d'uranium. Cette phase correspond aux scénarios où l'on étudie des situations anormales ou dégradées pour l'évolution des colis en entreposage, ou pendant la phase de préfermeture d'un stockage profond (encadré I, ***En quoi un stockage peut-il être réversible ?***).

Évolution dans un milieu saturé en eau

Enfin est étudiée l'évolution des colis dans un milieu saturé en eau, qui correspond aux conditions qui pourront régner dans un stockage profond, quelques milliers d'années après la fermeture du site, une fois que les pressions d'eau se seront rééquilibrées dans la couche géologique. C'est au cours de cette phase que vont se développer la corrosion et l'altération aqueuse des conteneurs et matrices puis, une fois que les **barrières** de confinement seront tombées, que les **radioéléments** pourront migrer. C'est en fait dans ce domaine que les connaissances scientifiques sont les mieux établies car les chercheurs sont en mesure d'évaluer assez précisément des modalités et les cinétiques de corrosion et d'altération des matériaux des conteneurs et des matrices dans les conditions chimiques bien définies d'un stockage profond (figure).

Thierry Foulon/CEA

Prélèvement de solution lors d'un test de lixiviation à 50 °C en étuve dans le cadre d'études réalisées au CEA/Marcoule sur le comportement à long terme des matrices de colis de déchets.



CEA

Figure. Les trois phases, schématisées, de l'évolution tardive des colis de déchets en champ proche dans un stockage en formation géologique : resaturation en eau (A), évolution physico-chimique de la barrière ouvragée et corrosion (B), altération des colis et migration des radioéléments (C).

Champ proche et champ lointain

Dans le cas d'un stockage profond, les colis seront entourés par des **barrières** dites **ouvragées** qui assurent un confinement supplémentaire (voir *Les stratégies possibles d'entreposage et/ou de stockage*). L'ensemble des matériaux interposés entre les colis et la barrière géologique constituera le *champ proche*, le *champ lointain* étant le milieu géologique non perturbé par l'ouvrage souterrain.

Pour simuler l'évolution à long terme des colis de déchets en stockage profond, les chercheurs sont en fait amenés à prendre en compte des phénomènes couplés entre les colis et leur environnement proche aussi bien que lointain. Le champ lointain, hydrologiquement, mécaniquement et géochimiquement stable, impose ses conditions aux limites au champ proche, qui va progressivement réagir pour se rééquilibrer par rapport au champ lointain.

Du chaud et sec au tiède et humide

Pour simplifier, dans le cas de déchets de haute **activité**, le champ proche est initialement chaud et sec au centre, puis il va se refroidir, la chaleur fournie par les déchets décroissant au cours du temps. Parallèlement, l'eau va progressivement envahir le champ proche depuis l'extérieur. Les colis de déchets vont subir les réactions de ce champ dont il est important de pouvoir également simuler l'évolution temporelle. Si les températures ne dépassent pas 100 à 150 °C, il a été possible de montrer que les barrières ouvragées n'auront pas perdu leur propriétés de gonflement, d'imperméabilisation et de fixation des radioéléments.

Tous ces phénomènes d'évolution des colis en champ proche font l'objet depuis plus de dix ans d'études très poussées. Les chercheurs sont en mesure de simuler ces évolutions à très long terme et sont arrivés à la conclusion que, dans tous les cas, un éventuel relâchement des radioéléments hors du champ proche n'interviendrait pas avant quelques dizaines de milliers d'années. Et qu'il ne concernerait plus alors qu'une quantité infime de radioéléments, car la plupart auront vu leur radioactivité disparaître tout en restant confinés au sein des colis.

Les grandes classes de colis passées au crible

L'ensemble de la démarche est déclinée pour chacune des cinq grandes classes de colis : colis de déchets vitrifiés, notamment de type R7T7, colis de déchets compactés, colis de déchets bitumés(1), colis à base de liants hydrauliques (ciments, mortiers, bétons), et colis de **combustibles** usés. Que ceux-ci soient déjà existants, comme le Colis standard de déchets vitrifiés produit par Cogema à La Hague), en cours de mise au point (exemple du Colis standard de déchets compactés également conçu par Cogema) ou encore à l'étude (Colis de combustibles usés).

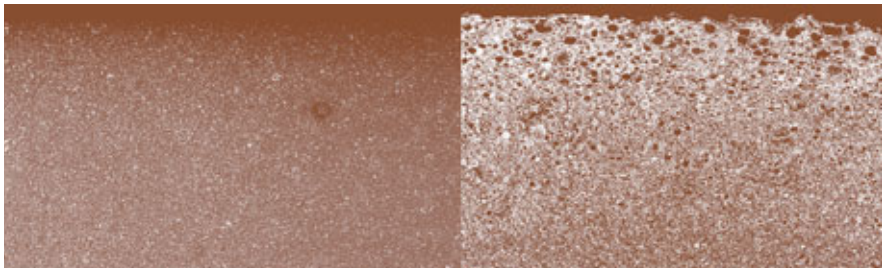
L'exemple des colis de déchets vitrifiés et celui des combustibles usés, différents par nature comme par l'état des connaissances, illustrent cette démarche dans les situations qui leur sont particulières.

Une couche protectrice sur les verres

Les colis de déchets vitrifiés résultent essentiellement de la vitrification, par Cogema à Marcoule et à La Hague, des solutions très actives issues du traitement des combustibles irradiés (encadré B, ***Les déchets du cycle électronucléaire***). Les radioéléments y sont intégrés sous forme d'oxydes dispersés dans un réseau vitreux. Il existe différentes compositions de verres nucléaires, mais l'essentiel des études a été centré sur le verre nucléaire français de loin le plus important, dit R7T7 (voir *La vitrification des déchets ajoute des cordes*

(1) Des modélisations ont en particulier permis de comprendre et d'évaluer la formation d'hydrogène gazeux dans les colis de déchets liquides enrobés dans du bitume (déchets **A** ou **B**), en cas d'interaction avec l'eau, qui conduirait à une déformation de ce colis.

Coupes transversales, obtenues par microscopie électronique à balayage, d'un enrobé bitume dans le cadre d'études menées avec Cogema sur le comportement à long terme des colis. La vue de gauche a été prise avant lixiviation, celle de droite après 20 mois de lixiviation, mettant en évidence la formation d'une zone perméable.



Samra/CEA/DEN

Installation d'étude sur la lixiviation des colis au CEA/Valrhô-Marcoule.

CEA

à son arc). Les colis de déchets vitrifiés ont une activité élevée et une décroissance radioactive lente. Sur un plan strictement technique, leur entreposage ne pose cependant pas de problème majeur, même sur le très long terme, pour peu que la tenue à la corrosion des conteneurs en acier inoxydable soit surveillée. La principale question opérationnelle qui se pose est donc celle de la durabilité du confinement des radionucléides, en conditions génériques de stockage, après resaturation du site en eau. Or ce colis est un système simple, dont le comportement est dominé par celui de la matrice vitreuse. Celle-ci est homogène et bien caractérisée (voir *Des verres garantis pour des millions d'années*). La durabilité du confinement est contrôlée par la cinétique d'altération du verre par les eaux faiblement renouvelées du site, qui est très lente. De plus, cette altération induit la formation à l'interface verre/eau d'une couche protectrice, résultant de la recondensation de la silice hydrolysée. Cette couche contribue encore à ralentir l'altération de 2 à 4 ordres de grandeur. Ainsi la fraction de verre altéré n'est chaque année, en conditions typiques de stockage après resaturation du site en eau, que de l'ordre de 10^{-7}. Et le verre, spécifiquement conçu pour conditionner les déchets de haute activité, se révèle effectivement une matrice très durable.

Les résultats les plus marquants ont été obtenus en 1999 sur les colis de déchets vitrifiés : un modèle d'évolution à long terme a montré que, dans un stockage profond, 99,9 % du verre est toujours intact, même après 10 000 ans de contact avec l'eau. Le verre apparaît ainsi comme une matrice idéale puisque la durée de vie des colis de verre se compte en millions et même, dans des conditions optimales, en dizaines de millions d'années.

Les études qui restent à mener sur le comportement à long terme des colis de déchets vitrifiés viseront donc, d'une part, à continuer d'asseoir les modèles d'altération sur la base d'une compréhension toujours plus précise des mécanismes physico-chimiques fondamentaux à l'œuvre et, d'autre part, à élargir leur champ d'application à des classes de verres plus variées, en prévision des évolutions de formulation attendues suite à l'accroissement des **taux de combustion** et des natures des combustibles traités.

Les combustibles usés en l'état

Les plupart des combustibles usés issus des centrales françaises sont, dans le schéma actuel du cycle du combustible, **traités** de façon à en retirer les matières valorisables et à conditionner l'essentiel des déchets dans du verre. Toutefois, on étudie également leur entreposage sur de longues périodes (plusieurs générations) et leur stockage géologique (voir *Comment stocker ou entreposer sûrement des combustibles nucléaires usés conservés en l'état ?*). Ceci conduit à poser de nombreuses questions opérationnelles comme, par exemple : dans quelle mesure pourra-t-on reprendre en toute sûreté des assemblages qui auront été entreposés sur de longues durées ? Et comment éventuellement les traiter ? Quelles sont les propriétés des **assemblages** de combustible, qui n'ont pas été conçus pour un conditionnement à long terme des radionucléides mais seulement pour fonctionner en réacteur et sont des systèmes assez complexes ? Pour répondre à ces questions, il est nécessaire d'intégrer de nombreux mécanismes relevant de la physico-chimie des solides et des gaz, de la radiochimie, de la mécanique, de la corrosion… Il faut tenir compte des mécanismes sous-jacents à l'évolution de la structure du combustible lui-même sous les effets de l'abaissement progressif de température et de la production d'hélium résultant de la **radioactivité alpha**, à celle des gaines soumises aux surpressions dues à la production de gaz et à la formation de phases gonflantes en cas d'oxydation du combustible, etc. Il en résulte par exemple qu'il sera difficile de démontrer la tenue à long terme des gaines. C'est pourquoi est préconisé pour l'entreposage, ou pour le stockage en phase réversible, un « colisage double enveloppe » (voir *Les stratégies possibles d'entreposage et/ou de stockage*).

Le comportement en situation de stockage géologique après resaturation en eau du site est, là aussi, dominé par l'interaction du combustible avec l'eau. Une inconnue majeure reste l'état du combustible à l'arrivée de cette eau, et en particulier la fraction des radionucléides rapidement mobilisables, conditionnée par la taille et le niveau de cohésion des grains d'oxyde d'uranium à l'issue du vieillissement antérieur. Les effets de la radiolyse sur la cinétique de dissociation de la matrice oxyde qui emprisonne les radionucléides restants sont également étudiés.

Dans ce contexte, les études sur les combustibles irradiés doivent être poursuivies dans le but d'accroître la robustesse des modèles actuels (y compris par la caractérisation des combustibles industriels), et développer des concepts de conteneurs et d'entrepôts adaptés.

Dispositif expérimental Mascilia, au CEA/Cadarache, utilisé dans le cadre des études de comportement mécanique et hydromécanique à long terme des géomatériaux sollicités, dans la durée, par une large gamme de températures dans des installations d'entreposage ou de stockage de déchets radioactifs de haute activité.

Emmanuel Joly/CEA

Pierre Toulhoat
Chef de projets conditionnement, entreposage, stockage des colis de haute activité et à vie longue
et **Pascal Chaix**
Direction de l'énergie nucléaire
CEA/Saclay