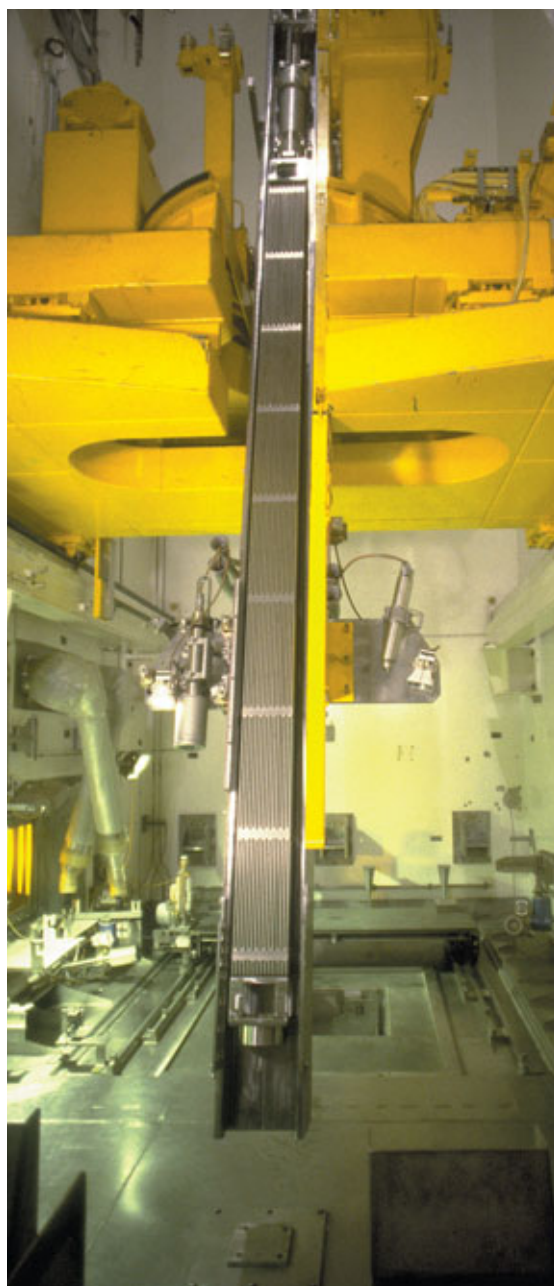


COMMENT STOCKER OU ENTREPOSER SÛREMENT DES COMBUSTIBLES NUCLÉAIRES USÉS CONSERVÉS EN L'ÉTAT ?

L'option choisie par la France est de traiter les combustibles usés. D'autres pays comme les États-Unis – qui cependant s'interrogent – la Suède ou la Finlande ont décidé de ne pas le faire. Pour permettre de décider en connaissance de cause du devenir définitif des assemblages de combustibles nucléaires usés qui ne sont ou ne seront pas retraités, le CEA mène en concertation avec ses partenaires industriels un vaste programme de recherche sur le conditionnement et le comportement à long terme des assemblages de combustibles usés conservés en l'état en entreposage de longue durée ou en stockage géologique profond.

Sur les 1 200 tonnes d'assemblages de **combustibles** nucléaires usés qui sont déchargés chaque année des réacteurs nucléaires français, environ 850 tonnes sont actuellement retraitées à La Hague. Les 350 tonnes restantes sont entreposées dans les piscines de désactivation des centrales EDF dans l'attente d'une décision ultérieure. Les solutions envisagées pour tout ou partie de ces combustibles (voir *La loi du 30 décembre 1991*) sont d'une part la poursuite de l'**entreposage** industriel dans une perspective de **traitement** différé, d'autre part l'entreposage pour une durée non définie afin de permettre l'attente d'une décision définitive. Par souci de complétude et de comparaison avec les autres pays, on étudie aussi le **stockage** géologique profond avec éventuellement une phase de **réversibilité**. Dans cette perspective, il est essentiel de pouvoir prédire la manière dont vont évoluer sur le long terme (100 à 100 000 ans...) les combustibles nucléaires usés stockés dans ces différentes conditions. Seule cette connaissance permettra à la société de décider sciemment, le moment venu, du devenir définitif de ces combustibles.

Dans cette perspective, le CEA a lancé en 1998 en concertation avec ses partenaires industriels, en particulier EDF, producteur et propriétaire des assemblages de combustibles, le programme transverse de recherche **Precci** (Programme de recherche sur l'évolution à long terme des colis de combustibles irradiés) qui coordonne pour ce qui le concerne l'ensemble des travaux scientifiques menés sur cette thématique par des équipes des centres de Saclay, Cadarache et Marcoule⁽¹⁾. Ce programme s'appuie plus largement sur un vaste réseau de collaborations tant nationales (CNRS, Universités...) qu'internationales (Allemagne, Belgique,



Assemblage de combustible usé dans l'atelier de cisailage de l'usine UP2-800 de l'usine Cogema à La Hague.



(1) Sept départements issus de la Direction de l'énergie nucléaire et un département de la Direction des sciences de la matière participent à ce programme de recherche.

Espagne, États-Unis, Japon, Suède, Suisse...), en particulier dans le cadre d'un projet de recherche européen⁽²⁾ piloté par le CEA.

Identifier les mécanismes d'évolution à long terme

L'objectif de ces travaux est d'abord d'identifier les différents mécanismes susceptibles de faire évoluer le combustible irradié dans la longue durée, puis de les quantifier en vue *in fine* de développer des modèles intégrés capables de prédire l'évolution de ce système complexe qu'est le combustible nucléaire usé (figure 1). Afin de garantir une approche unifiée et cohérente, l'ensemble des travaux menés sur ce sujet a été structuré en considérant les différentes conditions d'environnement pouvant être rencontrées par le combustible dans les deux options que sont l'entreposage et le stockage. Trois modes d'évolution ont ainsi été distingués, en système fermé, en présence d'une phase gazeuse ou en présence d'eau.

En **système fermé**, le combustible usé évolue de manière intrinsèque en absence de tout échange de matière avec le milieu extérieur. Cela correspond à la situation d'évolution normale attendue en entreposage à sec en "château" et aux premières phases de vie d'un stockage géologique profond avant la re-saturation en eau du site et la corrosion progressive du conteneur, ce qui devrait durer plusieurs milliers d'années.

L'évolution **en présence d'une phase gazeuse**, en l'occurrence au contact d'une atmosphère gazeuse oxydante, peut correspondre à une situation accidentelle en entreposage à sec dans laquelle un conteneur perdrait son étanchéité et qui conduirait ainsi à une altération du combustible par l'atmosphère.

L'évolution **en présence d'eau** concerne le combustible au contact d'une phase aqueuse qui le dissout lentement, conduisant ainsi au relâchement progressif des **radioéléments**. Cette situation est attendue à très long terme en stockage géologique profond, à l'issue de la première phase en "système fermé". Elle pourrait aussi correspondre au cas accidentel d'un crayon combustible défaillant entreposé en piscine. Le programme **Precci** vise ainsi à développer, pour chacune de ces conditions génériques d'environnement, des modèles prédisant l'évolution sur le long terme des caractéristiques physico-chimiques pertinentes pour concevoir des entreposages ou des stockages sûrs. Dans ce cadre, la R&D se focalise sur les mécanismes d'évolution brièvement présentés dans les paragraphes suivants.

(2) Projet "Spent Fuel Stability Under Repository Conditions" auquel participent treize organismes européens représentant l'Allemagne, la Belgique, l'Espagne, la France, la Suède et la Suisse.

(3) Loi de Fick.

L'évolution en système fermé (entreposage et stockage)

Le combustible évoluera sous l'effet conjugué des déséquilibres physiques et chimiques internes issus de sa phase de vie en réacteur (gradients de composition, contraintes mécaniques...) et des moteurs que constituent la **décroissance radioactive** et thermique. Les évolutions attendues concernent notamment la composition chimique, la localisation des radioéléments, l'état du crayon et celui de la gaine.

La composition chimique globale

Cette composition évoluera par suite de la décroissance radioactive. De même, la forme chimique de certains **radionucléides** changera du fait de la diminution progressive des températures. Elle verra en particulier s'accumuler au sein des crayons une quantité notable d'hélium gazeux produit par décroissance des émetteurs **alpha** (α) présents dans la pastille combustible (figure 2).

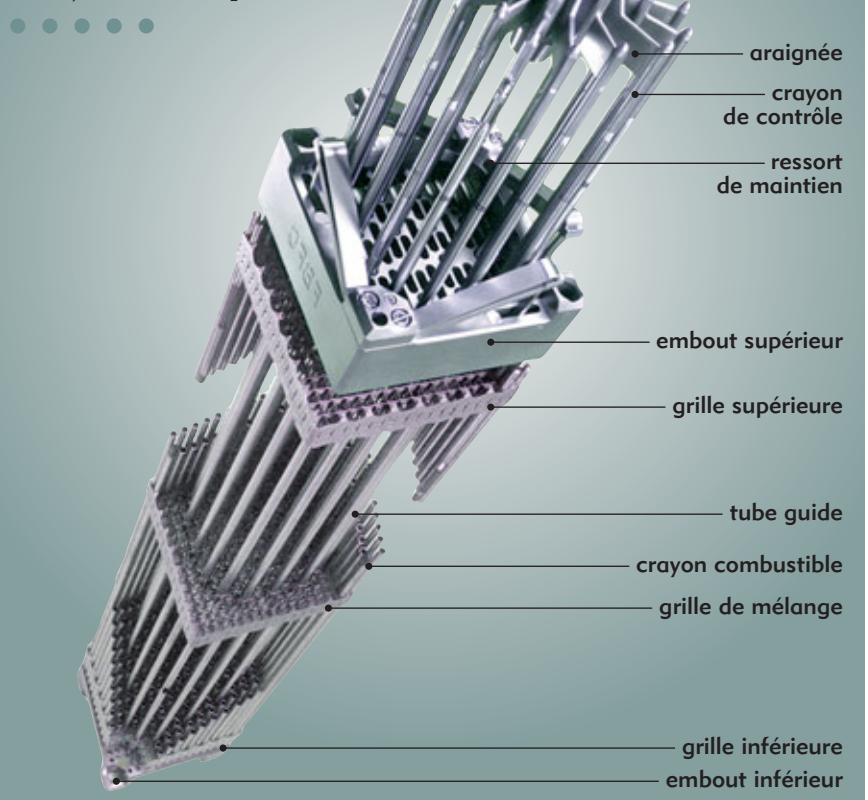
La localisation des radioéléments

La localisation des radioéléments au sein des crayons va progressivement changer du fait des processus de diffusion thermique⁽³⁾ et de diffusion activée par l'**auto-irradiation** α . Des expériences sont actuellement menées pour estimer les coefficients de diffusion des principaux radioéléments concernés.

L'état physique global du crayon

L'état du crayon devrait probablement se dégrader, en particulier en raison de l'accumulation de grandes quantités d'hélium, de l'accumulation sur de longues périodes de dommages d'irradiation qui ne se restaurent pas du fait de trop faibles températures, et de la détérioration progressive des surfaces de contact entre les grains constitutifs du matériau (joints de grains) qui représentent un point de faiblesse mécanique des pastilles. Ces transformations sont

Figure 1. Schéma d'un assemblage de combustible nucléaire mettant en évidence la complexité du système à considérer dans la longue durée. Long d'environ 4 m pour une section de 9,5 mm, chacun des 264 crayons, maintenus entre eux par des grilles pour composer un assemblage, est constitué d'une gaine de 580 μ m d'épaisseur en Zircaloy (alliage à base de zirconium métal) dans laquelle sont empilées 265 pastilles de dioxyde d'uranium UO_2 .



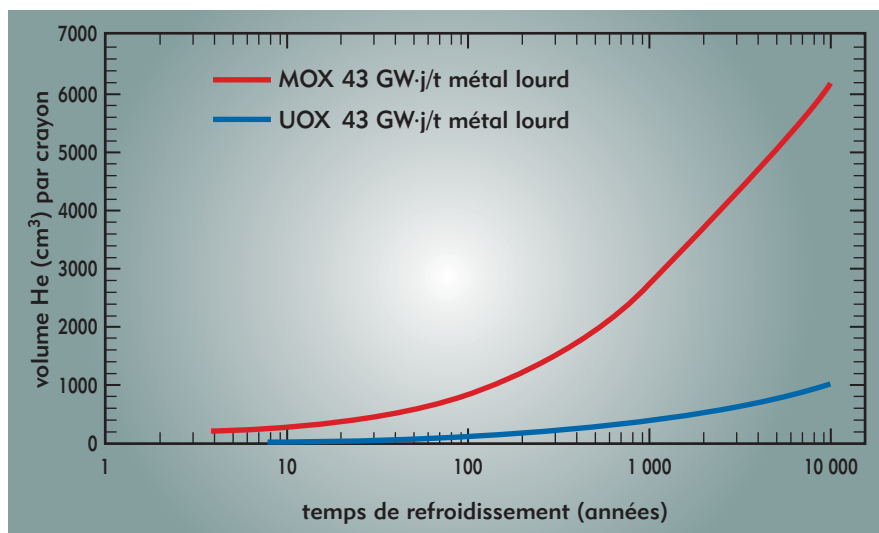


Figure 2. Évolution au cours du temps de la quantité d'hélium produite suite à la décroissance des émetteurs α présents dans les pastilles de combustible irradié dans un crayon d'un assemblage MOX (rouge) ou UOX (bleu) pour un taux de combustion moyen de 43 GW-j/t. Un des enjeux essentiels de la recherche est de déterminer le devenir de ce gaz au sein des crayons (Piron et al., 2000).



abordées tant par des travaux expérimentaux que par des simulations numériques (figure 3). Ainsi les pastilles pourraient progressivement perdre leur cohésion.

L'état mécanique de la gaine

La gaine va progressivement se déformer de manière irréversible (mécanisme dit de "fluage thermique") sous l'effet des contraintes mécaniques élevées dues aux surpressions régnant à l'intérieur des crayons (gaz de fission et hélium) et de la température. Un des enjeux est d'évaluer d'une part la cinétique de cette déformation, d'autre part si elle risque de conduire ou non à rupture.

L'évolution en phase gazeuse (conditions incidentelles en entreposage)

Le dioxyde d'uranium UO_2 qui constitue les pastilles de combustible est un matériau fortement instable en présence d'oxydants comme l'oxygène ou la vapeur d'eau... Il a

tendance à se transformer rapidement en matériaux plus oxydés comme U_3O_7/U_4O_9 puis U_3O_8 . Or ce dernier a une densité plus faible que le matériau initial, ce qui provoque un gonflement et un éclatement des pastilles. Ces transformations sont relativement bien connues pour l' UO_2 non irradié et à des températures supérieures à 250 °C. L'enjeu est maintenant d'étendre cette base de connaissance aux cas plus complexes des combustibles irradiés et pour des températures plus basses, représentatives des situations d'entreposage ou de stockage. Il s'agit aussi d'identifier quels sont les radioéléments qui seraient relâchés dans le cas d'une telle transformation.

L'évolution en présence d'eau (conditions à long terme en stockage)

En présence d'eau, le combustible utilisé relâche instantanément une partie des radioéléments non retenus par l'oxyde (la fraction dite "labile") puis les pastilles se dissolvent progressivement en relâchant lentement les

radionucléides incorporés dans l'oxyde. La vitesse de cette dissolution dépend en grande partie des conditions oxydo-réductrices du milieu, le combustible s'altérant beaucoup plus rapidement en milieu oxydant. Or, le combustible irradié a la particularité de présenter à son contact, pendant plusieurs dizaines de milliers d'années, un champ de rayonnement α significatif qui maintient localement par radiolyse de l'eau des conditions oxydantes, exacerbant ainsi la vitesse d'altération du combustible. C'est donc un enjeu majeur que de quantifier ce mécanisme et de savoir combien de temps il sera susceptible de gouverner la dissolution du combustible. Une autre question essentielle est de savoir exactement la nature et la quantité des radioéléments relâchés dans la fraction labile.

La prédiction du comportement à long terme du combustible utilisé sera un élément indispensable pour décider de son devenir. Elle conduit la R&D à répondre à des problématiques très complexes car étroitement corrélées et nécessitant une compréhension des mécanismes élémentaires aux échelles microscopiques. En créant les synergies nécessaires entre des disciplines et des équipes très diverses, le programme Precci pourra proposer d'ici 2006 des modèles pertinents et robustes permettant de prédire l'évolution à long terme des combustibles usés. Ces modèles permettront alors au CEA et à ses partenaires industriels d'être en mesure de répondre aux questions opérationnelles posées par les concepteurs d'installations d'entreposage ou de stockage afin qu'ils puissent définir la sûreté de ces installations en tenant compte de la réactivité intrinsèque du combustible utilisé. ●

Christophe Poinsot

Coordinateur du Programme de recherches sur l'évolution à long terme des colis de combustibles irradiés, chargé d'affaire Precci
Direction de l'énergie nucléaire
CEA/Saclay

Figure 3. Résultat de simulations numériques effectuées par dynamique moléculaire sur l' UO_2 afin d'étudier les conséquences de la décroissance des émetteurs α au sein du matériau, en déterminant l'influence du recul de l'atome lors de la décroissance α sur l'état cristallographique du réseau (nature et quantité des défauts formés). La figure représente l'état d'un cristal simulé d' UO_2 300 femtosecondes (10^{-15} s) après l'impact d'un noyau de recul. Chaque sphère (ou point) représente un atome (d'oxygène en rouge et d'uranium en bleu) et la taille de ces sphères est proportionnelle à la vitesse acquise par ces atomes suite à l'impact (Ghaleb et al., 2001). Ces études permettent de déterminer les défauts stables formés par décroissance α qui vont s'accumuler à long terme dans le réseau.

