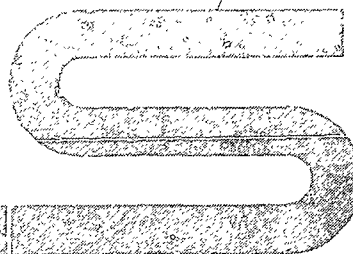


**CONFERENCE INTERNATIONALE
SUR L'ENERGIE D'ORIGINE NUCLEAIRE
ET SON CYCLE DU COMBUSTIBLE**

SALZBOURG (AUTRICHE) • 2-13 MAI 1977



CONFERENCE INTERNATIONALE DE L'ENERGIE NUCLEAIRE

IAEA-CN-36/226

GESTION DES DECHETS RADIOACTIFS DE FORTE ACTIVITE

(PRODUITS DE FISSION)

A. REDON[■] - J. MAMELLE^{■■} - M. CHAMBON^{■■■}

Participation de M. B. GIRAUD^{■■■■}

R É S U M E

Le problème des déchets radioactifs de forte activité a une importance psychologique considérable et les solutions à mettre en oeuvre doivent avoir un très haut degré de sécurité pendant une très longue période.

Après un rappel de quelques définitions, les auteurs précisent quelques principes du conditionnement des solutions de produits de fission, par vitrification. L'accent est mis sur les qualités du produit obtenu, l'effort de recherche et développement, les conditions du stockage - transitoire -

Le passage à l'étape industrielle est enfin décrit.

- [■] Commissariat à l'Energie Atomique - Division de Chimie - MARCOULE
- ^{■■} Société St.Gobain Techniques Nouvelles - COURBEVOIE
- ^{■■■} COGEMA - Etablissement de LA HAGUE
- ^{■■■■} Ministère de l'Industrie et de la Recherche - DIRECTION DES MINES

I.- AVANT PROPOS

Toute activité humaine étant génératrice de déchets, l'industrie nucléaire n'échappe pas à cette règle. Entachée de son "complexe originel" elle est devenue une cible pour l'opinion publique sensibilisée aux problèmes d'environnement.

Il en résulte pour le problème des déchets radioactifs une importance psychologique considérable, et une recherche de solutions devant satisfaire à un aspect de sécurité technique très élevé pour une très longue période.

L'éventail des possibilités de stockage en fonction de la nature des déchets peut être très large. La qualité du confinement, sans être nécessairement absolu, doit être telle que le transfert de radioactivité jusqu'à l'homme n'engendre pas d'irradiation pour le public, supérieure aux normes de radioprotection, ce qui constitue un gage du caractère inoffensif de ces stockages.

I.1. Concept de Barrières [1]

Au sens le plus général ce confinement est assuré par un certain nombre de "barrières" limitant ou interdisant le transfert vers la biosphère, du rayonnement ou de la matière radioactive (ou des deux à la fois). Ces barrières sont constituées par :

- 1/ La forme physico chimique du déchet (transformation des formes dispersables en produits solides compacts).
- 2/ Une enveloppe étanche résistante, assurant le conditionnement du déchet.
- 3/ Un confinement transitoire du déchet conditionné. C'est l'ensemble de dispositions prises pour assurer un stockage transitoire ou provisoire.
- 4/ Enfin, un confinement final du déchet permettant son élimination.

C'est l'enfouissement dans diverses formations de l'écorce terrestre.

I.2. Terminologie [1]

Quelques précisions s'imposent sur la terminologie préconisée en matière de stockage ; il est convenu de distinguer :

- des stockages de faible ou moyenne durée - opérationnels, transitoires ou provisoires, dans l'attente, soit d'un stockage final, soit d'une élimination,
 - des stockages finaux - millénaires ou définitifs - aboutissant à une élimination des nuisances essentielles.
- Le stockage est dit opérationnel lorsqu'à la suite d'une opération le produit est stocké en attente d'une opération suivante.

Nous verrons ci-après que c'est le cas des solutions concentrées de produits de fission en attente de solidification.

- Le stockage est transitoire lorsque le déchet attend son déplacement vers un stockage de durée supérieure.
- Le stockage est provisoire lorsque le lieu de stockage est mis à l'épreuve pour être ou devenir un stockage millénaire ou définitif.
- Le stockage est millénaire lorsqu'au bout d'un certain temps - de l'ordre du millénaire - le retour à un état inoffensif pour l'homme se fasse ipso-facto.
- Le stockage est définitif lorsque ses performances garantissent l'innocuité vis à vis de l'homme à toute époque même après des millions d'années.

Il apparaît clairement de ces définitions, que le stockage provisoire est obligatoirement réversible et contrôlé.

Nous n'aborderons, dans ce qui suit, que le problème de la gestion des déchets de forte activité (produits de fission).

2.- ORIGINE DE CES DECHETS

Ils résultent essentiellement du traitement des combustibles irradiés.

Ce sont les solutions de produits de fission contenues dans les raffinats du premier cycle d'extraction. Ces solutions renferment la quasi totalité de l'activité "produits de fission" engendrée dans le combustible ainsi que l'ensemble des éléments transuraniens et un faible pourcentage de plutonium non extrait.

Il convient d'ajouter à cette famille de déchets de forte activité :

- Les "coques", résultant du tronçonnage et dégainage des combustibles, qui constituent un déchet solide, volumineux et foisonnant.
- Les insolubles de dissolution séparés des solutions par décantation et centrifugation ou filtration. Ces insolubles contiennent des produits de fission non solubilisés (métaux de la mine du Platine) et des fines métalliques (zircaloy, acier inoxydable), résultant du cisailage des aigilles combustibles.

Le tableau I donne la production des déchets de traitement de combustibles irradiés issus d'un réacteur à eau ordinaire de 1000 MWe, fonctionnant pendant un an.

3.- CONDITIONNEMENT DE CES DECHETS

3.1. Coques

Les coques - résidus de dégainage - sont en général constituées de zircaloy ou acier inoxydable. D'autres constituants sont également

présents - inconel - dans les grilles d'espacement des aiguilles combustibles et les éléments de structure.

La politique actuelle de conditionnement de ces déchets particuliers, consiste - eu égard à l'inflammabilité du zircaloy - à les stocker transitoirement, donc en vue d'une reprise ultérieure, dans un silo-piscine.

Parallèlement, des études de conditionnement en vue d'un stockage millénaire, se poursuivent. Elles visent essentiellement à parfaire une décontamination en émetteurs α , et à réduire le volume des coques.

Plusieurs voies sont possibles :

- Décontamination chimique suivie d'un compactage à la presse,
- Pyrométallurgie assurant un compactage par fusion et une décontamination par scorification et enrobage de ces scories dans une masse vitreuse.

Les problèmes sont d'ordre technologique, compte tenu des hautes températures de fusion des métaux en présence.

3.2. Solutions de produits de fission

Au cours des opérations de traitement des combustibles irradiés, les raffinats du premier cycle d'extraction sont concentrés jusqu'à atteindre une concentration correspondant à 500 litres de solution par tonne de combustible (réacteurs à eau légère), dans l'hypothèse du traitement des combustibles après 18 mois de refroidissement.

Ces solutions concentrées sont alors dirigées vers des cuves constituant un stockage opérationnel - au sens de la terminologie ci-dessus - en attente de l'opération de solidification.

4.- STOCKAGE "opérationnel" DES SOLUTIONS DE PRODUITS DE FISSION

Nous décrirons ci-après les principes de stockage adoptés pour les solutions concentrées de produits de fission issues du traitement des combustibles des réacteurs d'eau légère, à l'Etablissement de LA HAGUE [2].

4.1. Principes de stockage

L'atelier de stockage dit SPF 4 est essentiellement constitué par une cellule en béton armé de forte épaisseur, entièrement enterrée. Le stockage proprement dit est composé de cuves en acier inoxydable de 120 m³ de volume unitaire utile. En superstructure sont abrités les locaux annexes.

Les solutions concentrées sont réceptionnées dans des cuves relais de 10 m³ et de 1â, sont envoyées par éjecteurs à vapeur et distributeurs rotatifs vers les cuves de stockage. .../

Les liaisons avec l'atelier de concentration sont assurées en caniveau muni d'une lèchefrite.

Le contenu de chaque cuve peut être transféré dans l'une de ses homologues ou dirigé vers un futur atelier de vitrification.

Le dégagement calorifique dû à la radioactivité est évacué par une circulation forcée d'eau de refroidissement de façon à maintenir la température de la solution inférieure à 60° C.

En règle générale, le refroidissement de tout appareil est assuré par deux circuits fermés, associés à un échangeur à plaques, l'eau primaire refroidissant dans l'échangeur à plaques, l'eau secondaire circulant dans les serpentins internes aux cuves.

Chaque cuve de stockage comporte deux boucles secondaires totalement indépendantes.

La puissance volumique de chaque cuve est de $1,92.10^6$ k.cal/h qui correspond au refroidissement de 120 m³ d'une solution dégageant 16 k.cal/h.l.

En fonctionnement exceptionnel une boucle secondaire est capable de refroidir seule, une cuve de stockage. Dans ces conditions, la température d'équilibre de la solution atteindrait 85° C (réduction de la surface d'échange).

En cas d'ébullition accidentelle de la solution, chaque cuve est reliée à un aéro condenseur à tirage naturel. Les vapeurs sont condensées et les condensats recyclés dans la cuve de stockage.

Agitation des solutions : Le précipité existant dans les solutions concentrées de produits de fission est maintenu en suspension par un brassage continu au moyen de pulseurs à air comprimé. Un balayage à l'air permet d'entraîner et de diluer l'hydrogène de radiolyse.

4.1.1. Principes de confinement

Afin d'éviter la dispersion des produits de fission soit sous forme liquide, soit sous forme d'aérosols, une première barrière de confinement est assurée par :

- a) une étanchéité statique de tous les appareils et tuyauteries (acier inoxydable) soigneusement soudés et vérifiés.
- b) une étanchéité dynamique, par mise en dépression des appareils par rapport à la cellule de stockage.

Une seconde barrière est constituée par une lèchefrite qui revêt le fond de la cellule de stockage, munie de détection de fuites, puis par la ventilation de la cellule de stockage qui assure une étanchéité dynamique par maintien de la cellule en dépression par rapport à l'extérieur.

Une 3ème barrière est constituée par les murs de la cellule de stockage.

4.1.2. Protection contre l'irradiation

Elle est assurée par des protections biologiques en béton, fonte ou plomb de façon que les débits d'équivalents de doses ne dépassent pas les valeurs définies par la législation correspondant aux zones considérées.

Les remontées de liquides actifs en dehors des cellules contenant les appareils sont évitées par construction.

4.1.3. Criticité

Le contrôle de la concentration des matières fissiles est effectué :

- soit par analyse et comptabilité en amont de l'atelier de stockage,
- soit par analyse directe des solutions stockées dans les cuves.

5.- SOLIDIFICATION DES SOLUTIONS DE PRODUITS DE FISSION [3]

Il est maintenant unanimement admis que les solutions concentrées des produits de fission, actuellement stockées dans des cuves en acier inoxydable, doivent être transformées en un solide présentant le maximum de stabilité à long terme.

Le Commissariat à l'Energie Atomique qui poursuit de façon continue depuis plus de 15 ans des études sur la solidification des produits de fission, s'est très rapidement orienté vers le verre en tant que matériau de confinement des produits de fission. En effet le verre, matière minérale, non poreux, peut dissoudre à chaud la plupart des oxydes ; presque tous les produits de fission sont donc facilement incorporables.

5.1. Avantages des verres

Comparés à d'autres types de solides, les verres ont un certain nombre de qualités :

- le produit est homogène, isotrope non poreux,
- le verre est assez indifférent chimiquement parlant,
- les verres borosilicatés ont été choisis de préférence aux verres phosphatés en raison de leur meilleure stabilité et de leur moindre action corrosive sur l'équipement.

5.1.1. Réduction de volume

Il est intéressant de souligner que le volume de verre

produit par tonne de combustible traité est de l'ordre de 14 litres par tonne de combustible à uranium naturel \approx 4000 MWj/t et 70 litres environ par tonne de combustible oxyde eau légère. Le pourcentage d'oxydes apportés par la solution représente 20 à 30% du poids de verre produit.

5.1.2. Stabilité chimique

La qualité du confinement de la radioactivité dans les verres est appréciée par lixiviation. Des études sont effectuées de lixiviation par l'eau sur des blocs de verre d'environ 2 kilos, et dont l'activité dépasse 100 Ci d'émetteurs $\beta\gamma$.

Pour l'ensemble des verres sélectionnés, une fourchette de valeurs de 10^{-8} à 10^{-6} g.cm².jour a été obtenue.

Des essais de lixiviation par l'air circulant à 4 cm.s⁻¹ autour des blocs de verre ont révélé qu'il n'y avait pas de radioactivité entraînée.

Les taux de lixiviation contrôlés sur des verres ayant été stockés pendant 7 ans n'ont subi aucune modification.

5.1.3. Stabilité sous rayonnement

5.1.3.1. Effet des émetteurs $\beta\gamma$

Pour simuler l'auto-irradiation des échantillons de verre ont été irradiés, dans un flux d'électrons de 3 MeV produits par un accélérateur linéaire, jusqu'à une dose de 10¹¹ rads.

5.1.3.2. Effet des émetteurs α

Après 1000 années de stockage, environ 99% de l'énergie dissipée dans le verre est due aux émetteurs α . Ceux-ci peuvent alors induire :

- des réactions α, n et α, p
- un dégagement d'hélium
- des changements de structure (dévitrification)

Pour simuler le vieillissement de tels verres, une étude a été entreprise en "dopant" des blocs de verre avec du plutonium, de l'américium et du curium. Une vingtaine d'échantillons contenant jusqu'à 15 g. de ²³⁸Pu ont été fabriqués, dans lesquels l'énergie développée en un an correspond à celle qui serait cumulée au bout de 50 années de stockage du verre actif - type eau légère -. Un échantillon contenant 1 g. de ²⁴²Cm a été réalisé, dans lequel l'énergie libérée en un an sera équivalente à celle qui serait cumulée en 500-700 ans de stockage.

Pour les verres contenant du plutonium, déjà examinés, on s'aperçoit que le taux de lixiviation en plutonium ou en américium est 10 à 100 fois inférieur au taux de lixiviation des émetteurs $\beta \gamma$.

Les mesures de fluences neutroniques mesurées sur ces verres révèlent que 80% des neutrons ont des énergies entre 0,2 et 10 MeV.

Des mesures de dégagement d'hélium sont en cours.

5.1.4. Stabilité thermique

Les blocs de verre stockés seront le siège d'un échauffement dû à l'absorption du rayonnement.

L'élévation de la température au coeur du verre, dépendant de l'activité spécifique et de la géométrie des blocs, place le verre dans des conditions propices à la cristallisation.

Dans l'incertitude actuelle sur la répartition des produits de fission entre la phase vitreuse et la phase cristalline, nous jugeons préférable d'éviter la cristallisation par le maintien de la température dans l'axe du bloc à une valeur inférieure à la température de croissance des cristaux (de l'ordre de 600°C).

5.2. Technologie de la vitrification [4]

5.2.1. Expérience pilote. Le procédé en pot décrit dans de nombreuses publications, a fait ses preuves à l'échelle pilote de PIVER (construit à MARCOULE), où 5 millions de curies de produits de fission ont été vitrifiés en 12 tonnes de verre, correspondant à 800 tonnes environ de combustibles irradiés dans des réacteurs de la filière gaz graphite.

Ces blocs sont actuellement stockés depuis 4 ans à titre transitoire dans un stockage pilote érigé sur le site de MARCOULE.

5.2.2. Procédé continu- AVM. Le débit du procédé en pot étant trop faible pour une utilisation industrielle, les études de développement ont été menées, ces dernières années, pour aboutir à un procédé continu de vitrification qui associe, à un four tournant dans lequel la solution est d'abord calcinée, un four de fusion dans lequel est élaboré le verre.

Ce procédé a permis d'aborder en FRANCE le stade du développement industriel avec la réalisation de l'Atelier de Vitrification de MARCOULE (AVM) installation prototype des futurs ateliers industriels de solidification.

D'autres publications ayant décrit en détail procédé et installation, nous nous bornerons à rappeler le principe et les caractéristiques générales de cette installation.

5.2.2.1. Principe

Le procédé permet d'obtenir, à partir de la solution concentrée de produits de fission et en fonctionnement continu un verre de formule choisie. Deux appareils distincts sont nécessaires:

- le calcinateur, un tube tournant reçoit en continu la solution à traiter l'évapore, puis sèche et calcine partiellement le résidu.
- le four de fusion reçoit par gravité le résidu sec provenant du calcinateur et les adjuvants nécessaires à la formation de l'état vitreux. Il fond le mélange et produit le verre final qui est coulé à intervalles réguliers dans des conteneurs métalliques de stockage.

5.2.2.2. Caractéristiques générales

Le débit nominal d'évaporation est de 40 l/h., le calcinat s'écoule dans le four de fusion au débit de 3 à 6 kg/h. permettant ainsi l'élaboration de 12 à 18 kg/h. de verre. Le verre sera stocké en conteneurs d'acier inoxydable réfractaire contenant environ 300 kg de verre. Après fermeture et soudure de couvercle, le conteneur est décontaminé par jet d'eau sous pression, avant d'être dirigé vers le stockage - transitoire - adjacent à l'atelier AVM.

L'atelier AVM actuellement en cours d'essais inactifs démarrera en actif dans le second semestre de 1977. Il doit permettre de vitrifier les stocks de solutions de produits de fission existants sur le site de MARCOULE et la totalité des produits de fission produits sur ce site dans la prochaine décennie.

5.3. Stockage - transitoire - des produits de fission vitrifiées

[4] [5]

Afin d'assurer la réversibilité du stockage des blocs de verre ainsi fabriqués, c'est dans un stockage artificiel (puits de stockage refroidi par circulation forcée d'air) que les conteneurs sont transportés après leur décontamination.

Ils sont empilés dans des puits verticaux de 10 mètres de hauteur. Une première tranche construite contient 220 puits devant assurer les stockages du Site de MARCOULE jusqu'en 1985.

En raison des températures relativement élevées, la structure du stockage est entièrement métallique et la protection biologique supérieure est assurée par des caissons métalliques remplis de béton. Ce stockage est conçu de façon qu'en aucun cas les températures du béton contenant les structures métalliques ne dépassent 60° C.

En cas de panne de la ventilation forcée, les conditions de sécurité sont maintenues par la convection naturelle.

Il faut remarquer que, compte tenu des solutions traitées à MARCOULE (filière graphite-gaz) la puissance spécifique maximale dans les verres, atteindra environ 50 Watts/l.

Les solutions de produits de fission de traitement des combustibles eau légère sont parmi les plus aisées à calciner dans le calcinateur rotatif. La production de verre atteindra 67 l/t. en l'absence de poison neutronique et après deux ans de refroidissement, la puissance spécifique maximale dans le verre sera d'environ 100 Watts/l.

Un stockage sec (refroidissement par circulation d'air forcé) est encore compatible avec une telle puissance spécifique. Au-delà, il sera nécessaire d'envisager un stockage transitoire en piscine de désactivation.

6.- AUTRES PROCÉDES DE CONDITIONNEMENT DE CES DÉCHETS DE FORTE ACTIVITÉ

Une évolution des idées semble s'affirmer depuis quelques années et des études sont en cours :

- 1/ - La séparation poussée par voie chimique du plutonium résiduel et des transuraniens est envisagée. Si cette opération est réalisable avec un rendement élevé (99,99% par exemple) on aurait alors à résoudre deux problèmes séparés :
 - élimination sur une base millénaire des seuls émetteurs β, γ (contenant moins de 0,01 % de transuraniens),
 - élimination des émetteurs de longue durée (1 à 10 millions d'années)
- 2/ - Cette élimination des émetteurs de longue durée pourrait se faire par transmutation, en produisant des émetteurs à vie courte. Une telle transmutation pourrait d'ailleurs être envisagée par recyclage direct de ces transuraniens avec les matières fissiles d'approvisionnement des réacteurs. Un optimum économique doit évidemment être recherché.

Il est envisageable qu'une telle entreprise soit réalisée dans un cadre européen ou international.

7.- EN CONCLUSION

Le problème des déchets de forte activité apparaît sérieux mais soluble. Tous les efforts portent actuellement sur la recherche de solutions à long terme (stockages millénaires ou définitifs, en formations géologiques adéquates, mais on peut dire que la technologie du stockage transitoire ou provisoire est maintenant opérationnelle et que, compte tenu d'un contrôle approprié, les nuisances dues à cette phase du cycle combustible, qu'est le retraitement, sont parfaitement maîtrisées.

R E F E R E N C E S

- [1] GIRAUD B, CANDES P.
"Les déchets radioactifs" Annales des Mines -
Mars-Avril 1976.
- [2] S.G.N. "Rapport préliminaire de Sécurité - Atelier
de stockage liquide de produits de fission SPF 4 -
LA HAGUE" Déc. 1975.
- [3] BONNIAUD R. et Coll.
"Confinement de la Radioactivité dans les verres"
IAEA - SM 207/36.
- [4] JOUAN A. et Coll.
"Développement actuel du procédé de vitrification
continue des solutions de produits de fission".
IAEA-SM-207/27.
- [5] REDON A.
"Vitrification of fission products, status of work
carried at the CEA"
AIF PHOENIX (Arizona) Mars 1976.

TABLEAU I

PRODUCTION DE DECHETS DE FORTE ACTIVITE LORS DU
RETRAIEMENT DE COMBUSTIBLES CORRESPONDANT AU FONC-
TIONNEMENT D'UN REACTEUR A EAU ORDINAIRE DE 1 000 MW
PENDANT UN AN

Catégories de résidus	Volumes (m ³)	Nature ou composition	Activités correspondantes en Ci	Poids correspondants des radionuclides
Déchets liquides de très forte activité	15	Produits de fission (PF)	$7 \cdot 10^7$	
		Transuraniens, dont, en particulier :	$3 \cdot 10^5$	30 kg
		· neptunium 237	16,2	23 kg
		· plutonium (1)	$2 \cdot 10^4$	1,5 kg
		· Am-241	$5 \cdot 10^3$	1,6 kg
		· Cm-244	$7 \cdot 10^4$	0,9 kg
Déchets solides de forte activité	10	"coques" provenant des gaines	$3 \cdot 10^5$	0,4 kg de Pu
	1,5	déchets solides divers	100 à 1 000	Généralement négligeables

(1) Il s'agit de l'ensemble des isotopes de Pu-238 à Pu-242. Le chiffre d'activité donné ici se réfère au combustible un an après sa sortie du réacteur. L'ensemble du plutonium dans les divers déchets représente environ 0,5 % de celui qui contenu dans les combustibles traités.