

C.E.A.

NC 145
9h002388

**DEMANDE D'AUTORISATION
EN VUE D'UNE PUBLICATION OU D'UNE COMMUNICATION
à faire parvenir, par la voie hiérarchique pour accord**

Direction : DCC
Centre : Marcoule
Réf. : SCD/CONF. 93.15

11973

Titre du document¹ : Le Verre pour confiner les déchets

Ni 5071N. FR 950 1739

AUTEURS	AFFILIATION ²	DEPT./SERV./SECT. (ex. ...)	VISA (d'un des auteurs)	DATE
JP. MONCOUYOUX N. JACQUET-FRANCILLON	CEA CEA	DPR/SCD/DIR DPR/SCD/SDMC	Han 9/10/93	

Nature³:

RAPPORT THESE REVUE CONF/CONGRES MEMOIRE DE STAGE LIVRE POLYCOPIE DE COURS AUTRE

TITRE (Revue, Congrès) : SFEN

ORGANISME OU ORGANISATEUR : SFEN - PARIS

33018 Nov 93
Date: Octobre 93

PAYS : France **VILLE :** Paris

EDITEUR :

ARRIVÉE - CIRST	
- 5 OCT. 94	005618
Langues: LM AMM	Cl: NC

COLLECTION :

N° Vol :
Date Parution :

LANGUE : Français

Elément Programme

Les visas portés ci-dessous attestent que la qualité scientifique et technique de la publication proposée a été vérifiée et que la présente publication ne divulgue pas d'information brevetable, commercialement utilisable ou classée.

	SIGLE	NOM	DATE	VISA	OBS.
CHEF DE SERVICE	SCD	JP MONCOUYOUX	10/11/93	Han	
CHEF DE DEPARTEMENT	DPR	M. CAUCHETIER	19/6/93	[Signature]	J.H. CUNTE

Un exemplaire du résumé est à joindre à chaque destinataire :
D.O, INSTN/MIST/CIRST, Doc-Unité.

- 1 Titre en français suivi du titre en langue étrangère
- 2 Entité d'appartenance de l'auteur : Ex. CEA, CNRS, ISERM...
- 3 Cocher la case correspondante

14002388



GROUPE RÉGIONAL DE PARIS

SOCIÉTÉ FRANÇAISE D'ÉNERGIE NUCLÉAIRE

Le Groupe régional de Paris de la SFEN organise :

Le Jeudi 18 novembre 1993 à 17 h

Salle Jean-Benoit à l'Institut Français de Gestion
37, quai de Grenelle - 75015 PARIS

une conférence sur le thème :

260
**« LE VERRE POUR CONFINER LES DÉCHETS DE HAUTE ACTIVITÉ :
DÉFINITION, FABRICATION, ENTREPOSAGE ET STOCKAGE »**

avec la participation de :

M. MONCOUYOUX

Chef du Service du Confinement des Déchets au CEA/Marcoule

M. JACQUET-FRANCILLON

Chef de la Section de Développement des Matériaux de Confinement au CEA/Marcoule

14 30 23 93



GROUPE RÉGIONAL DE PARIS

SOCIÉTÉ FRANÇAISE D'ÉNERGIE NUCLÉAIRE

Le Groupe régional de Paris de la SFEN organise :

Le Jeudi 18 novembre 1993 à 17h

Salle Jean-Benoit à l'Institut Français de Gestion
37, quai de Grenelle - 75015 PARIS

une conférence sur le thème :

**« LE VERRE POUR CONFINER LES DÉCHETS DE HAUTE ACTIVITÉ :
DÉFINITION, FABRICATION, ENTREPOSAGE ET STOCKAGE »**

avec la participation de :

M. MONCOUYOUX

Chef du Service du Confinement des Déchets au CEA/Marcoule

M. JACQUET-FRANCILLON

Chef de la Section de Développement des Matériaux de Confinement au CEA/Marcoule

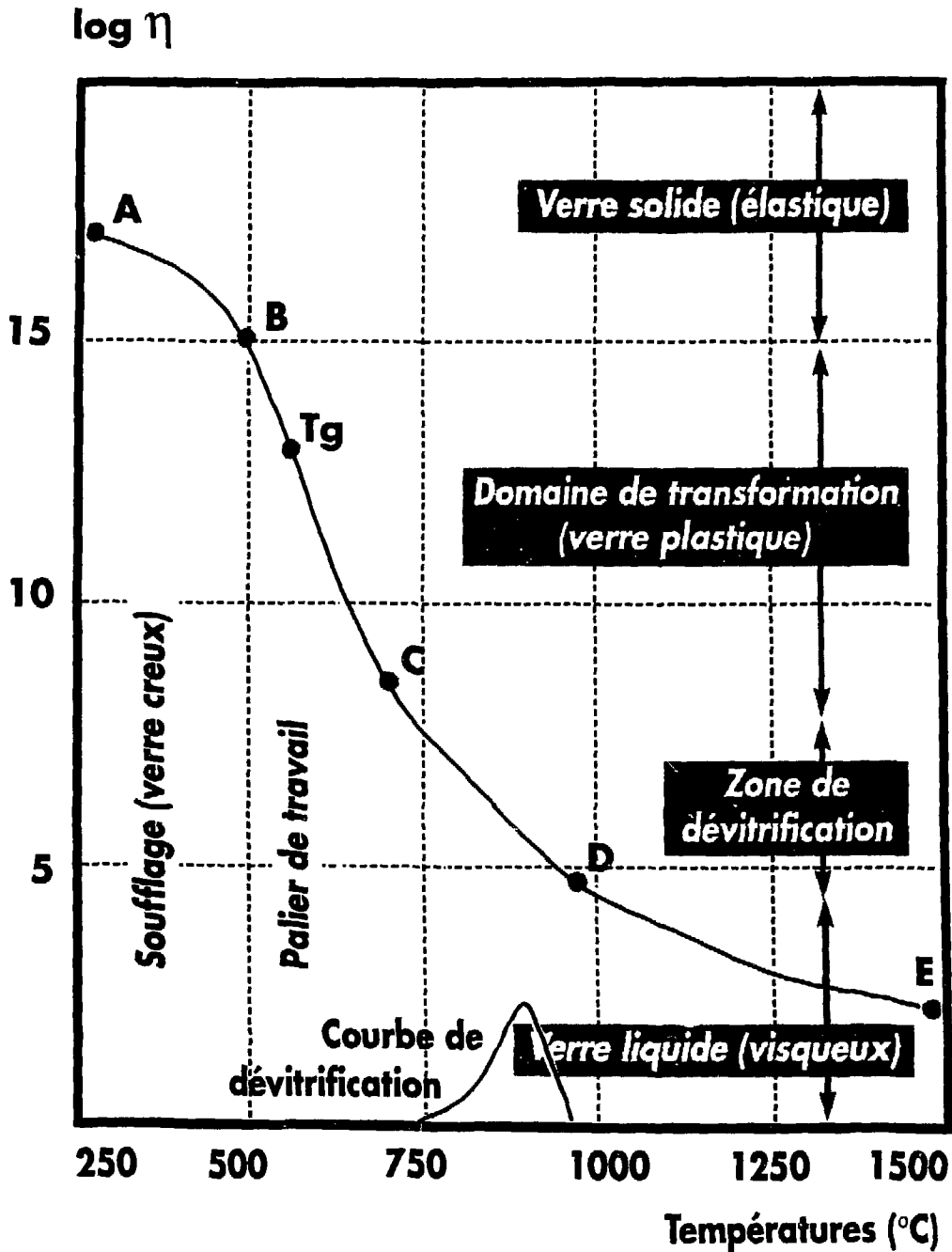


COMPOSITION DE SOLUTIONS A VITRIFIER

Filière	REP	UNGG	
	UO ₂	Sicral	UMo MoSnAl
COMBUSTIBLE			
TAUX DE COMBUSTION (MW _{j,t} .t ⁻¹)	33 000	4 000 6 000	1 500 3 500
SOLUTION (l/tU) OXYDE (g/l)	660 75-160	100-120 90-100	- 240
ACIDITE LIBRE(N)	0,95	1,0	0,8
OXYDES (g/l)			
Fe	13	7-14	3,14
Al	0-2	19-38	2,76
Cr	2,3	0-1,5	0,65
Ni	1,9	0-1,3	0,31
Na	20	7-11	14
Mg	-	3-7	1,6
Zn	0-1	-	-
Mo	-	-	163,2
Sn	-	-	0,67
P	1,26	1-2	41,6
F	-	2-8	-
OXYDES PF (g/l)	52,23	45,1	11,46
OXYDES d'Actinides	3,83	3,65	3,62



CHANGEMENT D'ETAT D'UN VERRE Courbe de Viscosité




FORMULES DE VERRES BOROSILICATES

TYPE DE REACTEUR	GRAPHITE GAZ		REP
	COMPOSITION (POIDS %)		
SiO₂	38,0	42,7	45,5
Na₂O	17,3	14,2	9,9
B₂O₃	17,3	17,8	14,0
Al₂O₃	13,8	8,6	4,9
Fe₂O₃	5,0	1,6	2,9
MgO	1,6	1,0	-
NiO+Cr₂O₃	1,5	1,4	0,9
Fp+Act. oxydes	4,5	12,7	12,2
COEFFICIENT DE REDUCTION DE VOLUME	5,4	7,0	6,0
VOLUME DE VERRE PAR TONNE DE COMBUSTIBLE IRRADIE (litres)	5,6	14,0	110



PROPRIETES DES VERRES ET DU PROCEDE DE VITRIFICATION

RELATIVES A LA VITRIFICATION

- **Faisabilité**
- **Peu de déchets et d'effluents secondaires**

RELATIVES A L'ENTREPOSAGE ET AU STOCKAGE

- **Stabilité sous irradiation**
- **Stabilité thermique**
- **Résistance chimique**
- **Bonnes caractéristiques mécaniques**



PRINCIPE DE LA VITRIFICATION

OBJECTIF VISE = VERRE FINAL	50 %	SiO₂
	20 %	B₂O₃
	20 %	Na₂O
	10 %	Fe₂O₃

SOLUTION [NO₃Na + (NO₃)₃Fe]

CALCINATION



CALCINAT

5 %	Na₂O
10 %	Fe₂O₃

FRITTE DE VERRE

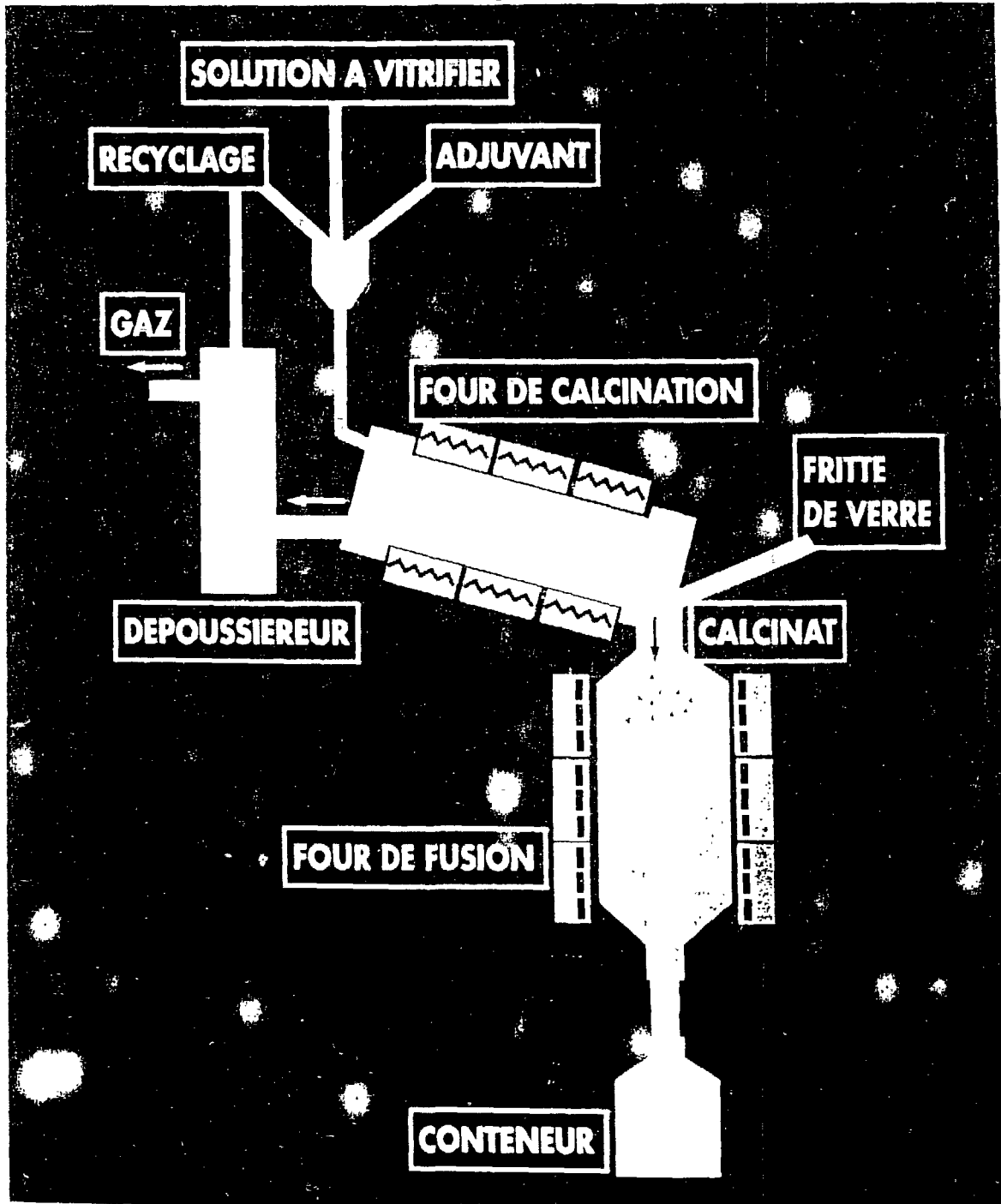
50 %	SiO₂
20 %	B₂O₃
15 %	Na₂O

ELABORATION (fusion)



VERRE FINAL = OBJECTIF VISE	50 %	SiO₂
	20 %	B₂O₃
	20 %	Na₂O
	10 %	Fe₂O₃

PROCEDE DE VITRIFICATION PAR INDUCTION EN CREUSET CHAUD



cea VALRHO - Marcoule

Service de confinement des déchets



RESULTATS D'EXPLOITATION

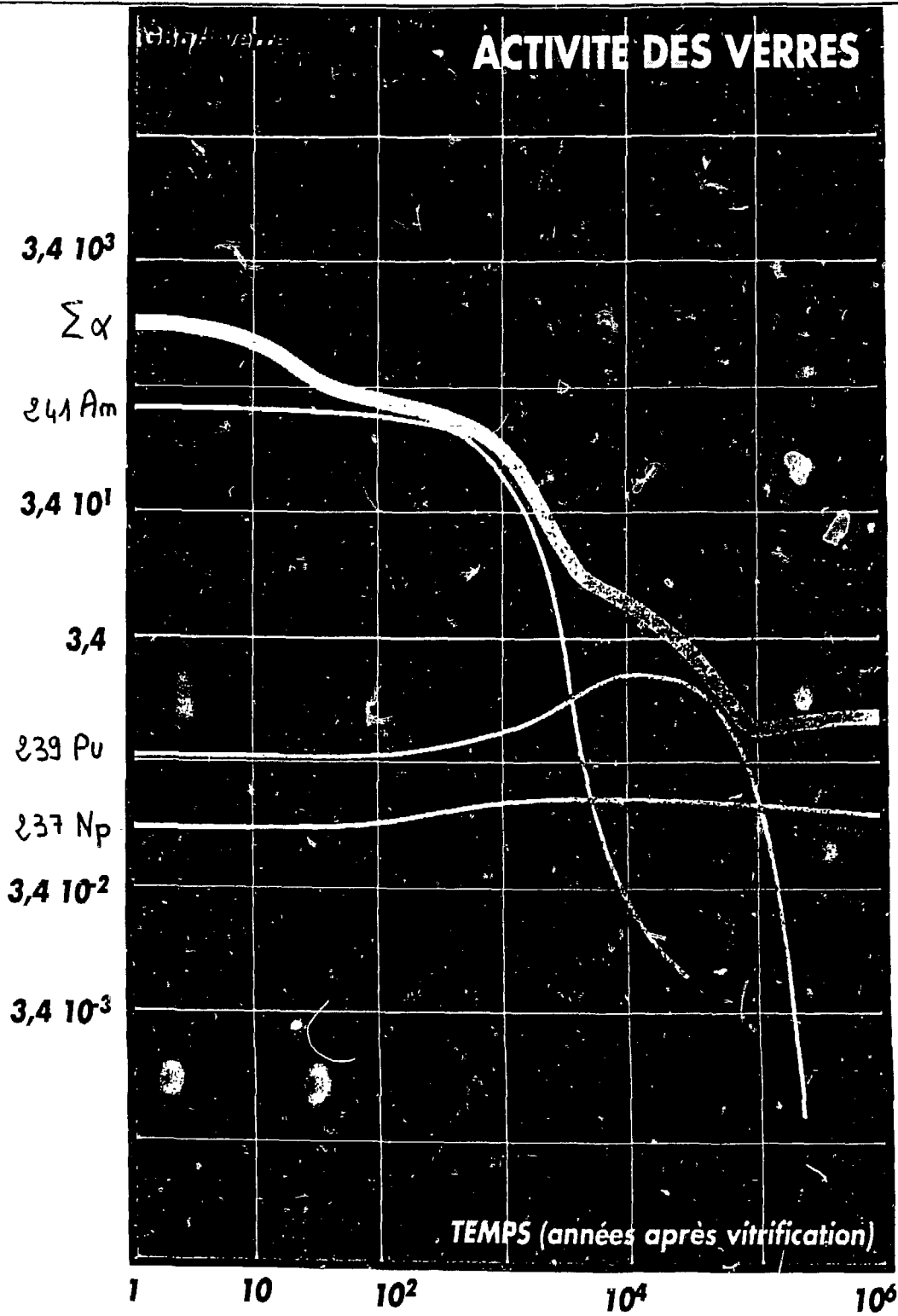
	SOLUTIONS HA	VERRE (tonnes)
Gulliver Marcoule 1964 - 1967	250 litres	
Piver Marcoule 1969 - 1973	25 m³	12
AVM Marcoule 1978	1630 m³ *	726 *
R7 La Hague 1989	1000 m³ *	550 *
T7 La Hague 1992	80 m³ *	54 *

* au 1.1.93



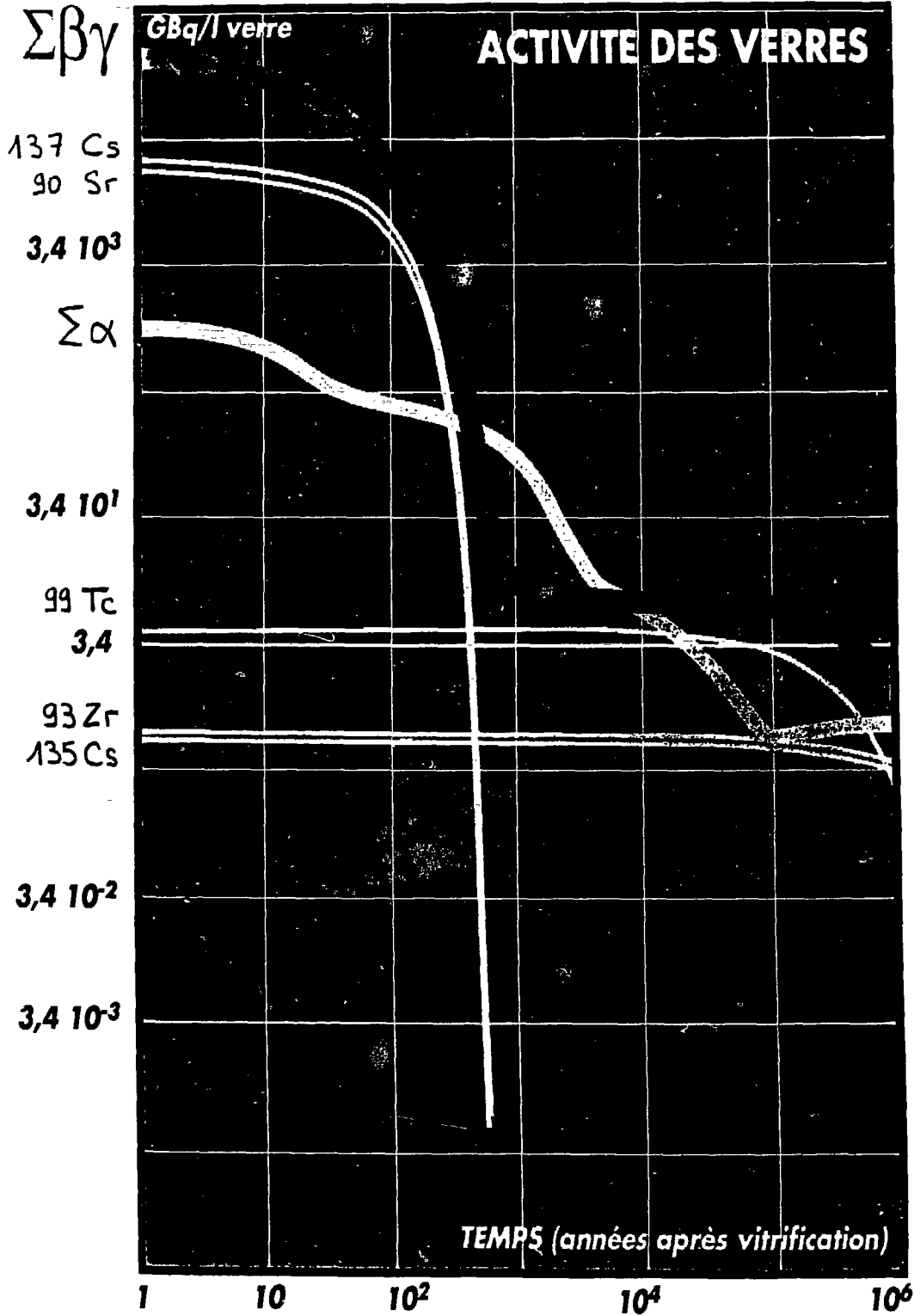
COMPOSITIONS DES VERRES INDUSTRIELS OU NATURELS

	SiO ₂	B ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	CaO MgO BaO	K ₂ O Na ₂ O Li ₂ O	Autres
V-VITRE	72,4	-	1,1	12,7	13,5	Fe ₂ O ₃ : 0,1
PYREX	80,4	11,6	2,3	0,2	4,5	Fe ₂ O ₃ : 0,1
CRISTAL	53,4	-	0,2	-	11,7	PbO : 35
V-NEUTRE	69	8	9	4	9	ZnO : 1
OBSIDIENNE	73,6	-	12,1	0,5	13,5	Fe ₂ O ₃ : 1,7
BASALTE	46,2	-	15,8	14,6	7,2	Fe ₂ O ₃ : 12,6 TiO ₂ : 3,3
MACUSANITE	72,3	0,6	15,8	0,2	8,5	P ₂ O ₅ : FeO : 1,1
LA HAGUE	45,5	14	4,9	4	11,9	: 12,2
MARCOULE	38	17,3	13,8	1,6	17,3	PF+Act : 4,5





10





PUISSANCE THERMIQUE DES VERRES

DUREE DE STOCKAGE APRES VITRIFICATION (années)	α W/l	$\beta\gamma$ W/l	$\frac{\alpha}{\alpha + \beta\gamma} \times 100$
1	0,82	14,2	5,4
10	0,65	6,8	8,7
100	0,22	0,8	21,6
300	0,15	0,008	95,0
1000	0,05	0,0002	99,7



PROPRIETES DES VERRES DE CONFINEMENT

- ◆ **ETAT VITREUX**

- ◆ **PROPRIETES PEU SENSIBLES
A LA COMPOSITION CHIMIQUE :**
 - . Propriétés thermiques
 - . Propriétés mécaniques
 - . Résistance à l'irradiation
 - . Températures caractéristiques.

- ◆ **PROPRIETES SENSIBLES
A LA COMPOSITION CHIMIQUE :**
 - . Propriétés physiques
 - . Homogénéité
 - . Cristallisation - Stabilité thermique
 - . Résistance à la lixiviation.


**PROPRIETES
PHYSIQUES**

	VERRES DE PF SELECTIONNES MARCOULE LA HAGUE	VERRES PYREX	VERRES A VITRE SODO- CALCIQUE	
P A R A M E T R E S	DENSITE	2,48 à 2,61 2,75	2,28	2,46
	VISCOSITE A 1100°C (poises)	50 à 150 80	80000	4000
	T_M (°C)	475 à 500 502	565	527 à 547
	DILATATION (10⁻⁶ °C⁻¹)	9,1 à 9,9 8,31	3,2	9,3
	CONDUCTIVITE THERMIQUE (W.m.⁻¹.°K⁻¹)	1,0 1,0	1,09	1,05
	MODULE D'YOUNG (Pa x 10¹⁰)	8,6 8,4	6,1	7,3
	TENACITE (Pa.m^{1/2}.10⁶)	0,75 0,95	0,85	0,70 à 0,80



CARACTERISATION PROPRIETES AU TEMPS ZERO

- 1. VERRE INACTIF DE LABORATOIRE**
- 2. VERRE INACTIF DE TECHNOLOGIE**
- 3. VERRE ACTIF DE LABORATOIRE**
- 4. VERRE ACTIF INDUSTRIEL**



COMPORTEMENT A LONG TERME DES VERRES

ETUDES DE LIXIVIATION

**Mécanismes de base et effets des paramètres
Lixiviation en condition de stockage**

**BUT
MODELISATION DU TERME SOURCE**

ETUDES D'IRRADIATION

**BUTS
EFFET DE LA DOSE α CUMULEE
ET DU DEBIT DE DOSE
VERRES ACTIFS REELS**

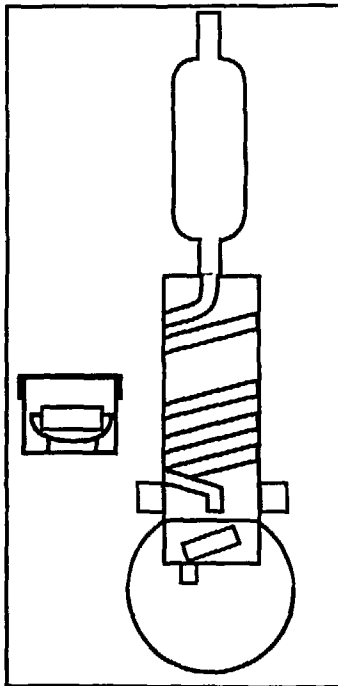


COMPORTEMENT DU VERRE RESISTANCE A L'ACTION DE L'EAU

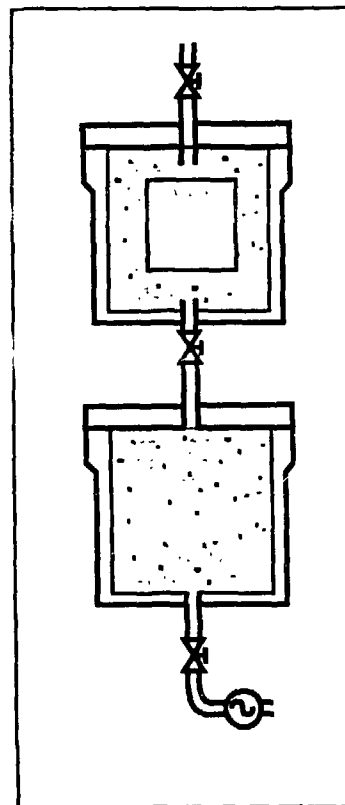
- **MOYENS EXPERIMENTAUX**
- **PARAMETRES IMPORTANTS**
- **MECANISMES**
- **MODELISATION**



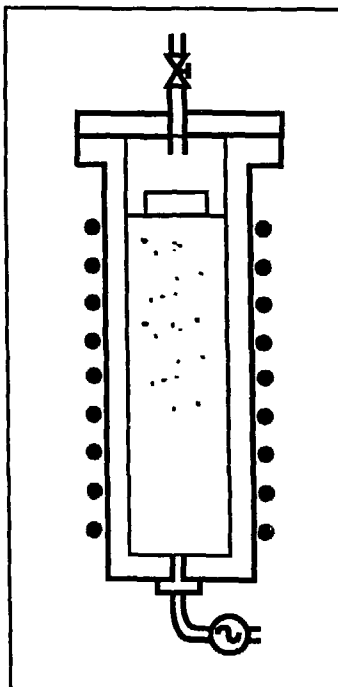
ETUDES DE CORROSION PAR L'EAU Méthodologie et Tests utilisés



**EXPERIENCES
ELEMENTAIRES**



**EXPERIENCES
INTEGRALES**

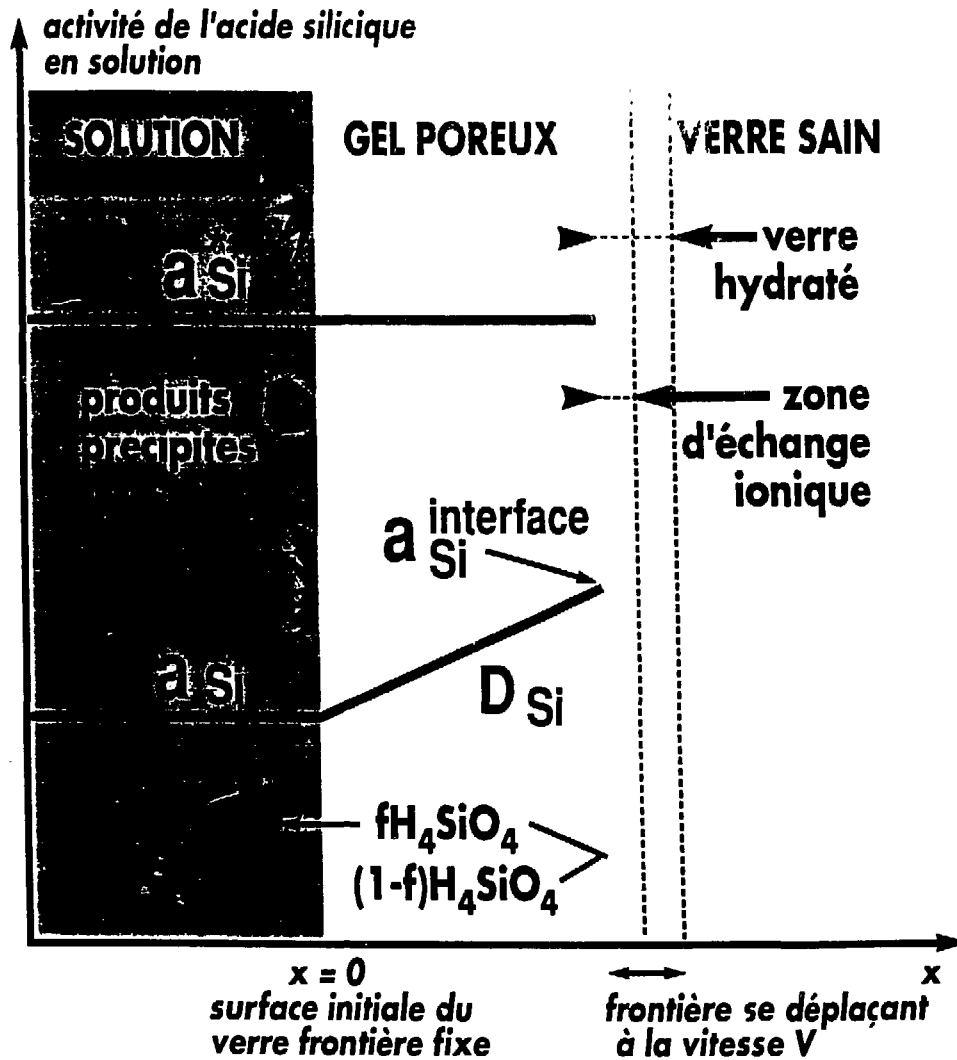


**EXPERIENCES
SEMI-INTEGRALES**



18

REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES PRINCIPAUX MECANISMES DE CORROSION DES VERRS



$$V = V_0 \left(1 - \frac{a_{H_4SiO_4}^{interface}}{a_{H_4SiO_4}^*} \right)$$

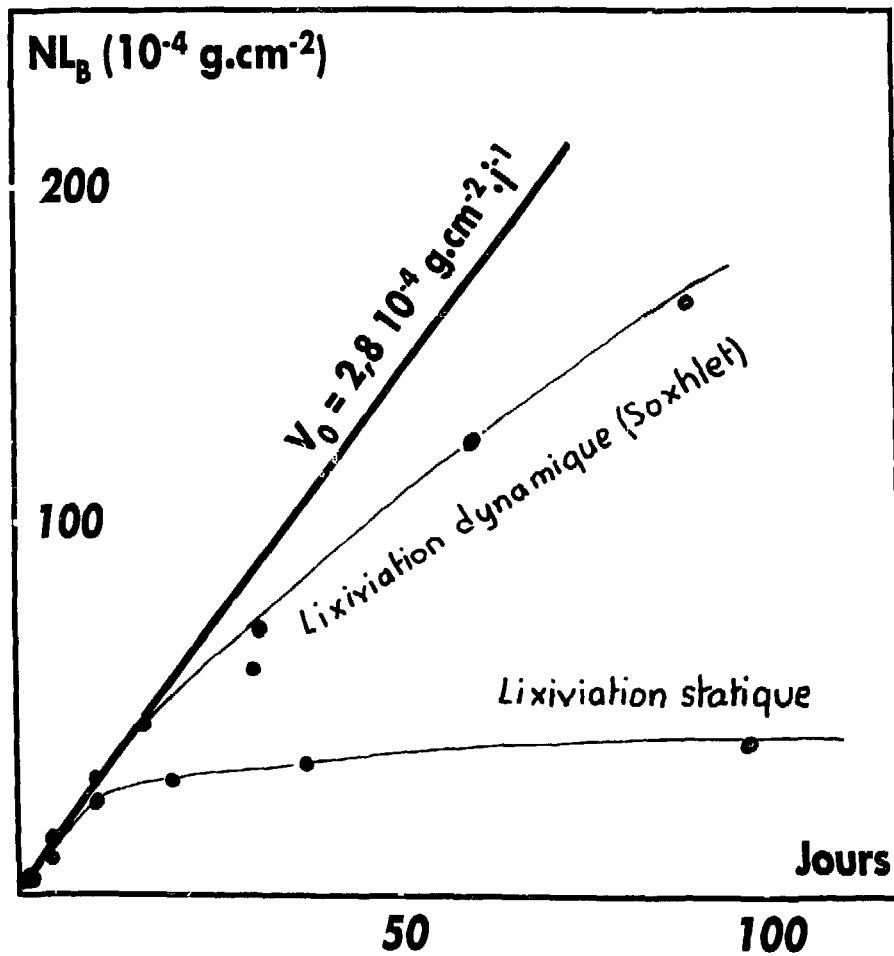


LES PARAMETRES IMPORTANTS DE LA CORROSION AQUEUSE

- **LA TEMPERATURE**
- **LE DEBIT**
- **LA COMPOSITION DES VERRES**
- **LA NATURE DES MATERIAUX
DU CHAMP PROCHE**



COURBE DE LIXIVIATION A 100°C (cas du Bore)





COMPORTEMENT SOUS IRRADIATION

◆ AUTO IRRADIATION ISOTROPE

◆ CONSEQUENCES DE L'EVOLUTION DE L'ACTIVITE

- effets des $\beta\gamma$, s'il y en a, appréciables à l'échelle humaine.
- émetteurs α (actinides) : sources de dommage les plus importantes. L'énergie déposée croît continuellement : $2,6 \cdot 10^{10}$ grays en 10^7 ans.

◆ RESULTATS ENCOURAGEANTS

- Conservation de l'intégrité physique.
- Verres dopés α .

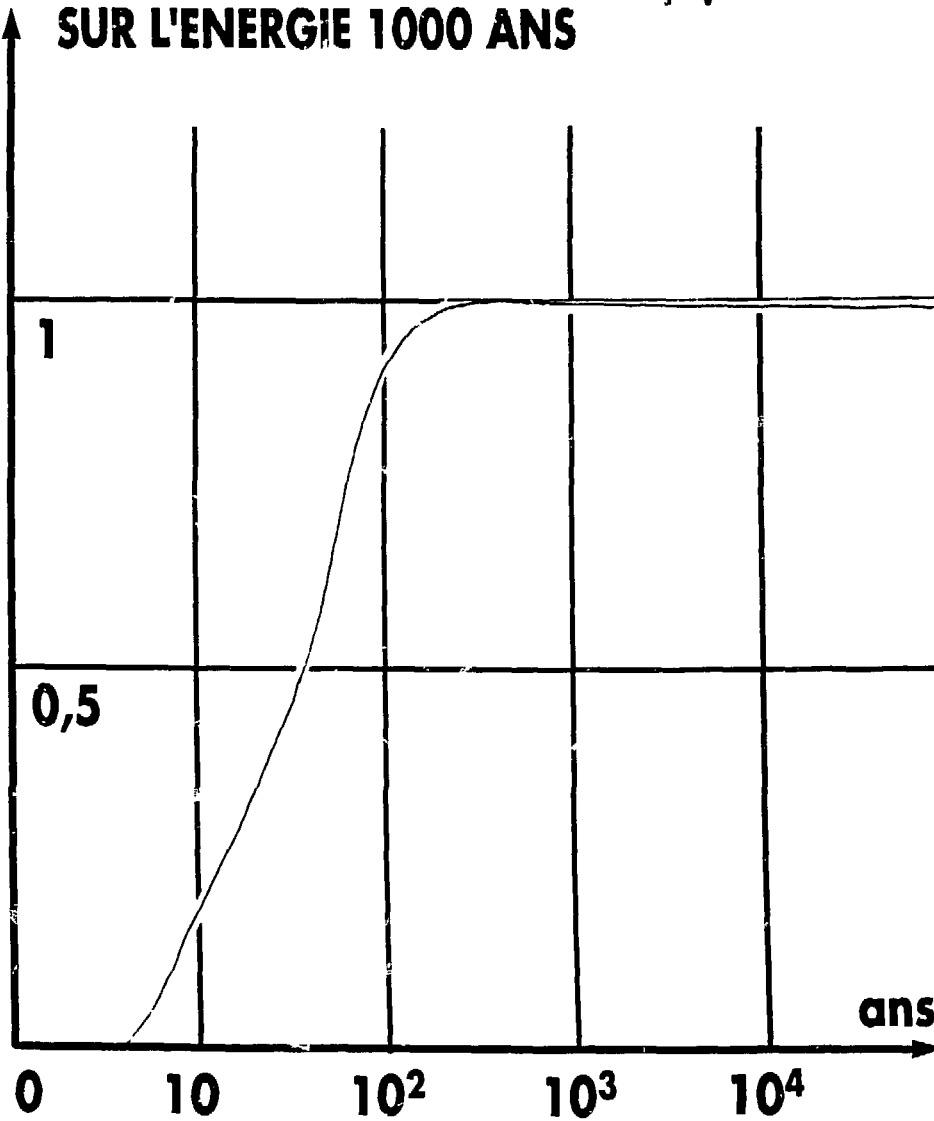


EFFET DE L'IRRADIATION

Irradiation	Portée approximative	Nb déplacements atomiques par g de verre à 10 ³ ans	Energie déposée en Gray* à	
			10 ³ ans	10 ⁷ ans
α	α : 20 μm noyau de 30nm recul	α : 1,7.10 ²⁰ à 3,4.10 ²⁰ NR : 1,7.10 ²¹ à 3,4.10 ²¹	1,4.10 ⁹	5,6.10 ¹⁰
β	\sim 1 mm	\sim 4.10 ¹⁹	2,4.10 ⁹	2,7.10 ⁹
γ	\sim cm(s)	\ll 2.10 ¹⁹	$<$ 2.10 ⁹	$<$ 2.10 ⁹
n (réaction α, n)	\sim 100 cm	6.10 ¹⁴ à 6.10 ¹⁵	\sim 2.10 ²	\sim 9.10 ³

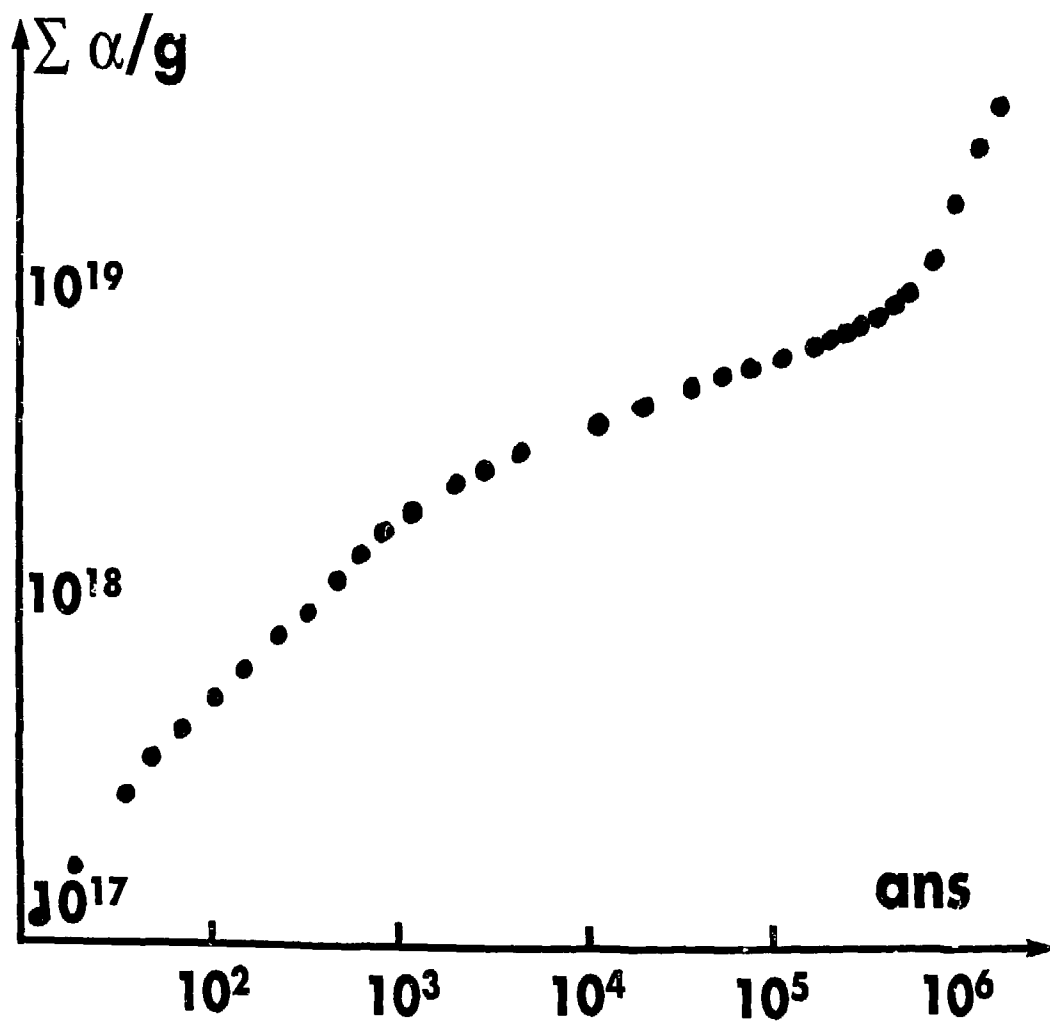


RAPPORT DE L'ENERGIE CUMULEE $\beta\gamma$ TOTALE SUR L'ENERGIE 1000 ANS





EVOLUTION DE LA DOSE ALPHA CUMULEE





CARACTERISTIQUES DES COLIS (verre eau légère)

RADIOACTIVITE ET PUISSANCE THERMIQUE INITIALES
28000 TBq $\beta\gamma$ - 140 TBq α - 3 KW

EVOLUTION

- . **Décroissance rapide pendant les**
300 premières années
- . **De 30 à 300 ans, essentiellement** **^{137}Cs -Ba**
 ^{90}Sr -Y
- . **Contributeurs au long terme**
 ^{99}Tc , ^{93}Zr , ^{135}Cs
Am, Pu, Np

RADIOTOXICITE POTENTIELLE INGESTION

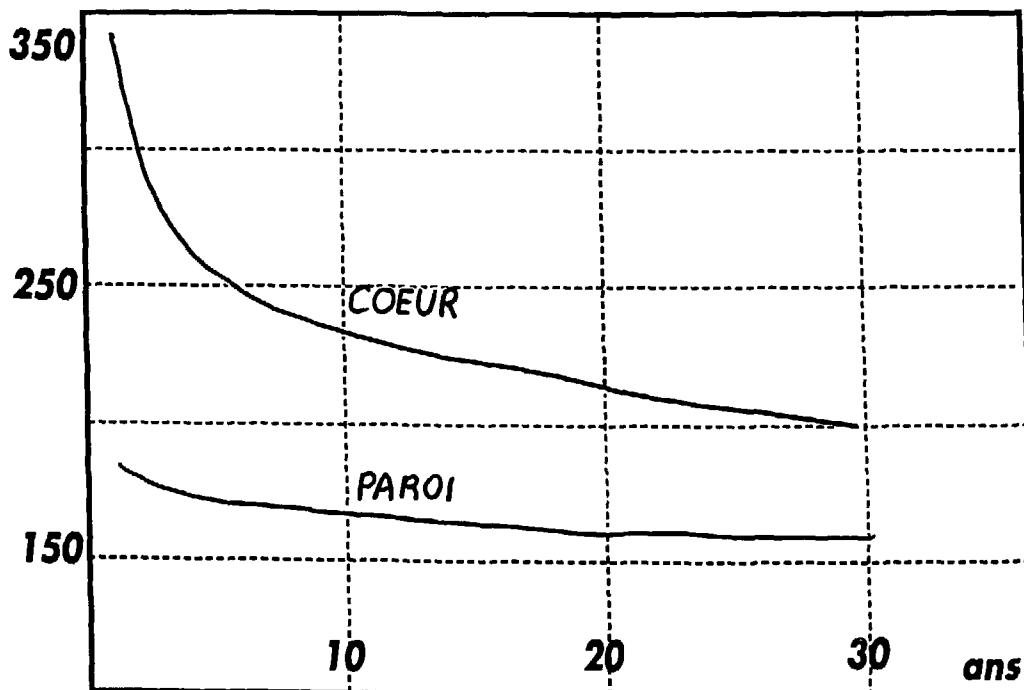
- . **"Equivalence" à la tonne d'U verre-minerai**
Vers 30 000 ans
- . **1 g verre = 35 g Pechblende**



ENTREPOSAGE

- **DEPOT INTERMEDIAIRE EN PUIITS VENTILE**
- **DUREE NON ENCORE DEFINIE**
- **HYPOTHESE DE REFERENCE :**
 - 30 ans (eau légère)**
- **PUISSANCE SPECIFIQUE DU COLIS + VENTILATION**
 - θ coeur < de 100°C à θ de transformation de phase (RFS III 2b)**

Température maximale au coeur du verre et température en paroi du verre correspondante en entreposage R7 de verres Eaux légères (°C) :





LA REGLE FONDAMENTALE DE SURETE

RFS III 2 f

PRINCIPE ALARA

CONCEPT MULTI-BARRIERES

- . les colis de déchets**
- . les barrières ouvragées**
- . la barrière géologique**

STABILITE DE LA BARRIERE GEOLOGIQUE
(et du concept multi-barrieres ?)
SUR UNE PERIODE \geq 10 000 ANS

ETUDE D'UNE SITUATION DE REFERENCE

ETUDE DE SITUATIONS HYPOTHETIQUES
correspondant à des évènements aléatoires



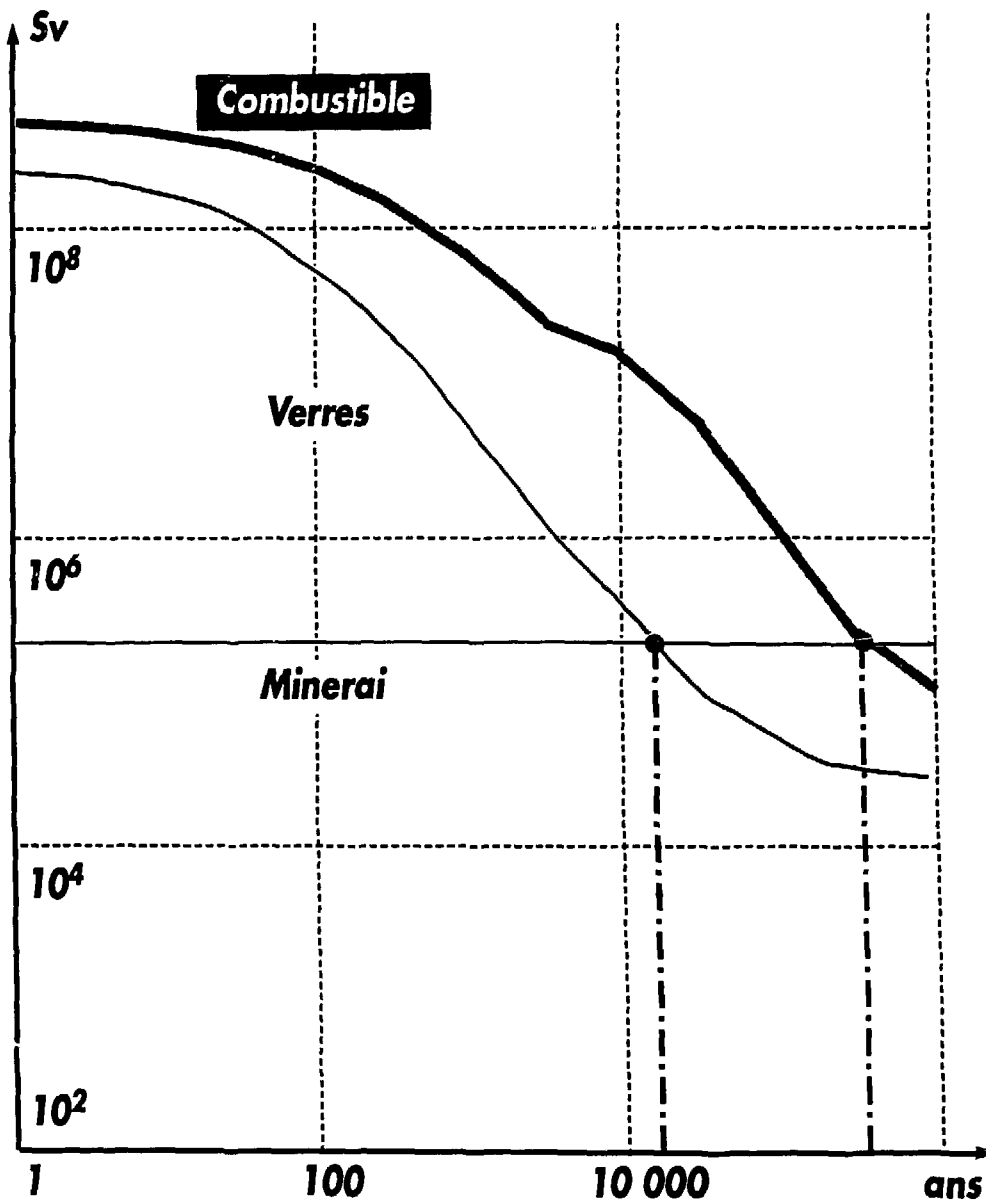
TEMPS CARACTERISTIQUE

**UNE PERIODE DE 10 000 ANS POUR LA MODÉLISATION
DU C.L.T. DE LA PREMIERE BARRIERE PARAIT SUFFISANTE.**

- **C'est la période retenue par la RFS III 2 f pour la démonstration de la stabilité du site.**
- **C'est la période au bout de laquelle la radiotoxicité potentielle des verres est revenue à un niveau voisin de celle du minerai dont le déchet est issu.**



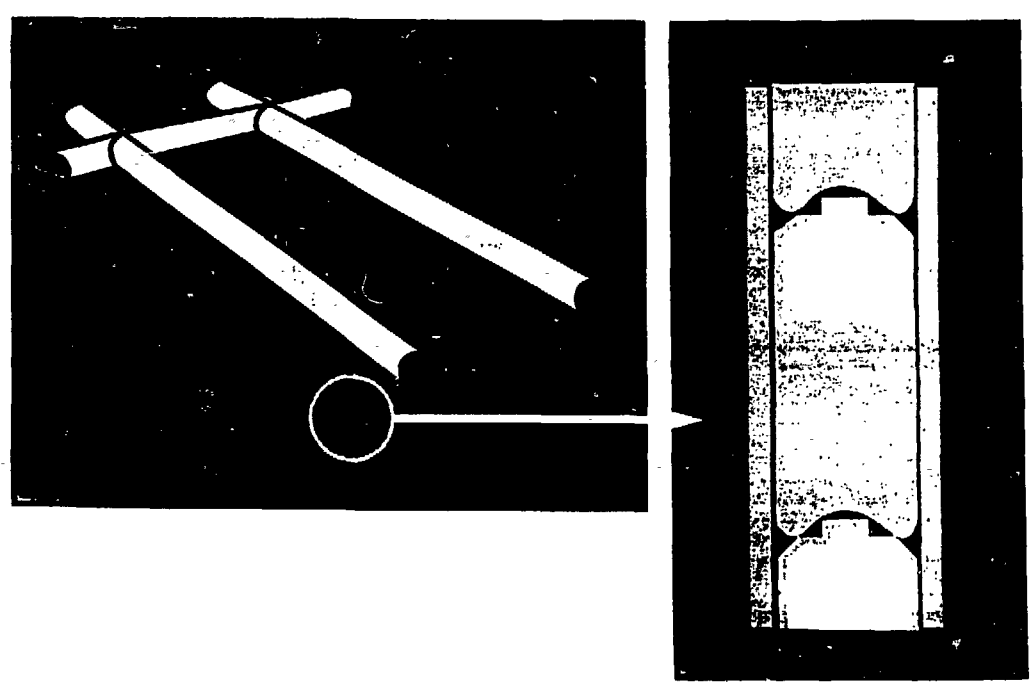
RADIOTOXICITE POTENTIELLE PAR INGESTION (ramenée à la tonne d'uranium métal initial)





STOCKAGE

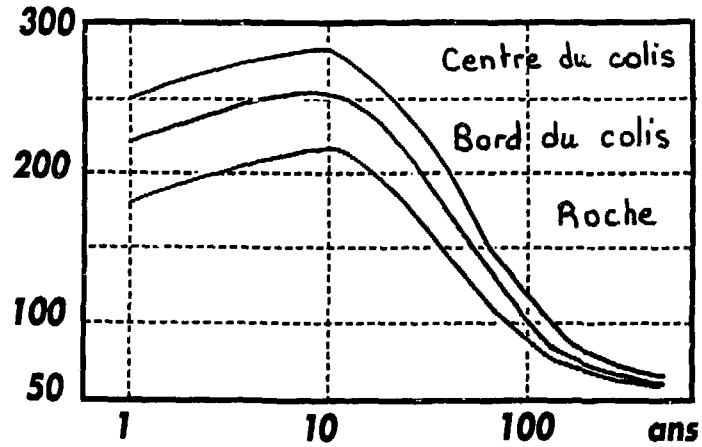
Concept développé par ANDRA



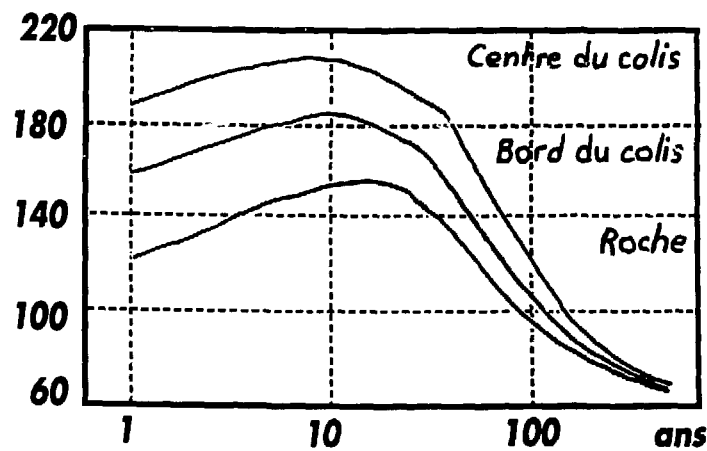


STOCKAGE : LES TEMPERATURES (°C)

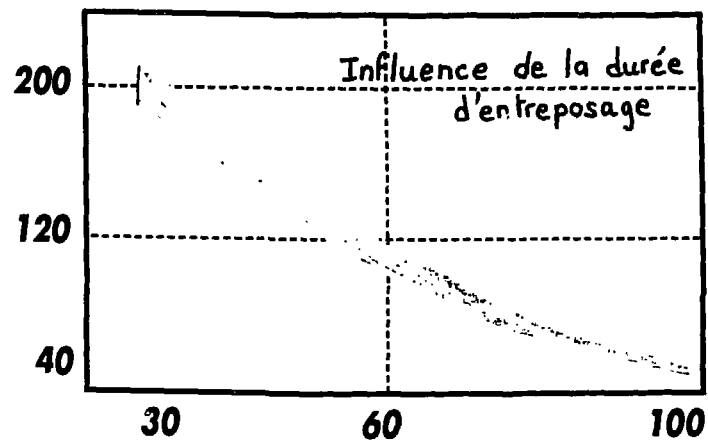
$$\lambda = 1,7 \text{ W/m/K}$$



$$\lambda = 3 \text{ W/m/K}$$



$$\lambda = 1,5 \text{ W/m/K}$$



Direction DCC..
 Centre : CEN-FAR.
 Réf : SEMP/DIR-94.130

**DEMANDE D'AUTORISATION
 EN VUE D'UNE PUBLICATION OU D'UNE COMMUNICATION**
 à faire parvenir, par la voie hiérarchique pour accord

INC 170
 N° 1071N. IR 9501788

Titre du document 1 : *LE PLUTONIUM DANS LA NATURE*

AUTEURS	AFFILIATION 2	DEPT. SERV./SECT. (ex : ../../..)	VISA (d'un des auteurs)	DATE
C.MESTIC	CEA	DPR/SEMP 9/10/94	<i>[Signature]</i>	29/6/94

Nature

RAPPORT / THESE / REVUE / CONF / CONGRES / MEMOIRE DE STAGE / LIVRE / POLYCOPIE DE COURS / AUTRE SEMINAIRE

TITRE CONGRES : ^{9/10} CONFERENCE "LE PLUTONIUM DANS LA NATURE" 11972

ORGANISME OU ORGANISATEUR : COMURHEX

PAYS : FRANCE VILLE : PIERRELATTE Date : 24 JUIN 1994

EDITEUR :

COLLECTION :

ARRIVÉE - CIRIST

-5 OCT. 94 005622

Circ. : *[Signature]* Cl : NC

ARRIVEE LE

19 OCT 1994

N° Vol. :

Date de parution : ../../..

Elément Programme

LANGUE : *Français*

Les visas portés ci-dessous attestent que la qualité scientifique et technique de la publication proposée a été vérifiée et que la présente publication ne divulgue pas d'information brevetable, commercialement utilisable ou classée.

	SIGLE	NOM	DATE	VISA	OBSERVATIONS
CHEF DE SERVICE	SEMP	B. BCULLIS	30/6/94	<i>[Signature]</i>	
CHEF DE DEPARTEMENT	DRDD	R ^o CAUCHETIER	1/7	<i>[Signature]</i>	

Via SEC 11/11/94

- 1 Titre en français suivi du titre en langue étrangère
- 2 Entité d'appartenance de l'auteur. Ex. : CEA, CNRS, INSERM
- 3 Cocher la case correspondante.