

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE



De la physique nucléaire aux normes de classification

J. Guidez (CEA)
P. Guetat (CEA)
C. Pescatore (AEN)

1. Comment une installation devient objet de démantèlement
2. Gestion des matériaux issus du démantèlement.
3. Classification française des déchets radioactifs
4. Les sciences du démantèlement pour optimiser le passage de l'objet de démantèlement à l'état final
5. Conclusion

Comment une installation devient objet de démantèlement ?

Les installations nucléaires de base sont définies en France par le code de l'environnement, soit:

- 1) Les réacteurs nucléaires
- 2) Les installations de préparation, d'enrichissement, de fabrication, de traitement ou d'entrepôts de combustibles nucléaires
- 3) Les installations de traitement, d'entreposage ou de stockage, de déchets radioactifs.
- 4) Les accélérateurs de particules

- Au départ une installation neuve est un ensemble de matériels non actifs (hors radioactivité naturelle!). Après une certaine période de fonctionnement et suivant son activité , elle contient des équipements et des locaux plus ou moins radioactifs.
- Un certain nombre de mécanismes : activation par bombardement neutronique ou émission de particules, contamination, etc.. sont à l'origine de cette transformation.
- Par conception, seules certaines zones sont concernées par ces problèmes d'activation ou de contamination. La plus grande partie des installations n'est ni activée , ni contaminée.

CAS DU RÉACTEUR NUCLÉAIRE : LA VIE DES NEUTRONS

- Lorsque le réacteur diverge, la réaction en chaîne débute avec sa production de neutrons.
- Chaque fission donne un nombre variable de neutrons eux même une énergie variable. Le neutron aussitôt émis, a une vie qui va dépendre des noyaux qu'il rencontre sur son chemin.
- Dans le cœur, il a trois comportements possibles vis-à-vis de ces noyaux: déviation avec perte d'énergie suite au choc , fission du noyau impacté ou capture par ce noyau.
- On notera que seuls quelques % des neutrons sortent du cœur et iront impacter les structures environnantes, jusqu'à la cuve et éventuellement activer ces structures.

- C'est le cas le plus courant, en particulier vis-à-vis du fluide caloporteur. Dans l'eau les atome d'H₂ sont très légers et très stables. Les chocs successifs vont conduire à une perte d'énergie des neutrons et à un ralentissement rapide. Dans le sodium , ce n'est pas le cas.
- D'où des spectres énergétiques différents dans le cœur de ces réacteurs de différents types , alors que l'émission neutronique initiale est identique
- Ce processus ne crée pas de produits radioactifs, mais conditionne les phénomènes de fission ou de capture

- L'interaction neutron-noyau, dans le cœur conduit pour les noyaux lourds, principalement à deux types de réactions: la réaction de fission du noyau et la réaction de capture du neutron par le noyau cible .
- En cas de fission, le noyau se scinde de manière aléatoire en plusieurs fragments, créant ainsi de nouveaux éléments.
- Plus l' énergie du neutron est importante , plus la probabilité de fission augmente. (C'est ce qui permet des meilleurs résultats de transmutation sur les réacteurs rapides au sodium que sur les réacteurs à eau)
- Seuls les noyaux lourds étant concernés les produits radioactifs créés restent au niveau du combustible, a l'intérieur de la gaine.

- Les réactions de capture conduisent à la création d'isotopes généralement radioactifs .C'est ainsi que l'on crée volontairement, par exemple les isotopes radioactifs pour la médecine, dans les réacteurs, en introduisant certains éléments dans les flux neutroniques.
- C'est le mécanisme qui produit la plus grosse partie des produits d'activation sur les structures. Par exemple le Mn 54 (312 jours), ou le Co 60 (5,7 ans) ou le Ni 63 (100 ans)
- Les impuretés (Co, Cl, Mn, Nb ..) jouent parfois un rôle important dans le bilan final.

- Certains produits de fission peuvent sortir du combustible lors de ruptures de gaine.
- Les quantités sont faibles, et des résines/filtres et pièges sont prévues sur les réacteurs à eau.
- à Phénix, réacteur rapide sodium, après les 15 ruptures de gaines initiales, on a atteint environ 2,8 MBq/kg de Cs 137 dans le sodium. Actuellement on est aux environs de 1 MBq/kg

- En réacteur des produits de corrosion (Mn , Co,..) peuvent circuler et s'activer au passage dans le cœur.
- Sur les parois il y a alors contamination des matériaux par déposition puis diffusion, de ces produits activés.
- Sur les parois plus froides la déposition sera plus importante mais la diffusion sera plus faible en profondeur. Après décontamination, il y a souvent « inversion des activités » , car les procédés de décontamination sont moins efficaces si la diffusion est plus importante.
- Exemple des RNR Na : contamination à plus de 90% par Mn 54 (période 312 jours), le reste étant essentiellement des isotopes du cobalt. (Co58 et Co60)

- En labo/usine le mécanisme prédominant est la contamination.
- Les vecteurs de contamination peuvent être les liquides, les poussières voire les vapeurs.
- Pour les accélérateurs, le mécanisme prédominant est l'activation.

Les grands nombres en Becquerels correspondent à des masses très faibles.

Par exemple : 1 TBq d'Iode 131 correspond à 0,2 mg
1 TBq de Cs 137 correspond à 0,31g
1 TBq de Mn 54 correspond à 3,5 mg

Lorsqu'on dit que les rejets cumulés d'effluent liquides sur 34 ans de fonctionnement du réacteur Phénix, ont été de 45 TBq , cela correspond à environ 0,2 g de Mn 54

Dans le cas de situations accidentelles hors dimensionnement, avec perte des barrières, de nombreuses différences apparaissent:

- Procédures non établies
- Rejets importants de produits volatils haute activité (Césium, Iode, Tellures, Ruthénium, etc..)
- Urgence de la situation
- Difficultés d'intervention sous hauts débits de dose.
- Volume important à décontaminer (contamination des sols, etc..)
- Développement de nouvelles techniques adaptées à la situation (robotique, etc..)

- Le démantèlement commence après évacuation des cœurs ou des matières radioactives, qui contiennent 99,9% de la radioactivité totale en fonctionnement.
- Restent 0,1% dans les structures créé par activation (dans la masse ou par les produits de corrosion) et par contamination (en surface , et en épaisseur par diffusion)
- La plus grande partie de l'installation (plus de 80%) n'est pas concernée par ces phénomènes.
- En cas d'accident hors dimensionnement, les situations sont très différentes

Gestion des matériaux issus du démantèlement.

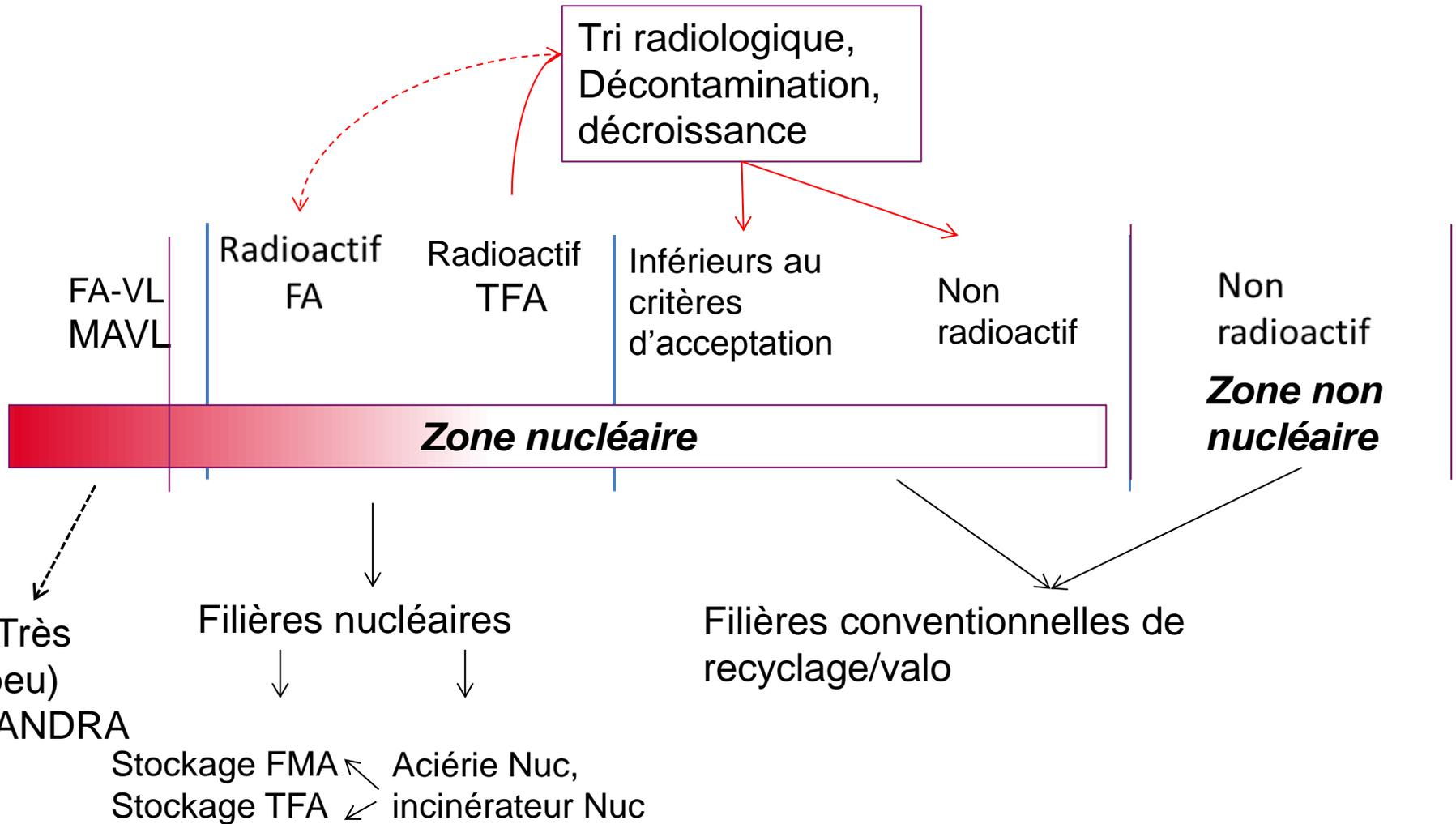
- Gestion en filière conventionnelle des matériaux non radioactifs .
- Traitement de décontamination soit pour le reclasser en autre classe de déchets, soit pour en favoriser la libération, soit pour réutilisation
- Recyclage : beaucoup de matériaux pourraient être recyclés après traitement
- Stockage comme déchet ultime.

- En France il n'y a pas de seuils libératoires et, les déchets TFA des INB sont envoyés à un centre de stockage spécifique de l'ANDRA. C'est le concept de zonage qui permettra de classer les matériaux concernés.
- A l'international, ce sont plutôt les activités mesurées qui permettront de libérer ces déchets. En Angleterre les déchets TFA peuvent être envoyés dans des décharges publiques agréées et en Allemagne ils sont libérés voire réutilisés. Une faible partie peut aussi aller en décharge agréée.
- En fait chaque pays a ses propres valeurs de libération (voir document OCDE/NEA «Removal of regulatory controls for materials and sites ». (RWMC Regulators' Forum d'avril 2004). La directive européenne 13-59 définit des valeurs génériques et précise les critères

DECONTAMINATION ET RÉUTILISATION

- Plusieurs pistes existent. Soit la réutilisation de matériaux TFA peu coûteux mais en grosse quantité, par exemple comme remblai. Soit la réutilisation d'objets ou de matériaux plus coûteux, comme les aciers, le cuivre, etc...
- Studsvick (Suède) fournit un exemple de décontamination au niveau industriel pour des clients nationaux ou étrangers. Ce centre s'est spécialisé, entre autre, dans la fonte des matériaux métalliques. Il récupère les sous produits de fusion (scories, cendres..) qui sont le cas échéant restitués aux fournisseurs , avec les lingots réutilisables.
- Ces voies sont à l' étude en France ,en prévision des gros chantiers à venir (Estimation d'environ 500 000 t d'acier à gérer d'ici 2030) . Elles sont confrontées à des difficultés technico économiques ou administratives(exemple de la filière plomb à Marcoule) , notamment du fait qu'il est demandé que le produit recyclé soit utilisé dans le secteur nucléaire.

Gestion des matériaux issus du démantèlement



- Des installations pour recycler ou stocker en conventionnel **fonctionnent:**

En Suède – Allemagne – GB (acier, plomb, cuivre, décharges)

- Chaque pays a sa réglementation avec plus ou moins de contraintes mais **il y a harmonisation sur deux points :**
 - Une définition des substances non radioactives,
 - Des critères d'acceptation dans des filières de recyclage très voisins pour les radio nucléides fondamentaux

- Une définition claire des substances non radioactives => « pratiques intrinsèquement sûres »
- Volonté des différents pays européens de converger vers règle commune.
- Un élargissement aux industries à radioactivité naturelle renforcée
 - ❖ mais avec des critères de dose 100 fois moins contraignants.

Rapport Plan National Gestion Matériaux Déchets Radioactif 2012:

« Areva, CEA et EDF notent que, contrairement à la réglementation européenne, le cadre réglementaire français ne donne pas de critères permettant de développer les moyens de traiter des déchets pour les décontaminer puis pour les valoriser dans le domaine conventionnel. Ces conditions actuelles limitent les possibilités de recyclage des déchets générés lors des opérations de démantèlement et de maintenance et contraignent leur stockage »

- Les grands chantiers de démantèlement sont à venir en France , et une optimisation technico/économique des réglementations et procédés serait utile.
- La réglementation européenne évolue dans ce sens avec la détermination de seuils de libération ou de réutilisation des matériaux en évolution et en convergence, au moins sur les principes.

Classification française des déchets radioactifs .

1. Le niveau de radioactivité

Il s'exprime généralement en Becquerels (Bq) par gramme ou par kilogramme. Egalement appelé activité, le niveau de radioactivité correspond au nombre de transmutations par seconde d'éléments radioactifs (radionucléides) contenus dans les déchets. On distingue 4 niveaux d'activités différentes : haute activité (HA), moyenne activité (MA), faible activité (FA) et très faible activité (TFA).

2. La période de décroissance radioactive

Elle s'exprime en années, jours, minutes ou secondes. Egalement appelé demi-vie, elle quantifie le temps au bout duquel l'activité initiale d'un radionucléide est divisée par deux.

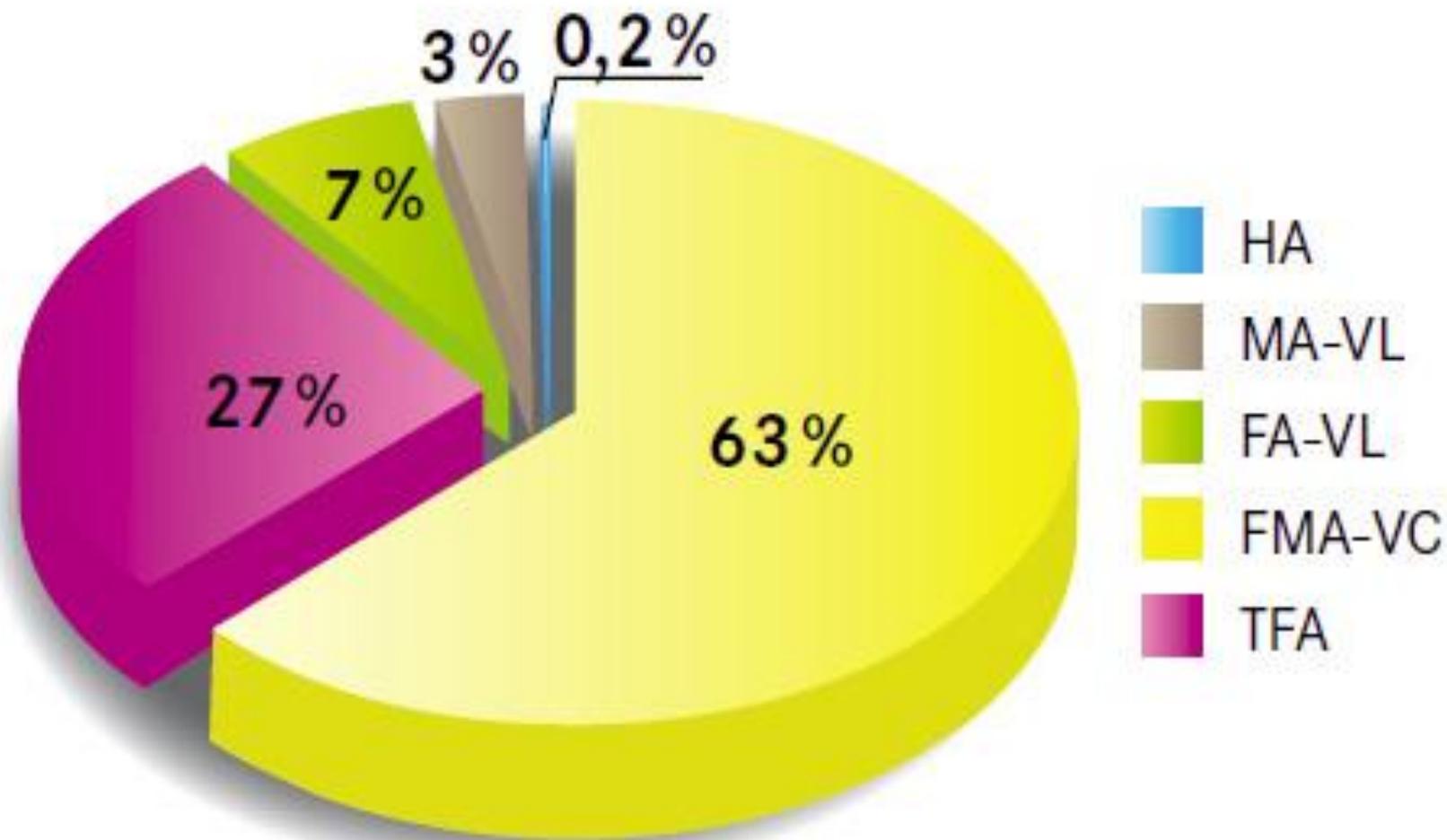
On distingue les déchets dont les principaux radionucléides ont une période courte (inférieure ou égale à 31 ans) et ceux de période longue (supérieure à 31 ans).

On notera le cas particulier des radionucléides utilisés pour les besoins de diagnostic en médecine, de durée de vie "très courte", c'est-à-dire dont la période est inférieure à 100 jours. Il suffit de les entreposer. Au bout d'un temps réduit, leur radioactivité atteint des niveaux très faibles.

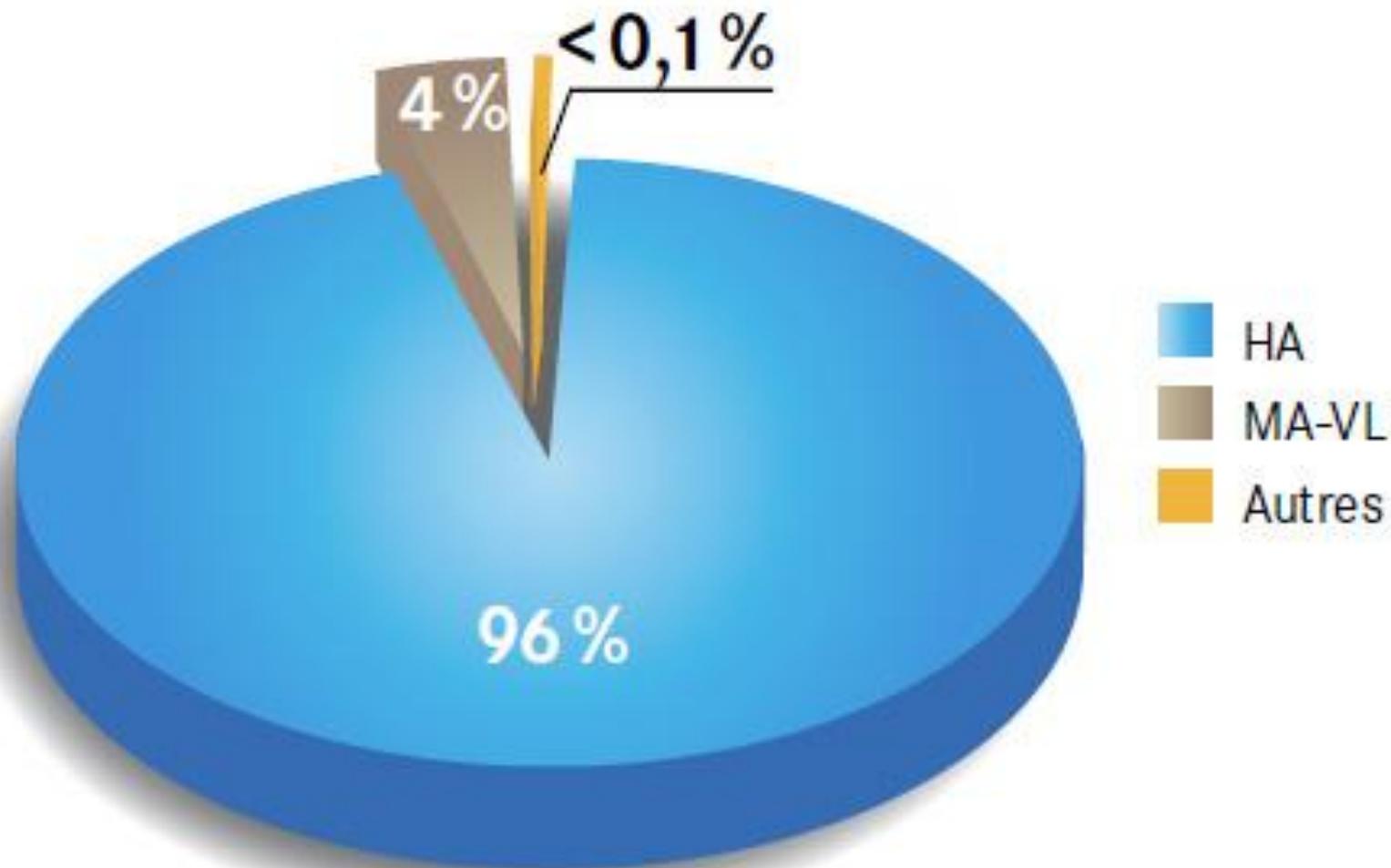
BILAN DU CLASSEMENT ET DE LA DESTINATION DES DÉCHETS EN FRANCE

PÉRIODE 			
	Vie très courte (Période < 100 jours)	Vie courte (Période ≤ 31 ans)	Vie longue (Période > 31 ans)
ACTIVITÉ 	Gestion par décroissance radioactive sur le site de production puis évacuation dans les filières conventionnelles	Stockage de surface <i>(Centre industriel de regroupement, d'entreposage et de stockage - Cires)</i>	
		Stockage de surface <i>(Centre de stockage de l'Aube - CSA)</i>	Stockage à faible profondeur <i>(à l'étude dans le cadre de la loi du 28 juin 2006)</i>
	Haute activité (HA)		Stockage réversible profond <i>(à l'étude dans le cadre de la loi du 28 juin 2006)</i>

RÉPARTITION, FIN 2010, DES VOLUMES DE DÉCHETS RADIOACTIFS PRODUITS EN FRANCE



LES 3,2 % DE DECHETS HA+ MA-VL CONCENTRENT 99,9 % DE LA RADIOACTIVITÉ TOTALE PRODUITE



LES DÉCHETS HAUTE ACTIVITÉ

- Ils proviennent pour l'essentiel du traitement des combustibles utilisés dans les centrales nucléaires françaises. Lors de ce traitement, les combustibles nucléaires usés sont dissous dans une solution chimique afin de séparer l'uranium et le plutonium des résidus non réutilisables. Ces résidus, hautement radioactifs, constituent les déchets de haute activité.
- Ils représentent environ 4 % du combustible utilisé par poids. Ils sont composés de produits de fission (exemple : césium 134 et 137, strontium 90), de produits d'activation (comme le cobalt 60) et d'actinides mineurs (exemple : curium 244 et américium 241). Ces déchets rassemblent la plus grande partie (environ 96%) de la radioactivité des déchets radioactifs produits en France.
- Le démantèlement ne génère pas de déchets haute activité.

- Fin 2010, les déchets HA représentent 2.700 m³, avec une augmentation de 130 m³ par an.
- Les déchets sont intégrés dans une pâte de verre dont la capacité de confinement est particulièrement élevée et durable. Ils sont ensuite coulés dans un colis en inox, soudé et étanche. Un colis de déchets HA contient environ 400 kg de verre pour environ 70 kg de déchets.
- En attendant la création du stockage profond, ces colis sont actuellement entreposés sur les sites où ils sont produits. Ceci permet aussi une décroissance de leur puissance thermique.



LES DÉCHETS DE MOYENNE ACTIVITÉ À VIE LONGUE (MA-VL)

- Lors du traitement des combustibles à l'usine AREVA NC de La Hague. Les structures métalliques entourant ces combustibles sont cisailées en petits tronçons afin de les séparer des matières et des résidus qu'elles contiennent. Ces débris métalliques (gainés, coques et embouts) constituent une part importante des déchets MA-VL.
- Les déchets MA-VL peuvent également provenir des procédés de traitement des combustibles usés. Il peut aussi s'agir de composants (hors combustible) ayant séjourné dans les réacteurs nucléaires ou de déchets issus d'opérations de maintenance et de démantèlement d'installations nucléaires, d'ateliers, de laboratoires...

- Fin 2010, les déchets MA-VL représentent 40 000 m³ , avec une prévision de 500 m³ supplémentaire par an.
- Afin de réduire leur volume, une part importante des déchets MA-VL est compactée sous forme de galettes qui sont ensuite introduites dans des colis en béton ou en métal. D'autres modes de conditionnement peuvent être réalisés en fonction de la nature de ces déchets : cimentation, bitumage, vitrification...
- En attendant la création du stockage profond, ils sont entreposés, le plus souvent sur les sites où les colis sont produits. Ils auront ensuite le même lieu de stockage que les déchets HA



Colis métallique contenant plusieurs galettes de déchets MA-VL



Conteneur de stockage MA-VL



- Les déchets de faible et moyenne activité à vie courte sont essentiellement des déchets liés à la maintenance (vêtements, outils, gants, filtres...) et au fonctionnement des installations nucléaires (traitements d'effluents liquides ou gazeux). Ces déchets sont également issus de laboratoires de recherche, d'hôpitaux, d'universités... et bien sûr d'opérations d'assainissement et de démantèlement.
- Les déchets FMA-VC contiennent essentiellement des radionucléides à vie courte (exemple : cobalt 60, césium 137). Ils peuvent également contenir des radionucléides à vie longue sous forme de traces.



- Fin 2010, les déchets FMA-VC représentent 830 000 m³ , avec des prévisions d'augmentation lors des campagnes de démantèlement. (10 à 20 000 m³ supplémentaires par an ?).
- Après avoir été stockés, dans le passé, au Centre de stockage de la Manche, aujourd'hui fermé et surveillé par l'ANDRA, les déchets FMA-VC sont aujourd'hui accueillis dans un centre exploité par l'ANDRA dans le département de l'Aube depuis 1992 . Un peu plus de 10 000 m³ y sont stockés chaque année.
- Avant leur stockage, les déchets FMA-VC sont solidifiés s'ils sont liquides. Ils peuvent également être compactés pour réduire leur volume.
- Ils sont en général placés dans un conteneur en métal ou en béton puis enrobés avec du béton.
- Un colis de déchets FMA-VC est composé de 15 à 20 % de déchets radioactifs et de 80 à 85 % d'enrobage.

LES DÉCHETS FAIBLE ACTIVITÉ À VIE LONGUE

- Les déchets de faible activité à vie longue, dits déchets FA-VL, sont des déchets dont l'activité est faible par comparaison aux autres déchets radioactifs.(0,01% de la radioactivité totale. Ils sont "à vie longue" car ils contiennent des éléments radioactifs dont la décroissance est lente.
- Ce sont des déchets « historiques » produits dans diverses activités. On y retrouve des déchets radifères (contenant du radium) et du graphite de la filière UNGG. L'essentiel de ces déchets est déjà produit ; leur production s'est arrêtée ou doit s'arrêter. D'autres déchets FA-VL existent tels que d'anciens objets radioactifs à usage familial (ex : fontaine au radium), certaines sources scellées usagées (paratonnerres, détecteurs d'incendie...), certains déchets bitumés (boues radioactives séchées enrobées dans du bitume).
- Aujourd'hui, les déchets FA-VL déjà produits(87000 m³ en 2010) sont entreposés sur leurs sites de production ou sur des sites ayant accueillis des activités utilisant historiquement la radioactivité. Ils sont recensés et localisés en détail dans l'Inventaire national des matières et déchets radioactifs publié par l'ANDRA.

LES DÉCHETS DE TRES FAIBLE ACTIVITÉ

- Les déchets de très faible activité proviennent essentiellement du fonctionnement et du démantèlement des installations nucléaires. Ils proviennent également d'industries classiques utilisant des matériaux naturellement radioactifs (chimie, métallurgie, production d'énergie...).
- Certains déchets TFA sont issus de l'assainissement et de la réhabilitation d'anciens sites pollués par la radioactivité. Ils se présentent généralement sous la forme de déchets inertes, béton, gravats, terres..., ou de déchets métalliques.
- Dans les prochaines années une grande partie des déchets TFA proviendra du démantèlement des centrales nucléaires actuellement en fonctionnement ou des usines du cycle du combustible nucléaire.
- Leur niveau de radioactivité est en général inférieur à 100 becquerels par gramme. Ils contiennent des radionucléides à vie courte et/ou à vie longue.



- Fin 2010, les déchets TFA représentent 360 000 m³ soit 27% du volume pour moins de 0,01% de la radioactivité.
- Les prévisions sont en très forte hausse, à cause du démantèlement (1 300 000 m³ en 2030!).
- Depuis 2003, les déchets TFA sont stockés dans un centre dédié, exploité par l'ANDRA dans le département de l'Aube, premier centre de stockage au monde pour ce type de déchets. Entre 20 000 et 30 000 m³ y sont stockés chaque année.
- En fonction de leur nature, les déchets TFA sont au préalable conditionnés dans des big-bags, essentiellement pour faciliter leur manutention, ou dans des casiers métalliques. Certains de ces déchets peuvent faire l'objet d'un traitement spécifique : compactage des déchets plastiques et métalliques pour réduire leur volume ; solidification puis stabilisation des déchets liquides tels que les eaux polluées ou les boues.

Les sciences du démantèlement pour optimiser le passage de l'objet de démantèlement à l'état final.

- Pas de dilution. Tout est répertorié , traité et stocké,.
- Classement de chaque produit avec la solution technique qui lui convient en fonction de sa période et de son activité.

Mais qui posent des problèmes techniques à l'origine des sciences du démantèlement, que l'on peut regrouper en cinq grands thèmes.

- Le couple historique/calculs ne permet pas de connaître suffisamment précisément l'état radiologique d'une installation.
- Des mesures sont nécessaires: il faut les miniaturiser, pouvoir les effectuer en local, avoir une sensibilité suffisante, etc..
d'où un premier champ de R&D : gamma camera, alpha camera, imageurs neutrons, films pour auto radiographie , libs (tir laser),etc ..
- Le nombre de mesures est fini , d'où une approche géostatistique pour estimer l'ensemble en 3D , y compris dans l'épaisseur, et caractériser de manière finale le site avec une estimation des déchets à produire.

LE TRAVAIL À DISTANCE EN MILIEU HOSTILE

- Les débits de dose peuvent être importants et nécessiter un travail à distance.(milieu hostile)
- D'où un premier champ de R&D sur la robotique, pour intervention à distance. (découpe, décapage, etc..)
- Il faut anticiper les chantiers . Pour cela on effectue une simulation virtuelle 3D de l'installation (avec les plans disponibles, ou par mesures laser). On y implante les résultats de mesure et les outils d'évaluation dosimétrique. On y implante aussi la géométrie des instruments à utiliser. Ceci permet de simuler le déroulement possible du chantier, le temps nécessaire et les doses reçues (principe ALARA)
- Les cas accidentels peuvent entrainer de fortes demandes en robotique

- Il est intéressant de décontaminer les surfaces pour minimiser le déchet final et rendre le chantier moins dosant.
- Toute une R&D existe sur le sujet : la chimie du décapage , l'utilisation de mousses et gels spécifiques, le décapage par des fluides super critiques (eau ou CO₂),...
- Il faut aussi décontaminer les sols avec des techniques spécifiques aux grands volumes (techniques de flottation et même, techniques de phyto remédiation par les plantes)

- Il est intéressant de pouvoir séparer des éléments radioactifs en proportion souvent infime, pour minimiser le déchet final.
- Dans les liquides en particulier, une R&D est effectuée pour extraire de manière sélective certains produits comme par exemple le césium.(filtration, membranes, sorption sur solides, co-précipitation, etc..)
- Dans les solides certains procédés ont aussi été développés.(y compris par fusion ou par utilisation d'eau hyper critique pour les produits organiques)

LA PRÉPARATION DU DÉCHET ULTIME

- Il faut gérer les phases gazeuses durant le chantier (confinement et extraction) et dans les colis (radiolyse)
- Il faut supprimer les phases liquides (cimentation, calcination, évaporation, ..)
- Il faut mettre au point les méthodes de fabrication des déchets solides: vitrification plasma pour certains déchets, formulation des confinements cimentaires, développement de Ge polymères pour le confinement de déchets spéciaux ,p.ex. déchets magnésiens.
- Il faut justifier la tenue du colis par rapport au temps de stockage prévu (études de vieillissement, etc..) et aussi parfois pouvoir le caractériser lorsqu'il est terminé (radiographie, neutronographie, etc..)

- L'activation et la contamination sont les principaux mécanismes conduisant à la production de matériaux radioactifs dans les installations en fonctionnement. La radioactivité restante au moment du démantèlement et après évacuation des cœurs, ne représente qu'environ 0,1% de la radioactivité totale.
- L'approche multibarrière suivie pour la conception des installations, le zonage et le maintien à «l'état propre », permettent de démanteler une grande partie de l'installation de manière conventionnelle. (50 à 80%)
- C'est à l'intérieur des zones « susceptibles de contamination ou d'activation », qu'une optimisation technico/économique est à effectuer pour le traitement des matériaux.
- Les sciences du démantèlement sont développées pour permettre de traiter et transformer ces matériaux conformément aux normes réglementaires.