

The logo for IRSN, featuring the letters 'IRSN' in a bold, sans-serif font. The 'I' and 'R' are red, while the 'S' and 'N' are blue.

INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

# Éléments de réflexion sur la gestion du tritium produit par les installations nucléaires

F. Besnus & M. Philippe, IRSN/DSU

Journées tritium SFRP

23-24 septembre 2009 - UIC - Paris

# Eléments de réflexion sur la gestion du tritium produit

- **Déchets tritiés ? Des produits contenant du tritium « sans emploi »**
  - Sous forme d'effluents
    - Réacteurs de puissance
    - Usines de traitement des combustibles usés
    - Centres CEA et réacteurs dédiés à la production de tritium
    - Industriels, petits et futurs utilisateurs
  - Sous forme solide
    - Entreposages de déchets et centres de stockage
- **Paramètres clés pour une gestion globale**
  - La nature liquide ou gazeuse des effluents et leur concentration
  - La possibilité de capturer et confiner le tritium vs rejets
  - Les facteurs qui gouvernent l'impact

# Rejets de tritium dans les CNPE en exploitation

## ■ Sources de production du tritium (directes et indirectes)

- Formation dans le circuit primaire par activation neutronique du bore 10 utilisé comme poison neutronique sous forme d'acide borique
  - $^{10}\text{B} (n, 2\alpha) \rightarrow ^3\text{H}$  (86 % de la production par cycle)
- Formation dans le circuit primaire par activation neutronique du lithium 6 introduit sous forme de lithine (LiOH)
  - $^6\text{Li}(n, \alpha) \rightarrow ^3\text{H}$  (14 % de la production)
  - $^7\text{Li}(n, \alpha n) \rightarrow ^3\text{H}$  (moins de 1 % de la production)
- Formation par fission de l'U et du Pu du combustible (le tritium reste confiné en quasi-totalité dans l'oxyde combustible et la gaine)
  - $^{235}\text{U} + n \rightarrow X + Y + ^3\text{H}$  (moins de 0,01 % de la production)
- Production par les grappes sources neutroniques secondaires (Sb-Be) des paliers 1300 MWe et 1450 MWe (entre 4 et 12 TBq/an/tranche)

## ■ Production de tritium : 2 paramètres influents

- Energie produite par le réacteur
- Mode de gestion du combustible (↗  $^{235}\text{U}$  (HTC)  $\Rightarrow$  ↗  $^{10}\text{B}$  pour compenser la réactivité d'où plus de tritium produit)

# Rejets de tritium dans les CNPE en exploitation

## ■ Stratégie de gestion des effluents tritiés dans les CNPE

- Rejet chaque année de tout le tritium produit dans l'année dans le circuit primaire par l'intermédiaire du circuit TEP
- Recyclage des effluents primaires tritiés uniquement en cas de difficultés liées aux conditions de rejets pendant les périodes d'étiage ou de crue
- Effluents tritiés rejetés (moyenne parc) : 10 000 à 12 000 m<sup>3</sup>/tr/an à ~10<sup>6</sup> Bq/L

## ■ Ordre de grandeur moyen actuel des rejets de tritium des CNPE

- Rejets liquides : entre 10 et 30 TBq/tranche/an selon palier
- Rejets gazeux entre 0,2 et 1,3 TBq/tranche/an selon palier

## ■ Impact des rejets de tritium sur le public

- Calculs de dose réalistes pour les groupes de référence au voisinage des centrales
  - < 1 µSv/an pour l'ensemble des radionucléides dont ~0,1 µSv/an pour le tritium
  - Impact rejet <sup>3</sup>H gaz = ~ 100 x impact rejet <sup>3</sup>H liquide à quantité égale (pour les centrales au bord de fleuves à grands débits)

## ■ Réduction de la production de tritium par les CNPE

- Peu de moyens et gains faibles (lithium enrichi en <sup>7</sup>Li, bore enrichi en <sup>10</sup>B, suppression des grappes sources...)

# Rejets de tritium dans les usines de retraitement

## ■ Principales voies de formation du tritium en réacteur

- fission ternaire directe :  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$  ( $\approx 80\%$ )
- fission ternaire indirecte :  $^6\text{He} (\beta^-) \Rightarrow ^6\text{Li}(n, ^3\text{H}) \Rightarrow \text{He}$  ( $\approx 10\%$ )
- réaction (n,p) sur le  $^3\text{He}$  ( $\approx 5\%$ )

Source : combustible UOX TC = 33 000 MWj/t Ei = 3,25 %

## ■ Calculs d'évolution CESAR : UOX TC 45 GWj/t Ei 3,7 % Tr 4 ans $^3\text{H} \sim 23 \text{ TBq/tUi}$

## ■ Comportement du tritium lors du traitement

- Répartition du tritium entre gaine et combustible 60/40 (mais rapport s'inverse avec le taux de combustion), les coques contenant le tritium étant ensuite compactées (colis CSD-C)
- Fraction de tritium rejetée en mer  $\sim 99,5\%$  (quasi-intégralité de la fraction contenue dans le combustible)  $\Rightarrow$  l'activité rejetée en mer a tendance à augmenter avec le taux de combustion des combustibles traités
- Fraction de tritium rejetée sous forme gazeuse  $\sim 0,5\%$

## ■ Conception usine : confinement du tritium en tête d'usine dans la zone dite « tritiée » et maintien dans un flux dilué avant rejet en mer pour :

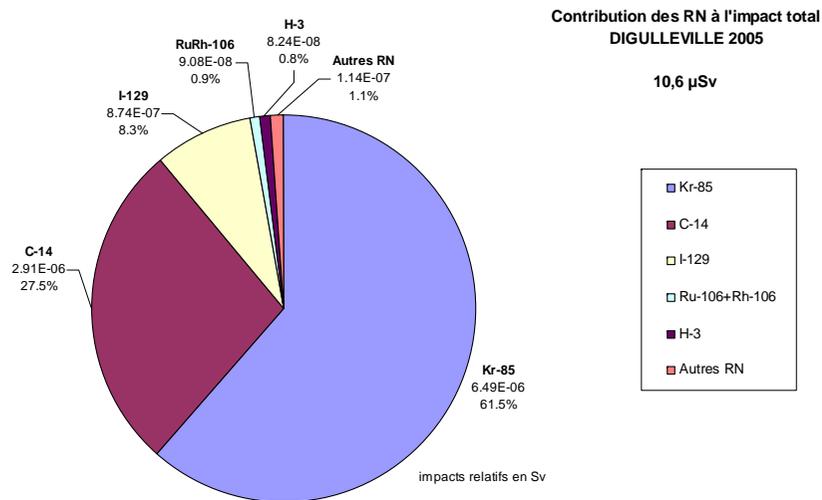
- limiter le risque de contamination des travailleurs
- minimiser les rejets gazeux
- favoriser la dilution dans les rejets en mer pour réduire au maximum l'impact

## Rejets de tritium dans les usines de retraitement

- Moyenne rejets  $^3\text{H}$  liquide pour 1 100 t traitées/an  $\sim 12\,000$  TBq/an  
Moyenne rejets  $^3\text{H}$  gaz pour 1 100 t traitées/an  $\sim 70$  TBq/an
- Dilution et flux important  $\Rightarrow$  38 g de  $^3\text{H}$  soit 250 g de HTO dans 40 000 m<sup>3</sup> d'eau (flux annuel) soit une dilution de 1/160 000 000 d'où activité volumique  $\sim 3 \cdot 10^8$  Bq/L
- Conditions de dispersion autour de La Hague et modes de vie locaux  
 $\Rightarrow$  Impact rejet  $^3\text{H}$  gaz = 1000 x impact rejet  $^3\text{H}$  liquide à quantité égale
  - Rejet de 1 TBq gazeux :  $10^{-3}$   $\mu\text{Sv}/\text{an}$  (groupe terrestre)
  - Rejet de 1 TBq liquide :  $10^{-6}$   $\mu\text{Sv}/\text{an}$  (groupe marin)
- Le rejet en mer est privilégié compte tenu de la dilution (FD=0,76 Bq/m<sup>3</sup> par TBq/an rejeté)

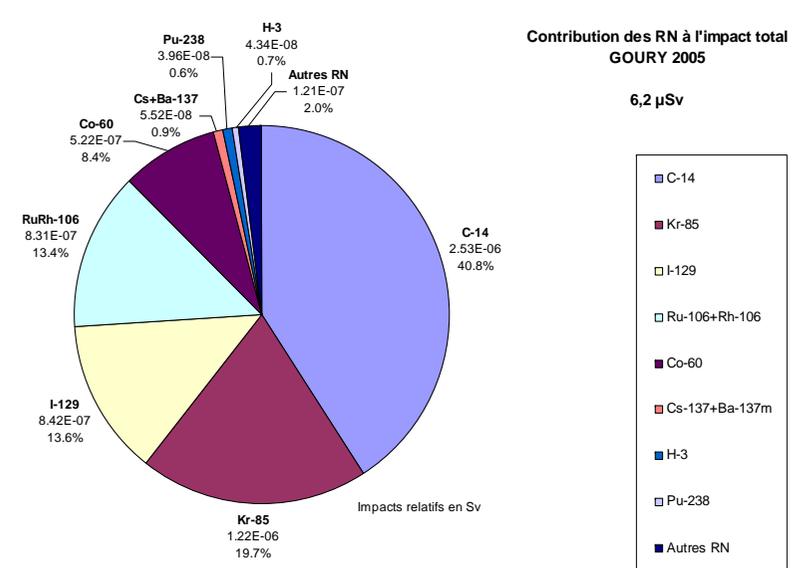
# Impact des rejets liquides et gazeux du site de La Hague

## Impact des rejets gazeux



Tritium : 0,8 % de l'impact 2005 sur Digulleville  
Ordre de grandeur conservé / année

## Impact des rejets liquides



Tritium : 0,7 % de l'impact 2005 sur Goury  
Ordre de grandeur conservé / année

# Bilan des rejets tritium sur les centres CEA

- **Rejets tritium gaz** ⇒ essentiellement Valduc, Marcoule et BIII
  - Marcoule ~350 TBq/an (liés uniquement au fonctionnement des réacteurs Célestins et de l'ATM)
  - Valduc ~250 TBq/an (liés essentiellement au traitement des déchets solides tritiés et à leur entreposage)
  - BIII ~ 50 TBq/an (liés essentiellement au dégazage des bâtiments et des colis de déchets conditionnés)
- **Retour d'expérience de Valduc et stratégie de diminution des rejets en  $^3\text{H}$  gaz**
  - Importante décroissance des rejets depuis les années 1970 (facteur 100) liée à l'amélioration du confinement du procédé et à l'ajout de modules de détritiation, malgré l'entreposage des déchets produits sur site
  - Le traitement des déchets constitue la principale source de rejets mais seuls les déchets tritiés de forte activité sont traités pour diminuer l'impact des rejets (découpe, étuvage et fusion avec détritiation, récupération HTO sur zéolithes entreposées en fûts étanches et BAG en attente de recyclage)
  - L'impact des entreposages de déchets de faible et moyenne activité reste faible
    - Entreposage déchets MA < 50 MBq/j.colis
    - Entreposage déchets FA < 2 MBq/j.fût (après traitement déchets)
  - Taux de dégazage enveloppe pour fûts conventionnels ~ 1 %.an<sup>-1</sup>

## Rejets annuels en tritium pour les principaux exploitants nucléaires

|                                    | Moyenne actuelle des rejets en tritium                      |  |
|------------------------------------|---|--|
|                                    | Rejets liquides TBq/an<br>(exutoire mer, fleuve ou rivière) | Rejets gazeux TBq/an<br>(exutoire terrestre) |
| La Hague                           | 12 000  | 70   |
| Parc EDF (19 sites) <sup>(1)</sup> | 1000  | 30   |
| Centres CEA                        | 20 <sup>(2)</sup>   | 700 <sup>(3)</sup>                           |

(1) 34 réacteurs 900 MWe, 20 réacteurs 1300 MWe et 4 réacteurs 1450 MWe

(2) dont 99 % pour le centre de Marcoule

(3) dont 85 % pour les centres de Marcoule et Valduc

# Evaluation des procédés de récupération et d'immobilisation du tritium

- Il ne suffit pas de séparer et concentrer le tritium, il faut aussi le gérer en aval c.a.d. le conditionner pour l'entreposer puis le stocker
- Rappel des données de base
  - Usine de traitement 40 000 m<sup>3</sup>/an ~10<sup>8</sup> Bq/L en <sup>3</sup>H
  - CNPE 10 000 m<sup>3</sup>/tr/an ~10<sup>6</sup> Bq/L en <sup>3</sup>H
- Piégeage du tritium : nombreuses voies possibles
  - Réduction ou concentration du flux à traiter / procédés de concentration en tritium
    - Procédé TRILEX (barrage tritium et zone tritiée) : limitation des apports d'eau et recyclage maximum des eaux tritiées dans le procédé
    - Voloxydation (chauffage du combustible à 500° C avec gaz oxydant)
    - Distillation sous vide
    - Echange catalytique
      - Vapour Phase Catalytic Exchange (VPCE)
      - Liquid Phase Catalytic Exchange (LPCE)
      - Combined Electrolysis and Catalytic Exchange (CECE)
    - Electrolyse directe
    - Distillation cryogénique
    - Autres : diffusion membranaire, séparation par laser, séparation sur résines, décomposition ou transfert chimique...

# Evaluation des procédés de récupération et d'immobilisation du tritium

## ■ Piégeage du tritium : nombreuses voies possibles (suite)

### ■ Mais, à l'heure actuelle

- faibles facteurs de séparation ou de concentration (en général  $< 10$ ) nécessitant un nombre d'étages théoriques très important et une taille d'installation rédhibitoire
- Procédés envisageables que pour de faibles volumes d'effluents de concentrations élevées en tritium et purifiés ( $>> 1 \text{ TBq/m}^3$ )
- Procédés non éprouvés à l'échelle industrielle ou dans le domaine nucléaire (excepté distillation et échange catalytique) et nécessitant des équipements complexes
- Procédés très « gourmands » en consommation d'énergie (électrolyse...) et ressources

+

- Augmentation du niveau de risques (contamination/dissémination (fuites procédé), risque hydrogène/explosion, réactifs toxiques et corrosifs, rejets gazeux en fonct. normal plus importants, terme source en situation accidentelle très élevé...)
- Problèmes de radioprotection (augmentation des risques d'exposition par inhalation, pénétration cutanée...)  $\Rightarrow$  incidence forte sur la conception de l'installation et les procédures opératoires (manipulation à distance, ventilation/détritiation, limitation de la concentration en  $^3\text{H}$  des flux à traiter, protection individuelle...)
- ...

## ■ Entreposage des effluents liquides tritiés pour décroissance avant rejet ( $T_{1/2}$ 12,4 ans)

- difficilement envisageable compte tenu des volumes en jeu et de la durée d'entreposage nécessaire (terme source important, risques d'augmentation des rejets gazeux donc de l'impact potentiel sur le site, ventilation complexe...)

# Evaluation des procédés de récupération et d'immobilisation du tritium

## ■ Conditionnement pour décroissance ou stockage :

- Le choix de la méthode de conditionnement dépend de l'activité spécifique en tritium du produit ou de l'effluent (par exemple, conception des conteneurs de stockage...)
- Plusieurs voies possibles
  - Bouteilles pour HT ou HTO de haute activité spécifique
    - Nécessité d'un confinement supplémentaire (conteneur étanche...)
    - Difficulté pour garantir la tenue de l'étanchéité dans le temps (production He, radiolyse, fragilisation des aciers...)
  - Agents desséchants ou adsorbants solides (silica gel, tamis moléculaires, zéolithes...)
    - nécessite de les placer en conteneur étanche (échange avec eau  $10^{-3}$  à  $10^{-4}$  j<sup>-1</sup>)
    - plus adapté au stockage, transport de petites quantités de tritium recyclables
  - Ciments hydrauliques
    - Difficulté dans le choix et la mise au point d'une matrice « confinante » (taux relâchement enveloppe  $10^{-2}$  an<sup>-1</sup>)
    - nécessite un surconteneurage ou surenrobage (enveloppes étanches en acier, résines époxyde...)
    - REX du CSM (relâchement rapide de tritium peu de temps après la fermeture des ouvrages monolythes béton armé les plus récents)
  - Hydrures métalliques (ZrH<sub>2</sub>)
    - Faible taux de relâchement mais faible capacité de fixation (max 18 g H/kg de Zr)
    - Nécessite une électrolyse en amont (conversion HTO en HT pour charger le métal)
    - plus adapté au stockage, transport de petites quantités de tritium recyclables

# Les déchets tritiés

- **Problématique du tritium dans les centres de stockage**
  - Particularités du tritium : très grande mobilité et confinement relatif d'où impact fort sur les modes de gestion des déchets
  - REX CSM
    - Marquage de la nappe phréatique (relargage rapide du tritium hors des colis)
    - Activité présente dans le stockage en 2003 ~ 300 TBq (pour ~ 900 TBq à réception)
    - Fraction annuelle lixiviée ~  $2 \cdot 10^{-4}$
    - Activité actuellement relâchée par le stockage ~ 40 GBq/an (a décru d'un facteur 900 depuis la mise en place de la couverture)
    - Impact faible (activité de la Ste Hélène ~ 0,6  $\mu$ Sv/an)
  - D'où limitation des spécifications d'accueil du CSFMA (Aube) pour éviter un marquage du site par le tritium
  - Du fait de ces limitations, il reste à ce jour un certain nombre de déchets tritiés sans filière d'élimination définitive
    - ⇒ entreposage de décroissance avant prise en charge par les centres de stockage (solution de référence PNGMDR)

# Les déchets tritiés

## ■ Inventaire des déchets solides tritiés (filières disponibles)

- Stockage de déchets MA-HAVL
  - Inventaire MID Coques & Embouts (colis type B) ~ 40 000 CSD-C à 20 TBq/CSD-C soit ~ 800 000 TBq
  - faible dégazage ( $< 10^{-6} \text{ an}^{-1}$ )
- Centre de stockage des déchets de graphite en sub-surface (à l'étude)
  - ~ 20 000 t de déchets graphite contaminés au  $^3\text{H}$  soit 4 670 TBq (2004)
  - faible dégazage ( $< 10^{-6} \text{ an}^{-1}$ )
- Centre de Stockage de la Manche (CSM)
  - Fin d'exploitation en 1994 et phase de surveillance depuis 2003
  - Inventaire  $^3\text{H}$  initial réactualisé en 2003 : ~ 1000 TBq
- Centre de stockage de déchets de faible et moyenne activité massique et à vie courte de l'Aube (CSFMA)
  - Capacité maximale radiologique : 4 000 TBq (10 g)
  - LMA  $2 \cdot 10^5 \text{ Bq/g}$  - Activité  $< 1 \text{ GBq/fût}$  à compacter - Dégazage  $< 2 \text{ MBq/t/j}$

# Les déchets tritiés

## ■ Déchets tritiés sans filière (« purs » ou « mixtes »)

- Centres CEA ~ 3 500 m<sup>3</sup> et ~ 5 200 TBq (fin 2007)
- Nucléaire diffus (armées, recherche, transport, horlogerie) ~ 50 m<sup>3</sup> et ~ 250 TBq (fin 2007)
- Futurs déchets ITER (stade avant-projet)
  - Décret de création : 4 kg maxi dans l'installation
  - Quantité totale de déchets ~ 35 000 t (20 ans d'exploitation + 20 ans de démantèlement)
  - Classification : 30% TFA, 60% FMA-VC, 10% MA-VL avec quantités très significatives de tritium pour certains déchets (traitement/détritiation)
  - Données rejets atmosphériques et liquides (stade RPRS - évolutions en cours/processus d'optimisation, autorisations de rejets non encore arrêtées)
- Projections de production : plus de 20 000 TBq en 2060

## ■ Projet EDTSF (dossier d'orientation)

- Critères de prise en charge non définis à ce jour pour les futurs centres FMA et TFA
- Entreposage sur 50 ans pour décroissance avant évacuation vers un centre de stockage (solutions techniques connues + prise en compte REX entreposages existants)
- A l'issue des 50 ans, reconduction éventuelle de l'entreposage dans l'entrepôt initial ou dans d'autres modules (avec exigences de sûreté de l'époque)
- Tri et conditionnement des déchets en amont (avec détritiation des déchets les plus chargés)
- Définition du colisage ⇒ standardisation, durabilité et limitation du reconditionnement du stock existant
- Rejets <sup>3</sup>H gazeux estimé 300 TBq/an

# Les effluents liquides de faible concentration

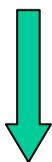
## Production



Parc EDF



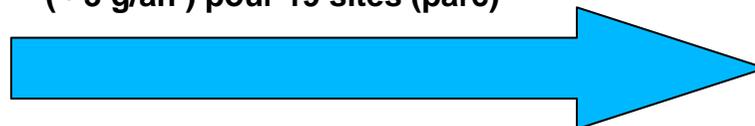
Traitement La Hague



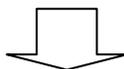
Déchets solides  
(CSD-C)



10 000 m<sup>3</sup>/tr/an – 1000 TBq/an  
(~ 3 g/an ) pour 19 sites (parc)



40 000 m<sup>3</sup> /an – 12 000 TBq (~ 35 g/an)



## Capture <sup>3</sup>H ?

- Difficultés techniques très importantes actuellement
- Investissement considérable + consommation d'énergie
- Risque d'augmentation des rejets gazeux et impact potentiel en cas d'accident
- Risques d'exposition et radioprotection

## Exutoires

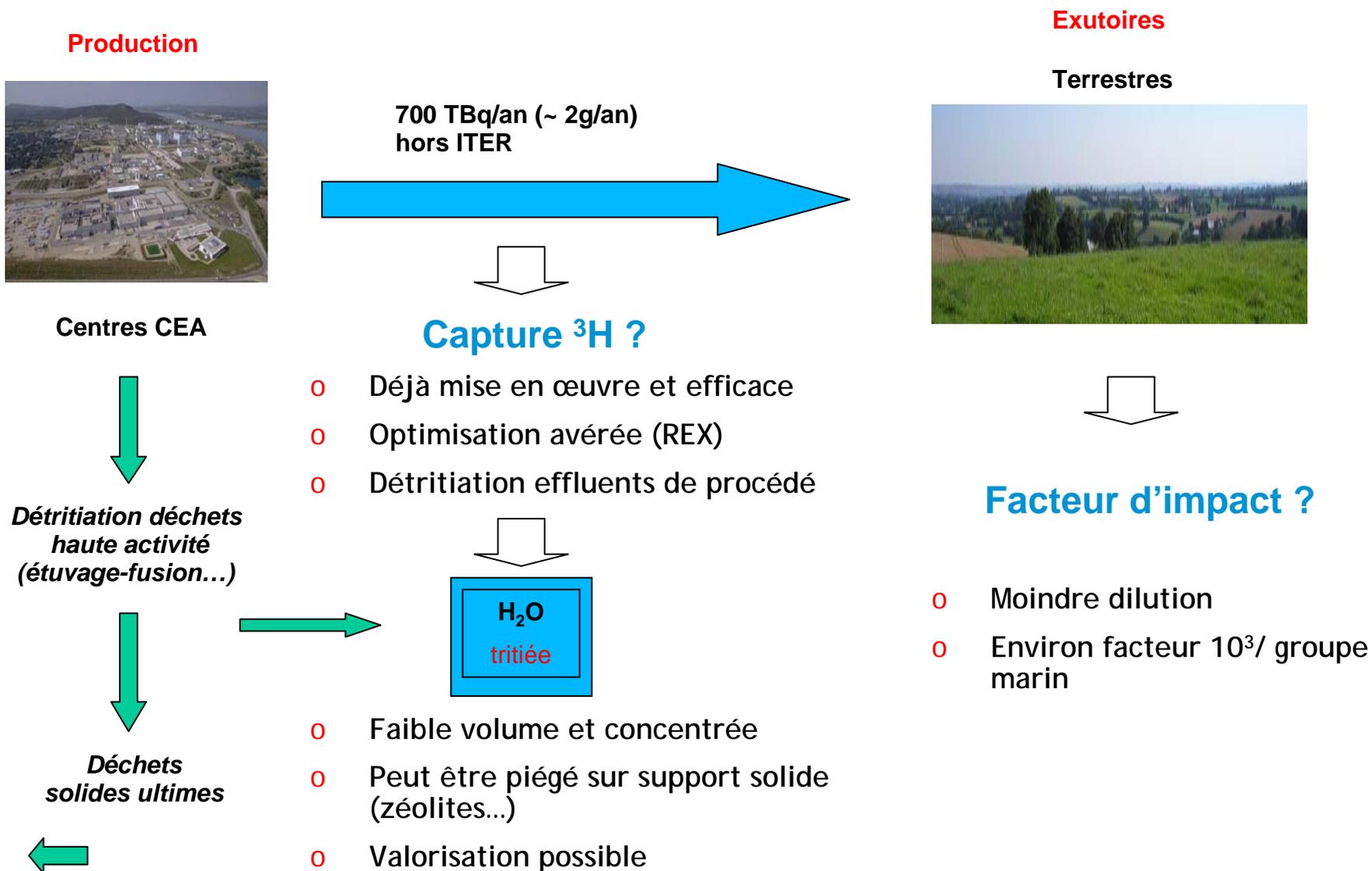
Océan ou fleuves



## Facteur d'impact ?

- Très grande dilution
- La Hague : 10<sup>-6</sup> μ Sv/an par TBq rejeté en mer (groupe marin)  
Impact rejets gazeux 1000 fois plus important
- Faible gain sur l'impact global des sites si capture

# Les effluents gazeux concentrés



# Les déchets solides tritiés

## Production



Retraitement (colis CSD-C)  
~ 850 000 TBq (sur 40 ans)

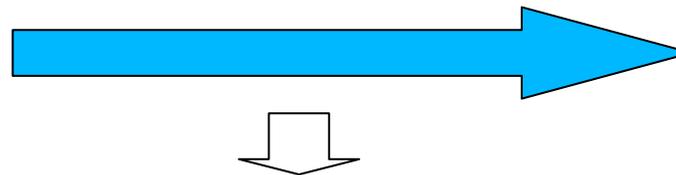
Graphites 1<sup>ère</sup> génération  
~ 4 700 TBq

CSM ~ 6500 TBq

Centres CEA ~ 5 200 TBq

Nucléaire diffus ~ 250 TBq

ITER (futur)



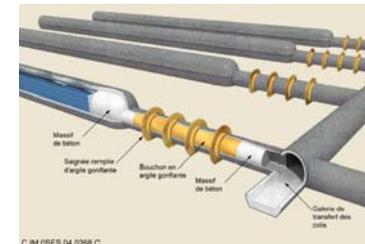
## Confinement <sup>3</sup>H ?

- Faible dégazage CSD-C et Graphites
- Dégazage enveloppe pour autres déchets (hors ITER et selon REX CEA) ~ 1%.an<sup>-1</sup>
- Difficultés pour définir une matrice confinante
- Confinement supplémentaire lié à l'ouvrage de stockage mais difficultés pour garantir l'absence de relâchement

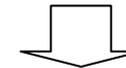
## Exutoires



## Entreposages



## Stockages

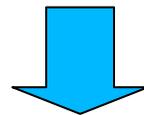


## Facteur d'impact?

- Environnement terrestre pour rejets gazeux
- Faible dilution liée aux rejets dans les nappes et petits ruisseaux
- Incertitudes sur scénarios (impact différé)
- facteur probablement >10<sup>3</sup>/ groupe marin

## Conclusions

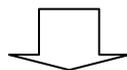
- Des difficultés techniques pour traiter les effluents liquides tritiés faiblement concentrés et de volumes élevés ⇒ absence à ce jour de procédé industriel « raisonnable » permettant de séparer et concentrer le tritium en regard de l'impact des rejets extrêmement réduit compte tenu de la dilution apporté par le milieu récepteur (mer , fleuves)
- Des possibilités de traiter des effluents gazeux concentrés déjà mises en œuvre dans les principales installations concernées avec un retour d'expérience significatif ; la quantité d'eau tritiée concentrée récupérée par détritiation doit toutefois rester faible
- Des déchets solides, des entreposages et des stockages apportant un confinement mais pas de garantie d'absence de rejet dans l'environnement en tout état de cause moins diluant que dans le cas des rejets marins



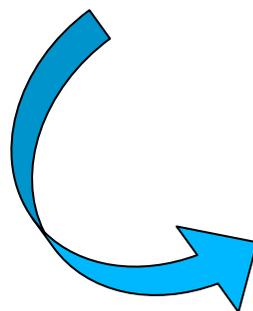
- Une action dans une installation donnée pour traiter des effluents ou des déchets tritiés va entraîner un déplacement du risque (travailleur, public, environnement) qu'il faut évaluer dans un processus d'optimisation
- Toutefois, nécessité d'évaluer tout au long de la durée de vie des installations les évolutions technologiques pour ce qui concerne la séparation, le piégeage et le conditionnement du tritium (loi TSN 2006 ⇒ objectif de maîtrise et de diminution constante des rejets)



# Déplacement du risque



Capture  
100TBq



Entreposage – 1% dégazage

