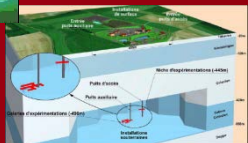
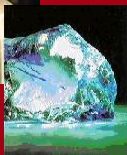


DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE



[www.cea.fr](http://www.cea.fr)

## "La gestion des matières et des déchets radioactifs : état des lieux, enjeux et perspectives"

Société Française de Radio Protection

1 et 2 octobre 2013

### « La recherche sur les déchets nucléaires »

Etienne Y. Vernaz,

Directeur de Recherche

Commissariat à l'Énergie Atomique  
et aux énergies alternatives  
CEA - Marcoule

## Sommaire :

# Les recherches du **D**épartement d'étude du **T**raitement et **C**onditionnement des **D**échets

- La vitrification
- La cimentation
- Les bitumes
- Les coques
- Les traitements thermiques
- La décontamination

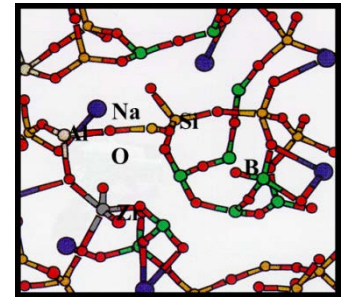
## Sommaire :

- **La vitrification**
- La cimentation
- Les bitumes
- Les coques
- Les traitements thermiques
- La décontamination

- Les solutions de Produits de Fission (PF) représentent le principal déchet radioactif
- La première idée, en Angleterre et en France, a été de les transformer en **matériaux cristallisés** ... mais cette idée est vite apparue irréaliste.
- L'idée de faire un verre a été retenue en France à la fin des années 50.
- Premier verre actif réalisé à Saclay par Roger Bonniaud en **1957**



Mica-phlogopite



**Une nouvelle application du verre était née :  
les verres de confinement.**



# Le procédé Continu de Vitrification

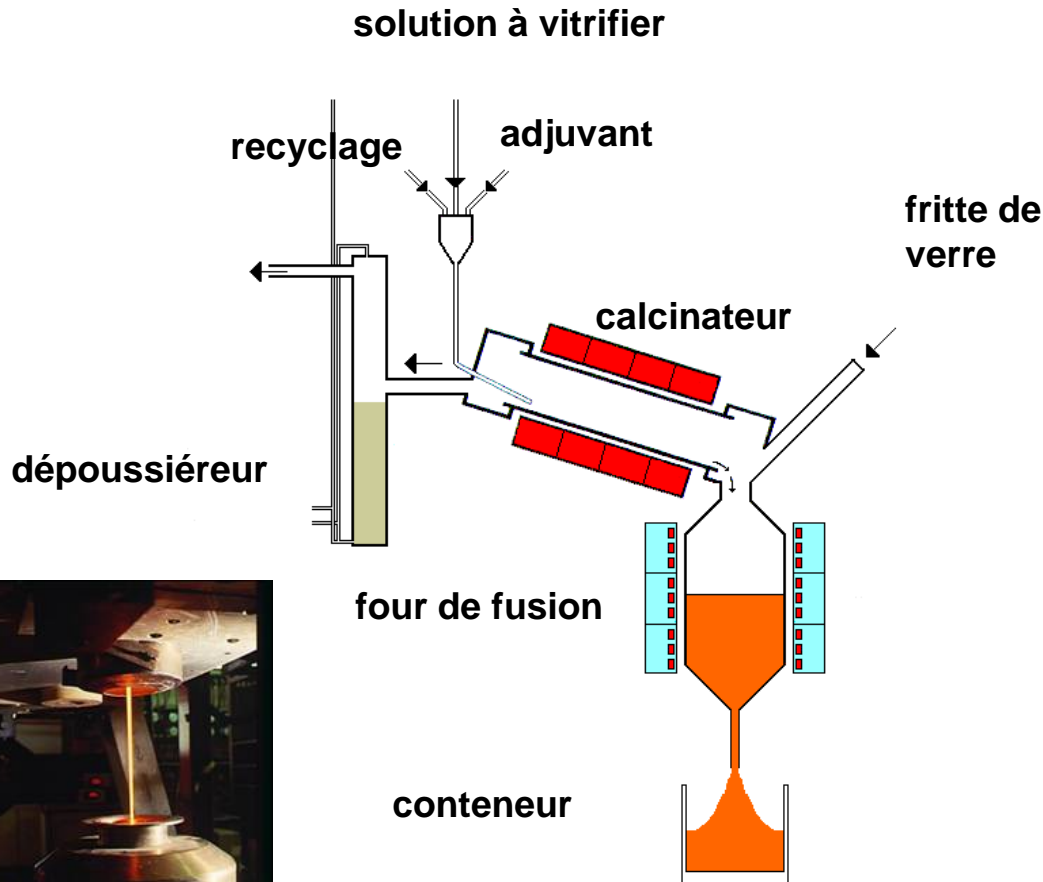
Mise en actif par Areva :

▪ En 1978 de *l'Atelier de Vitrification de Marcoule (AVM)*



En 1989 de *l'Atelier de Vitrification de La Hague (AVH)*

▪ démarrage de R7 en 1989, puis de T7 en 1992

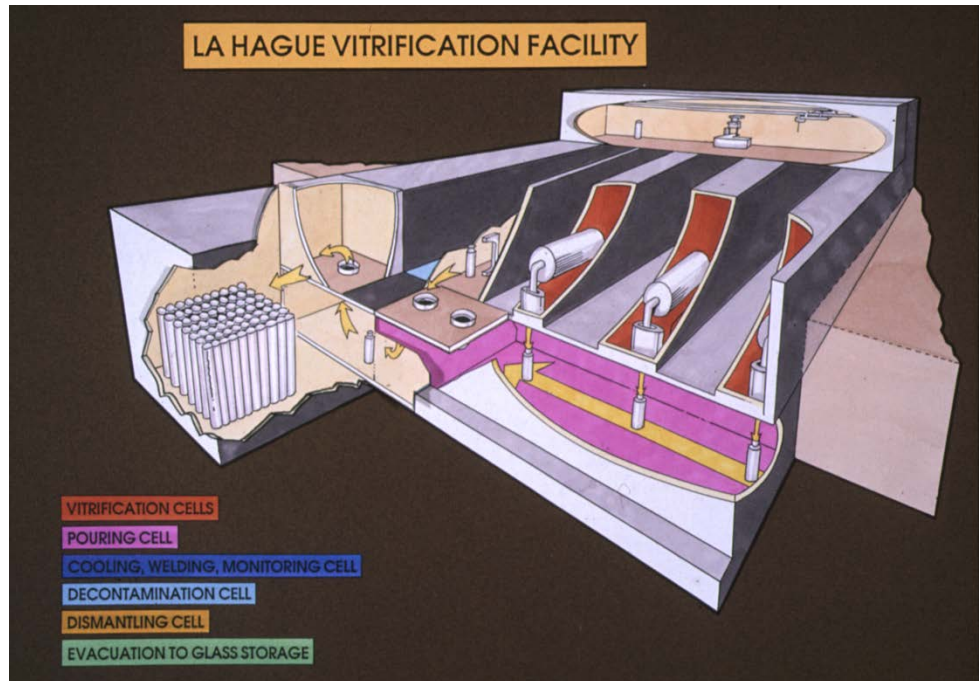


# Vitrification La Hague

6 lignes de vitrification à la Hague:

- 3 à R7
- 3 à T7

## Hot cells vitrification lines





- **A court et moyen terme** : Améliorer les capacités de la vitrification notamment par l'optimisation du creuset chaud et du creuset froid,
  - Vitrification d'effluents particuliers (UMo, MAD, ...)
  - Verre pour haut taux de combustion
  - Soutien Areva à l'export (UK, Japon, Corée, Chine, USA...)
- **A moyen ou long terme** : développement de l'**incinération/vitrification** de déchets de moyenne activité à vie longue ,
  - Réduction du volume des déchets B (MALV)
  - Suppression des organiques au stockage profond
  - Développement de matrices minérales plus performantes (verres, vitrocéramiques, verre-métal)

## Laboratoire de Développement des Matériaux de Conditionnement

**Verre**



**Vitrocristallin**



**Céramique**



**Matrice Mixtes**

**Métal/Verre**





**La formulation d'un verre de déchet est un compromis entre 3 contraintes :**

## 1- Contrainte matériau : Capacité à incorporer tous les éléments dans la structure

Solubilité (Cr, Ru, Rh, Pd, Ce, Pu, SO<sub>4</sub>, Cl)  
Séparation de phase (Mo, SO<sub>4</sub>, Cl, P)  
Dévitrification (Mo, P, F, Mg, ...)  
Maximisation de la charge en déchet

## 2- Contraintes Technologiques

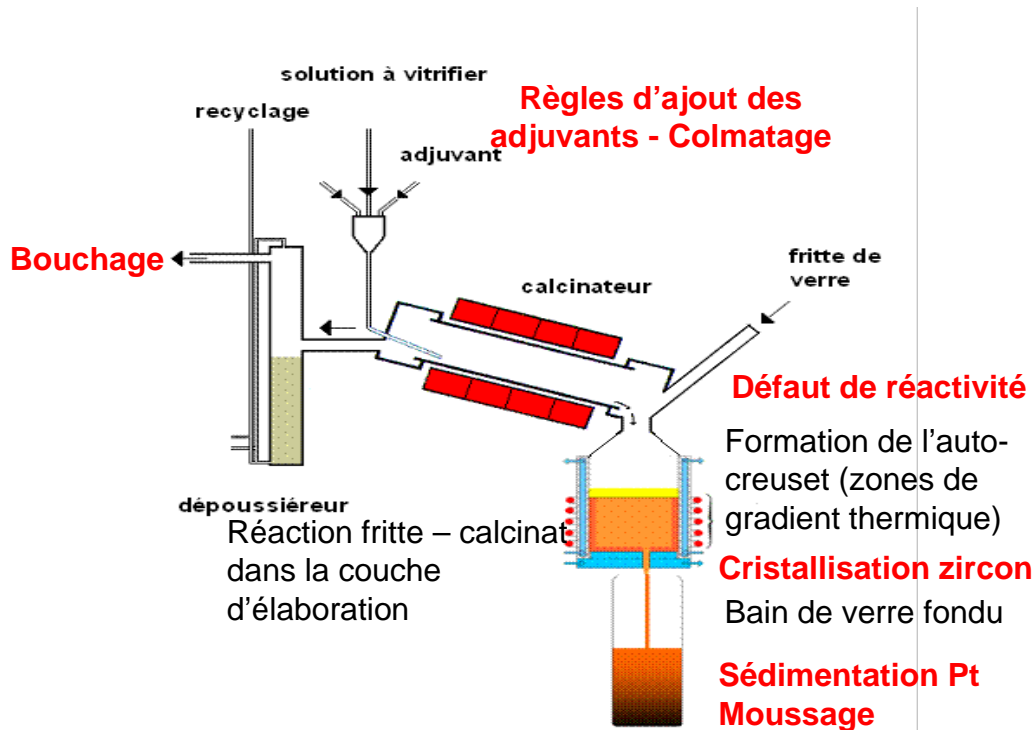
Facilité d'élaboration  
Température de fusion  
Viscosité, réactivité, temps de séjour  
Conductivité électrique et thermique  
Additifs nécessaires



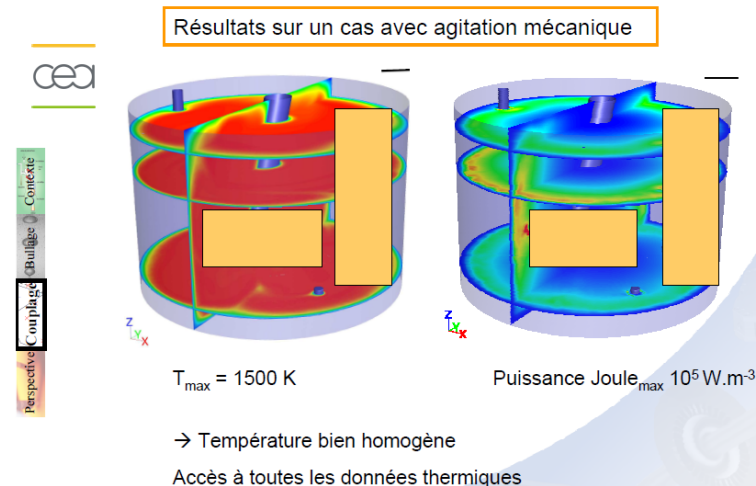
## 3-Performances du verre- CLT

Entreposage et stockage  
Stabilité Thermique  
Durabilité Chimique  
Résistance à l'auto-irradiation  
Propriétés Mécaniques

## Laboratoire de Développement des Procédés de Vitrification



Soutien à l'exploitant pour tout verre nouveau :  
UMo, MAD, HTC...



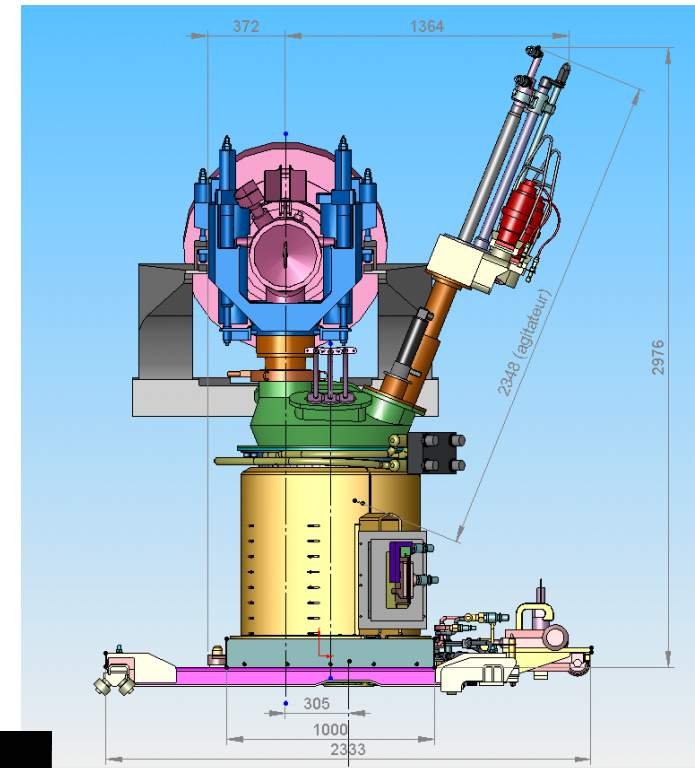
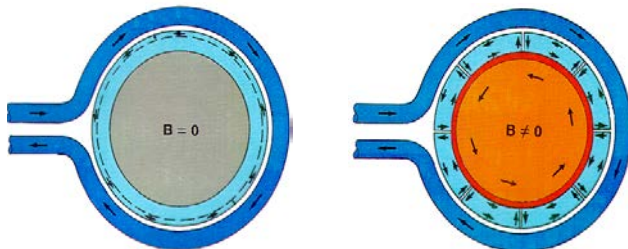
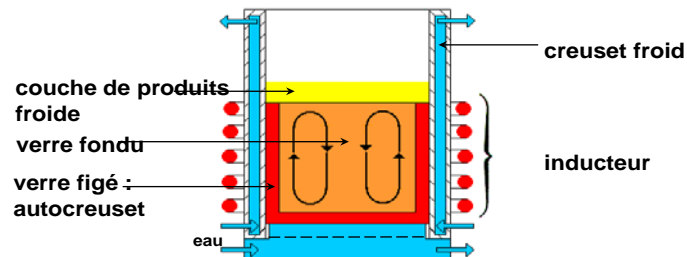
### Modélisation des fours :

- Thermique
- Hydraulique
- Electro-Magnétique
- ...et demain cinétique et chimique

# La vitrification en creuset froid

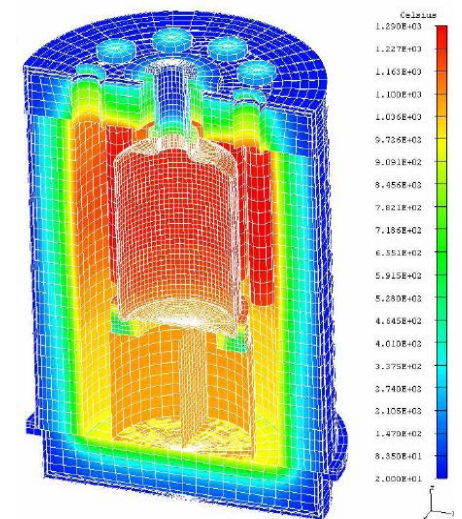
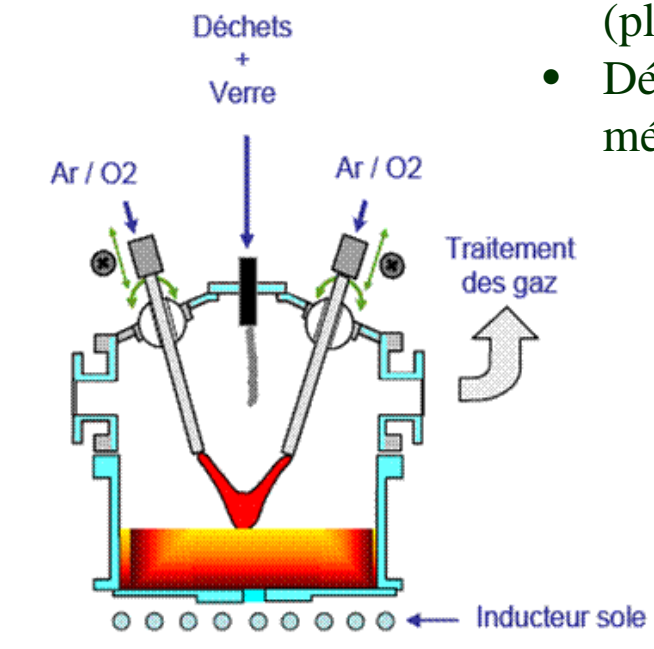
Implantation réussie d'un creuset froid à La Hague en avril 2010.

- Augmentation de capacité
- Fusion de verres non réalisable en creuset chaud



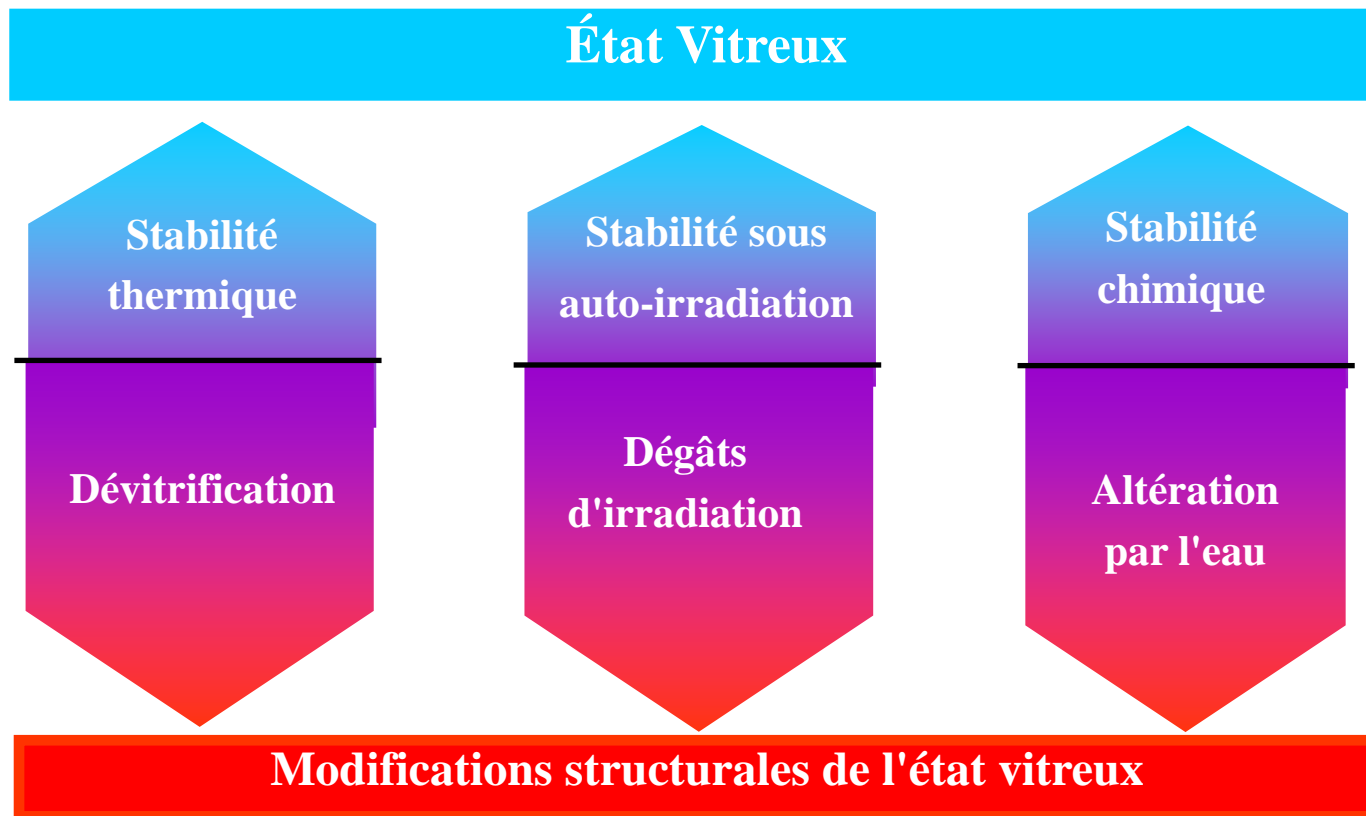
L' incinération/vitrification, notamment assisté par torches plasma, peut s'appliquer à un grand nombre de déchets mixtes solides ou liquides, organiques, minéraux ou métalliques :

- Résines échangeuses d'ions (REI)
- Boues graphitées ou sulphatées
- Déchets fortement chlorés (plastiques...)
- Déchets mixtes organiques et métalliques (Fe, Al, Cu, ...)



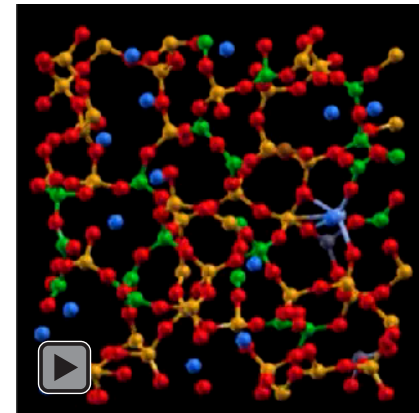
# Etude du Comportement à Long terme (CLT)

## Laboratoire d'étude du Comportement à Long terme (LCLT)



# Effet de l'auto-irradiation dans les verres

- Des verres dopés à 0,5 et 1,5% de  $^{244}\text{Cm}$  ont été réalisés .
- Ils ont intégré des doses allant jusqu'à  $10^{19}$   $\alpha/\text{g}$  et simulant plus de 10 000 ans.



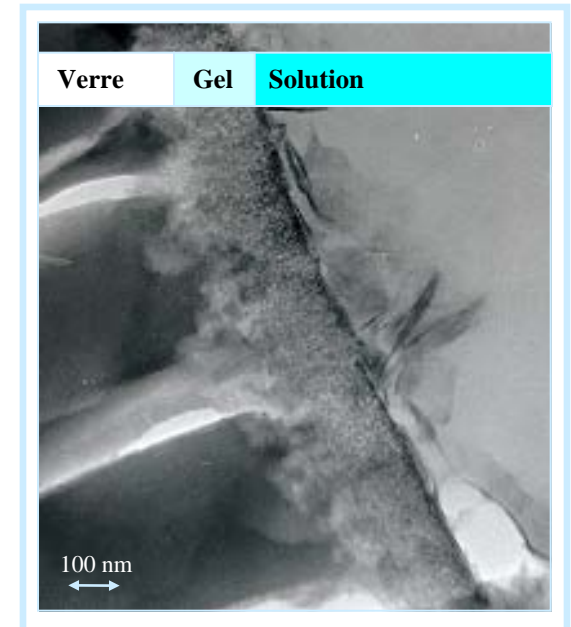
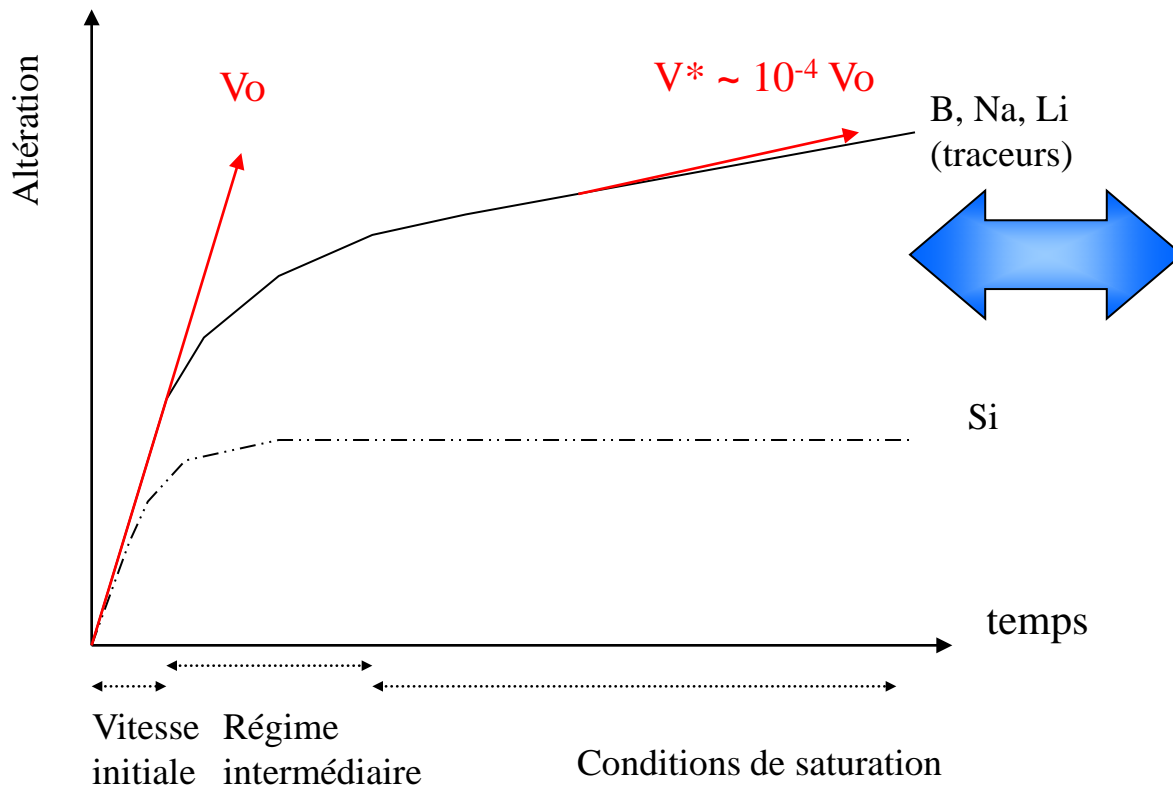
Le verre un matériau auto réparant !

**Pas d'influence néfaste de l'auto-irradiation sur le comportement à long terme des verres nucléaires.**



# Cinétique d'altération par l'eau

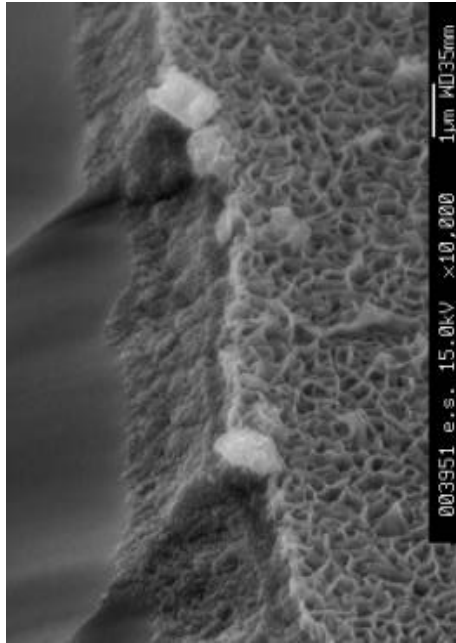
E.Vernaz et Al. Journal of Nuclear Materials 298 (2001) 27-36



*Pour le verre R7T7  
à 50°C et pH [8,9]  
 $v^* < 5 \cdot 10^{-5} \mu\text{m/j}$   
Soit  $\sim 1 \text{ mm} / 10\ 000 \text{ ans}$*

# Les études phénoménologiques

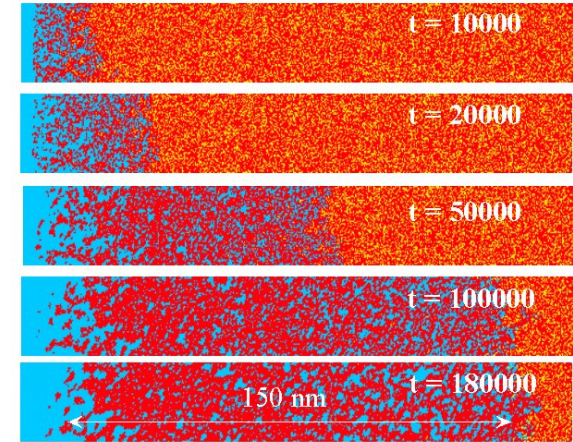
## Expérimentations & caractérisations



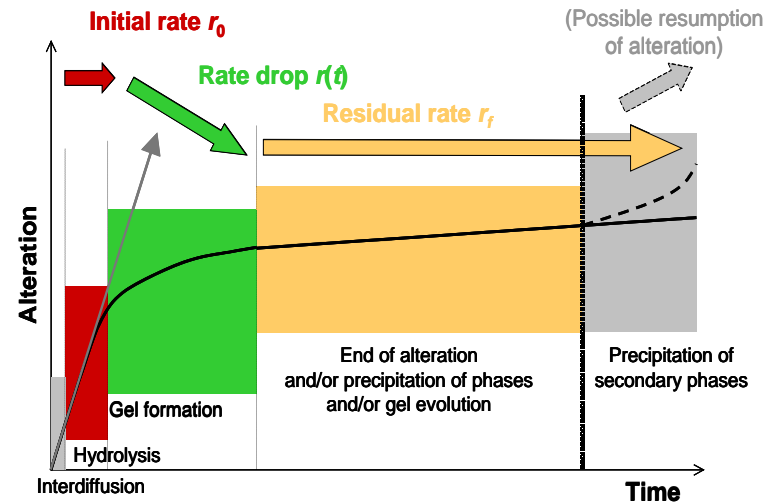
Verre R7T7 altéré 6 mois à 150°C

Identification et étude des étapes du processus de corrosion  
**Frugier et al., J. Nucl. Mater. (2008; 2009)**

## Modèles explicatifs & prédictifs



**C. Cailleteau et al. Nature Mater. 7, 978-983 (2008)**

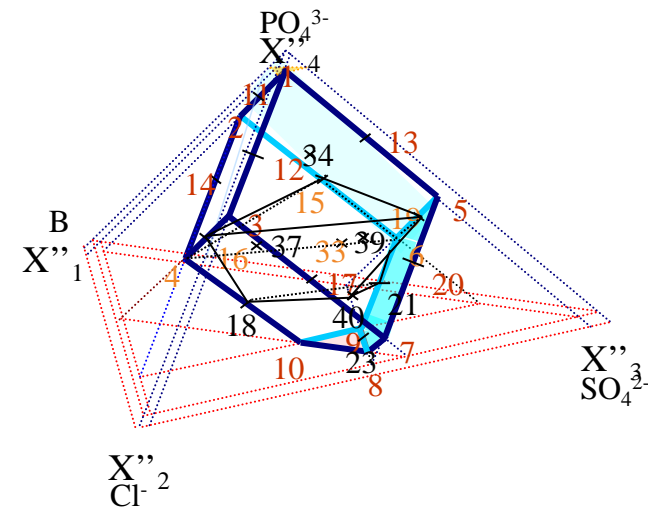


## Sommaire :

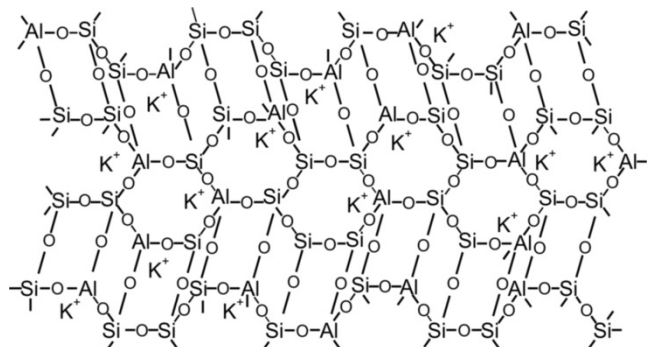
- La vitrification
- **La cimentation**
- Les bitumes
- Les coques
- Les traitements thermiques
- La décontamination

## Laboratoire de Physico-Chimie des matériaux cimentaires (LP2C)

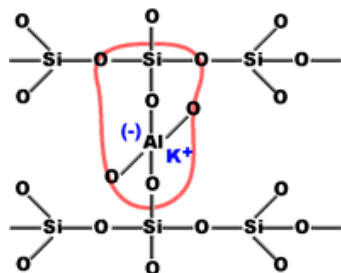
- Etude des interactions ciment/déchets :
  - Identification et quantification des interactions chimiques avec diverses espèces (phosphate, bore, chlorures, sulfate....) durant l'hydratation du ciment.
  - Nouvelles formulations pour nouveaux effluents ou déchets
  - Détermination de la sensibilité des propriétés du matériau aux variations de concentrations des espèces confinées.
  
- Nouveaux matériaux cimentaires
  - Ciments bas pH et faible chaleur de prise
  - Ciments sulfo-alumineux (confinement B and Zn)
  - Géopolymère (silico-aluminates)
  
- Relation entre microstructure et diffusion gazeuse.



# Développement de géopolymères



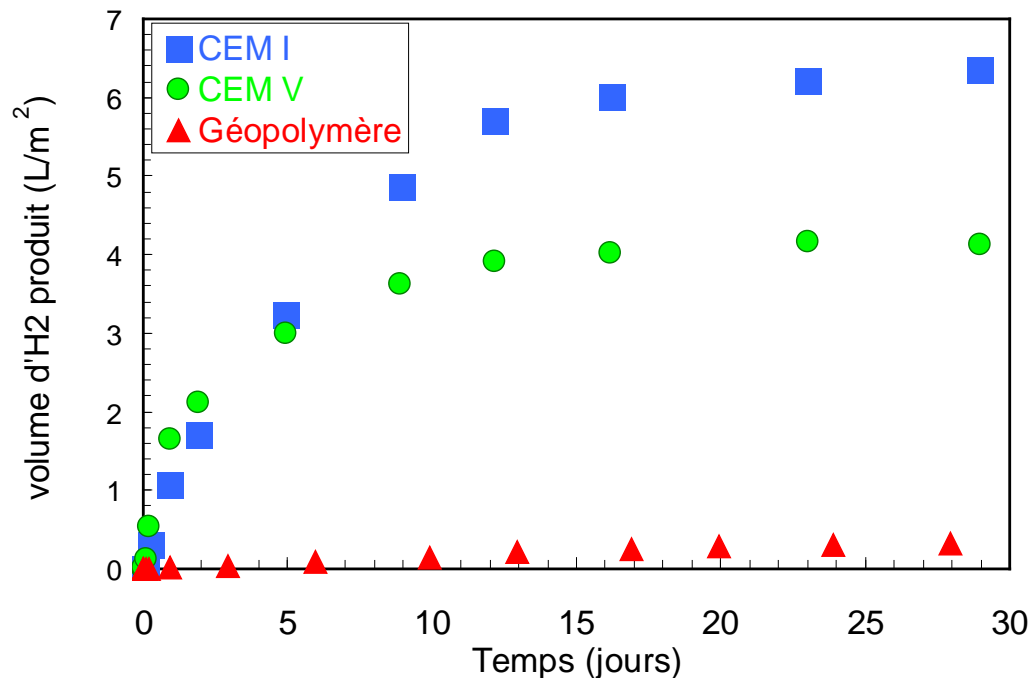
un réseau tridimensionnel d'alumino-silicates hydratés



Aluminium en coordination tétraédrique



La présence de cations alcalins assure l'électroneutralité du matériau



**Courbe de production d'hydrogène après enrobage de déchets magnésiens**

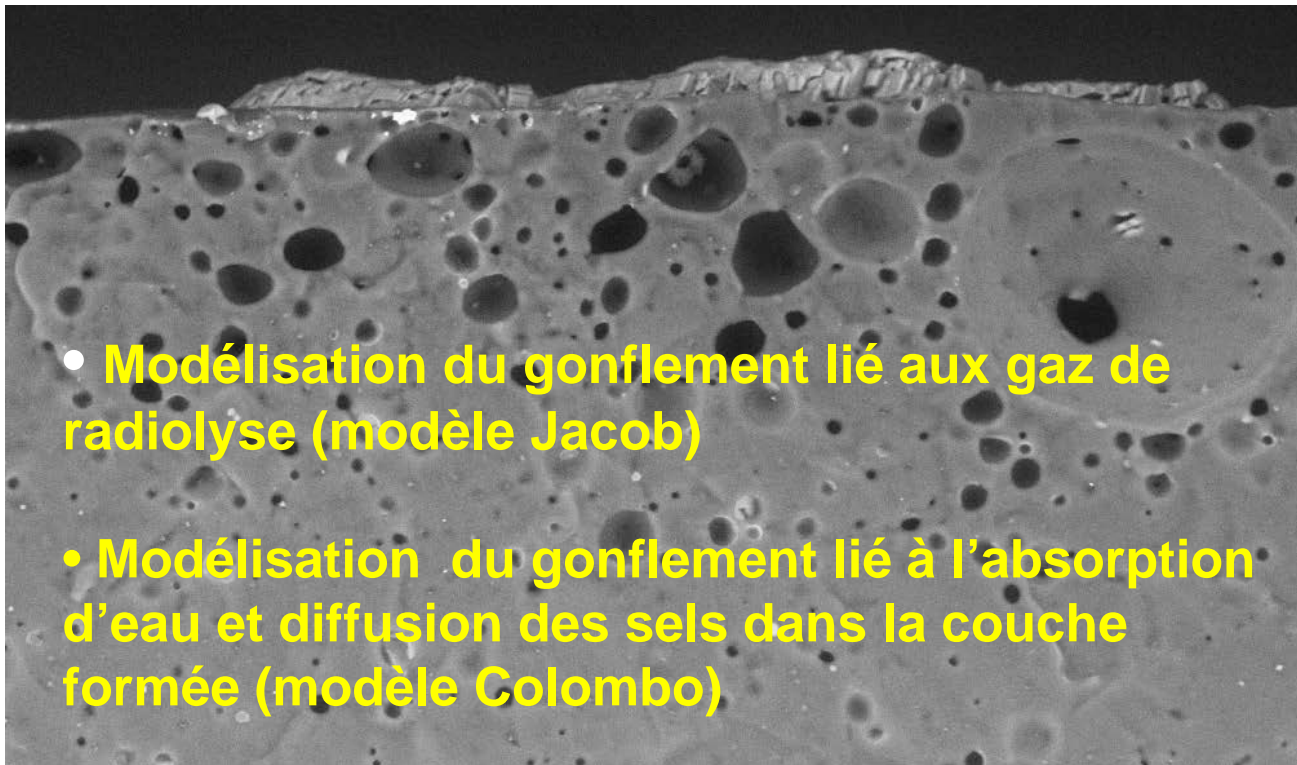
## Sommaire :

- La vitrification
- La cimentation
- **Les bitumes**
- Les coques
- Les traitements thermiques
- La décontamination



Environ 60 000 fûts à Marcoule et 10000 à La Hague.

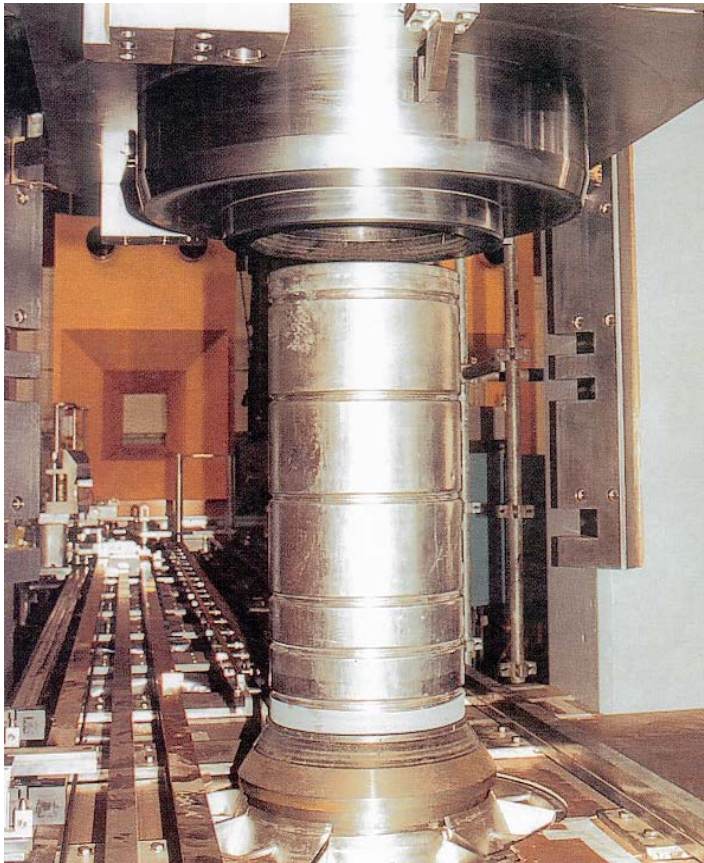
- Etudes de comportement pour répondre à la sûreté et orienter les choix futurs (entreposage, stockage).



## Sommaire :

- La vitrification
- La cimentation
- Les bitumes
- **Les coques**
- Les traitements thermiques
- La décontamination

# Déchets B : Les déchets de gaines compactées



Presse de compactage  
(*La Hague*)



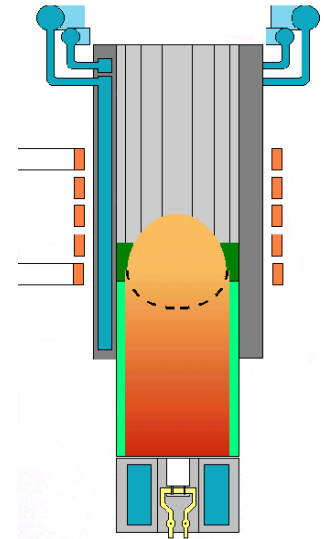
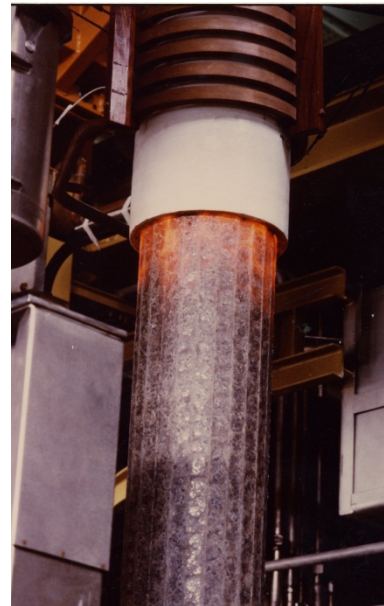
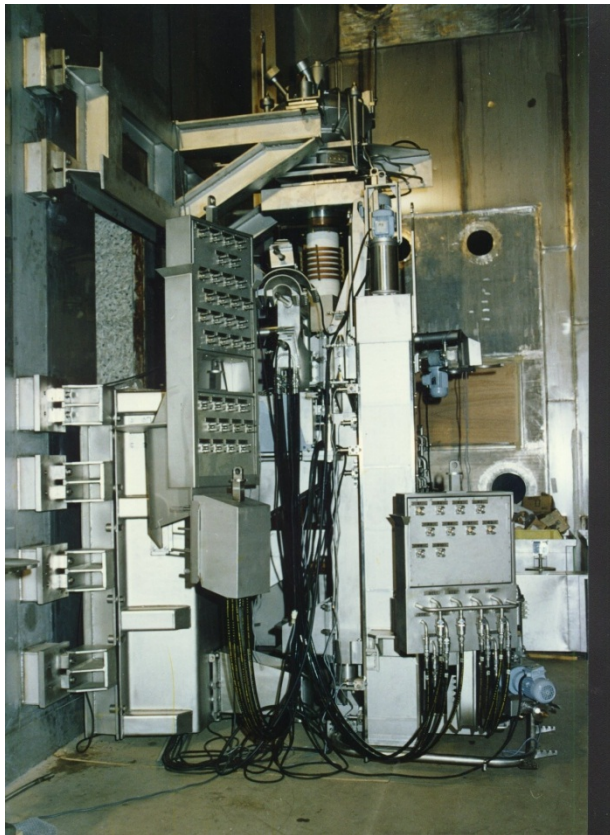
**Galette de compactage**



**Un CSD-C**



## Prototype diamètre 200mm



## • Fusion des coques inox

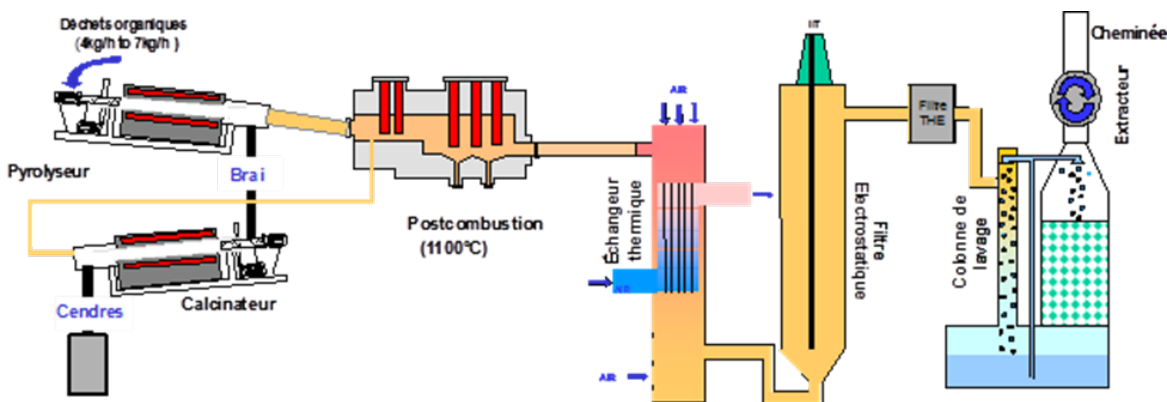
- Réduction de volume : environ 5
- Réduction de surface : environ 200
- Facteur de décontamination alpha : 2000
- Facteur de décontamination Cs Sr : 100

## Sommaire :

- La vitrification
- La cimentation
- Les bitumes
- Les coques
- **Les traitements thermiques**
- La décontamination

## Laboratoire des Procédés Innovants de Conditionnement (LPIC)

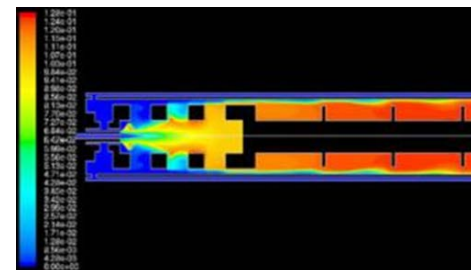
Une dernière activité de recherche, plus technologique, porte sur le développement de **procédés de destruction de déchets organiques** contaminés, solides ou liquides.



Le **procédé IRIS** (*Installation de Recherche en Incinération des solides*) permet d'incinérer des déchets organiques fortement chlorés et chargés en plutonium provenant des boîtes à gants de l'industrie nucléaire.

## Laboratoire des Procédés Supercritiques et de Décontamination

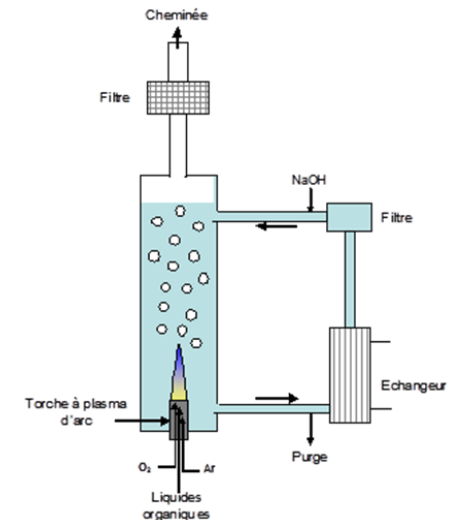
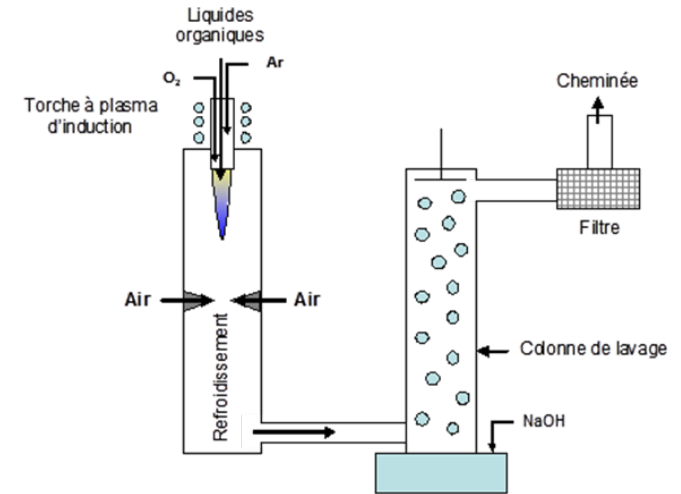
Le **procédé DELIS**, permet de détruire un déchet organique liquide par une réaction d'Oxydation Hydrothermale en milieu eau supercritique.





# Les traitements thermiques

- **Le procédé IDOHL** (*Installation de Destruction des Organo Halogénés Liquides*), mettant en œuvre un plasma d'induction au cœur duquel le liquide est introduit, permet par exemple de détruire de petites quantités de liquides scintillants contaminés.
- **Le procédé ELIPSE** (*Elimination de Liquide par Plasma Sous Eau*) met en œuvre un plasma d'arc immergé au cœur duquel les liquides sont introduits. Il permet d'éliminer des liquides organiques à plus fort débit tout en récupérant la chaleur et les produits de réaction dans de l'eau.



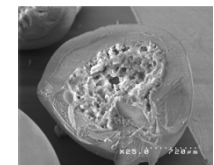
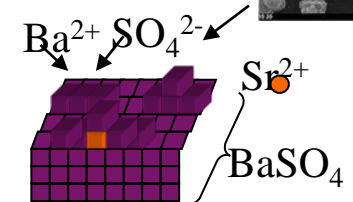
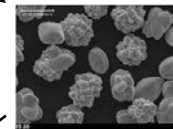
## Sommaire :

- La vitrification
- La cimentation
- Les bitumes
- Les coques
- Les traitements thermiques
- **La décontamination**

## Laboratoire des Procédés Supercritiques et de Décontamination (LPSD)

- Dans le domaine de la décontamination des solides le développement de mousses stables dans le temps, ou de gels aspirables a permis de fortement réduire les volumes, et donc les coûts, de déchets secondaires, tout en conservant de très bonnes efficacités de décontamination. Mais aussi,... étude de nouveaux surfactant, électromigration, etc.
- Dans le domaine la **décontamination des liquides**, les recherches sur la coprécipitation, couplant la physico-chimie des phénomènes au génie des procédés, montrent qu'il serait possible d'augmenter de diminuer sensiblement la quantité de  $\text{BaSO}_4$  par rapport aux configurations industrielles actuelles. Mais aussi, ....étude de nouveaux matériaux hybrides pour sorption spécifique, etc.

Forte capacité d'innovation si meilleure compréhension de la chimie complexe aux interfaces



- **La vitrification** des déchets :

Un atout majeur pour le traitement recyclage des combustibles usés !

- Plus de 50 ans de recherche et une activité encore croissante, notamment en vue de vitrifier les déchets B
- Le très bon comportement à long terme du verre R7T7 est démontré et sert de référence pour les verres du futur.

- **La cimentation** :

- Est devenue la référence pour le plus gros volume des déchets nucléaires FA/MAVC
- Une palette de solutions adaptée à chaque composition : ciments silico-calciques à forte teneur en adjuvants, sulfo-aluminates, géopolymères...

- **Les coques** : compactées aujourd'hui, fondues demain ?

- **Les traitements thermiques et la décontamination** :

- progrès importants en cours pour la réduction des déchets à la source

# Le colis de déchets vitrifiés

## Données pour 1 conteneur

Puissance thermique ~ 2 kw

Activité moyenne  $\beta\gamma$  : 16 000 TBq

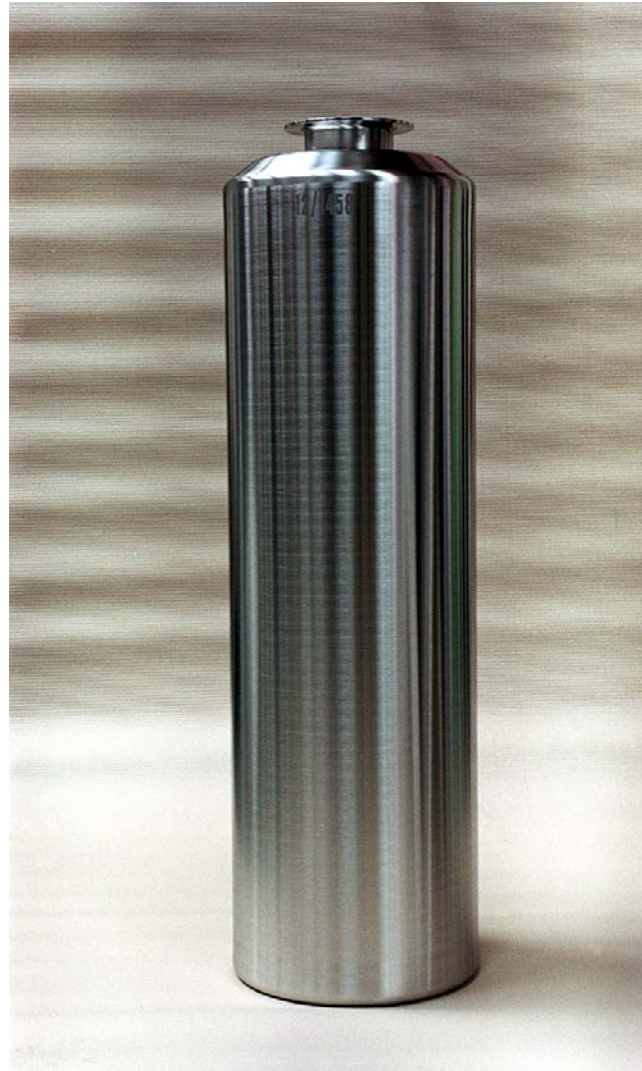
(au moment de la coulée)

Activité moyenne  $\alpha$  : 230 TBq

Contamination surfacique < 4Bq. cm<sup>-2</sup>

## Déchet C

\* Spécifications approuvées internationalement



Volume de verre »  
150 litres

Poids net de verre  
» 400 kg

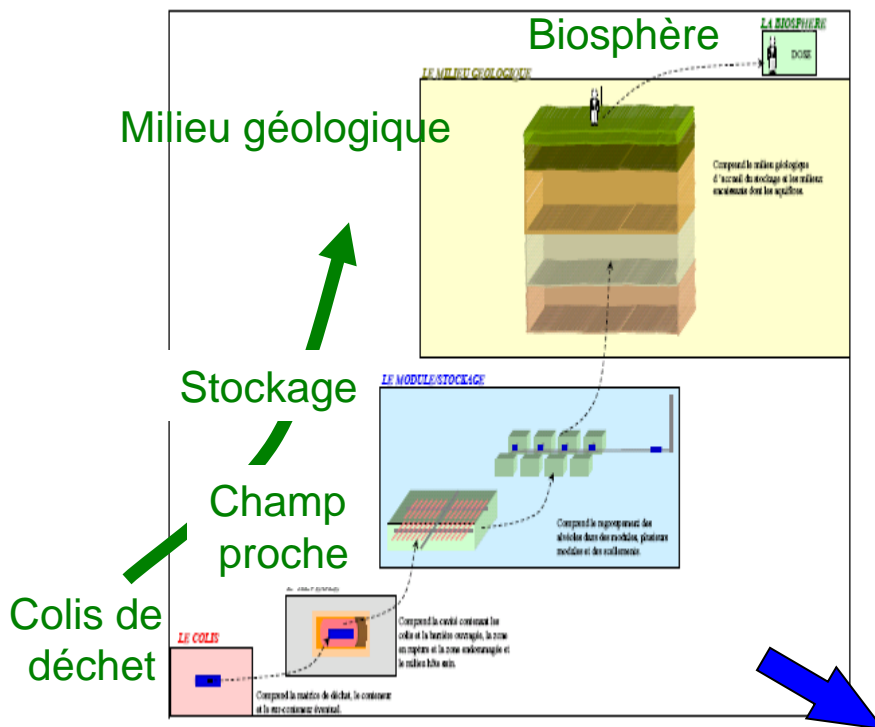
Hauteur 1,3 m

Diamètre 0,43 m

Entreposé en  
puits ventilé

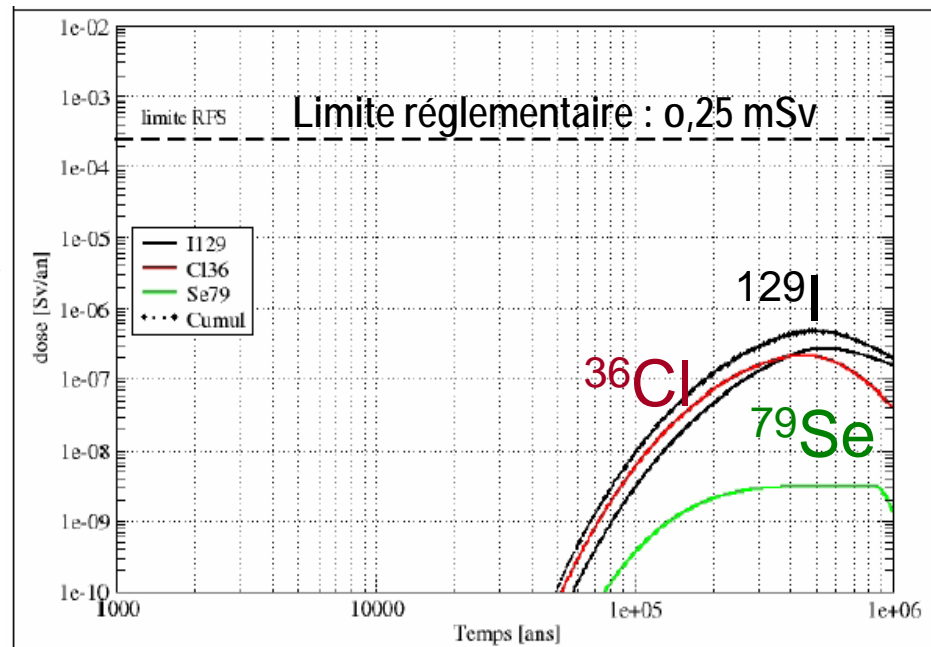
En moyenne 0,7  
conteneur par t U

# La sûreté du stockage géologique est démontrée



*Une approche intégrée en « poupées russes »*

- Objectifs des études de sûreté
  - Déterminer l'impact des RN critiques sur la population critique
  - Approche conservatrice (majorante)
    - Scénario d'évolution normale
    - Scénarii altérés





# L'entreposage des verres (déchets C)



à Marcoule



à La Hague

# Valider les ordres de grandeur avec des analogues

Verre basaltique  
altéré 1.4 Ma  
en milieu argileux



Église de Les Noés (10) :  
vitrail (XVIe siècle) - LRMH  
G. Libourel et al, *La Recherche*, 1994

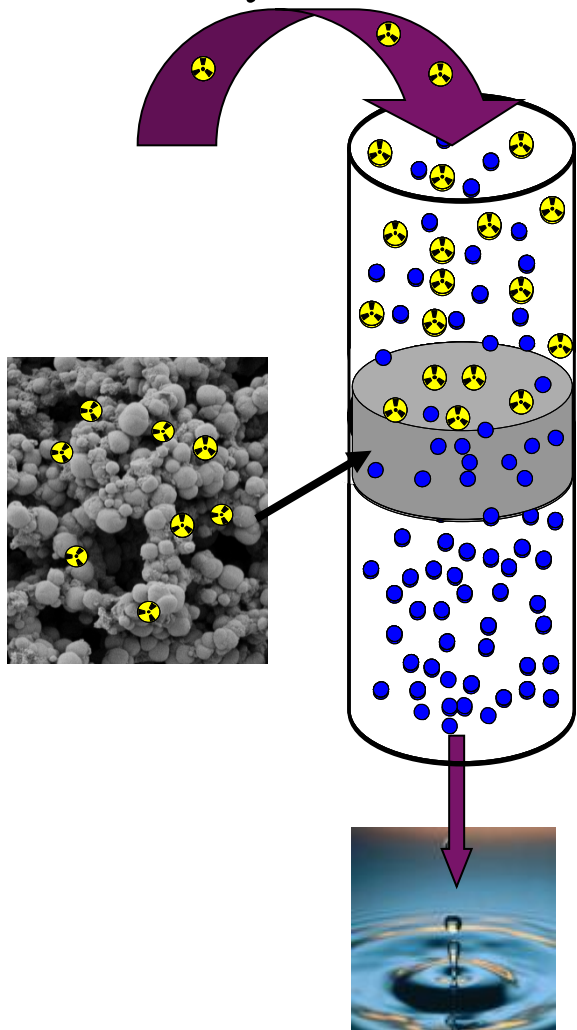
## Bilan des Ateliers de Vitrification français

<i>Fin 2010</i>	MARCOULE	LA HAGUE	
	UP1 - AVM	UP2 - R7	UP3 - T7
date de mise en service	<b>1978</b>	<b>1989</b>	<b>1992</b>
volume de solution ajustée (m <sup>3</sup> )	2 685	8 571	6 263
masse de verre produit (t)	1 133	3 324	2 888
nombre de conteneurs produits	3 146	8 383	7 262
activité β γ vitrifiée (10 <sup>6</sup> TBq)	17	127	116

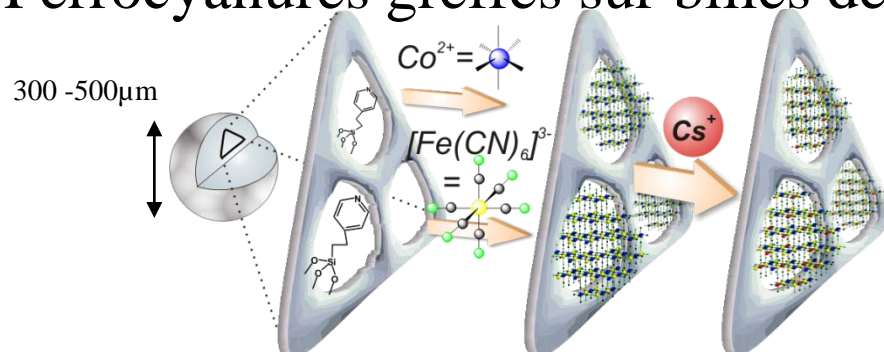
Soit au total :

- ✓ **18 791 conteneurs**
- ✓ **7 345 tonnes de verre (2670 m<sup>3</sup>)**
- ✓ **243 10<sup>6</sup> TBq (6,6 10<sup>9</sup> Ci)**

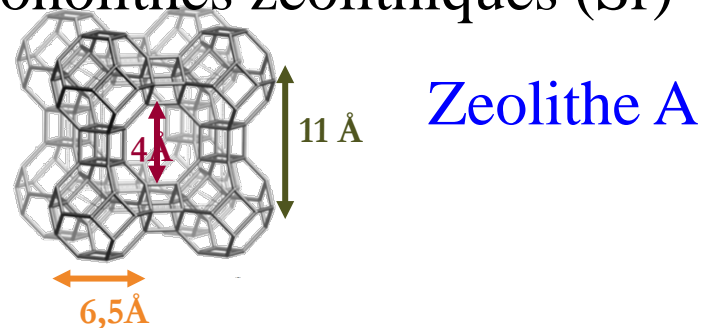
## WP4.1 : Synthèse de nouveaux adsorbants (DTCD, ICSM)



### 1 – Ferrocyanures greffés sur billes de verres (C)



### 2 – Monolithes zéolithiques (Sr)



## WP4.2 : Modélisation des colonnes (DTCD)

Conception/dimensionnement d'une unité mobile