

Introduction

Les **déchets*** de l'énergie nucléaire sont caractérisés par des masses très petites, en comparaison de ceux produits par les autres moyens de production d'énergie. En effet, à quantité d'énergie produite identique, les réactions nucléaires provoquent la transformation de très faibles quantités de matière, au regard de celles mises en jeu dans les réactions chimiques qui interviennent lors de la combustion du charbon ou du pétrole : un million de fois moins !

Néanmoins, leur toxicité potentielle nécessite de protéger l'homme et l'environnement du risque associé. La gestion de ces déchets **radioactifs*** nécessite donc des méthodes spécifiques.

Volumes et flux de déchets

La part la plus importante des déchets d'origine nucléaire résulte directement de la production d'électricité dans les réacteurs, et du **cycle du combustible*** dans lequel elle s'insère. Le cycle fermé, qui consiste à traiter les **combustibles usés** pour séparer matières encore valorisables et déchets ultimes, permet actuellement de récupérer les matières énergétiques (uranium et plutonium) afin de les recycler et de conditionner de façon sûre et durable les déchets de haute activité (**produits de fission*** et **actinides mineurs***) qui représentent un très faible volume (tableau 1).

La France s'est engagée dans la première étape du cycle fermé en traitant les combustibles usés des centrales nucléaires et en recyclant le plutonium extrait dans les réacteurs **REP*** sous forme de combustible **MOX***. Cette option, socle de sa stratégie de minimisation des déchets ultimes, présente l'avantage de consommer une fraction du plutonium produit initialement pour fabriquer de l'énergie et de concentrer la fraction restante dans le combustible MOX usé, en attendant son utilisation ultérieure.

Faire fonctionner les réacteurs nucléaires ainsi que les usines de fabrication et de traitement de combustible provoque aussi des **effluents*** et des déchets : il en va ainsi des filtres qui évitent de rejeter des gaz radioactifs dans l'atmosphère, des pompes qui ont été remplacées ou encore des liquides résultant du rinçage des installations.

Ce sont des déchets d'exploitation, beaucoup moins radioactifs mais plus volumineux que ceux retirés du combustible.

Tableau 1.

Volume des déchets radioactifs existant en France à fin 2002 (hors très faible radioactivité)	
Haute activité	1 639 m ³
Moyenne activité à vie longue	43 359 m ³
Faible activité à vie longue	44 559 m ³
Faible ou moyenne activité à vie courte	778 322* m ³

* Dont 663 562 stockés aux centres de La Manche et de l'Aube.

L'**assainissement*** et le démantèlement des installations anciennes produit également des déchets qui sont conditionnés et rejoignent les filières actuelles d'évacuation.

Enfin, les centres de recherche et les hôpitaux produisent une faible quantité de déchets radioactifs.

Un inventaire national, localisant et quantifiant tous les déchets radioactifs présents sur le sol français, est réalisé par l'**ANDRA***. Il est mis à jour chaque année. La première édition de ce document a été publiée en novembre 2004.

Une stratégie et des étapes pour la gestion des déchets

Les éléments radioactifs contenus dans les déchets radioactifs émettent des **rayonnements*** de nature variée (*alpha, bêta, gamma*) qui peuvent avoir des effets biologiques nocifs sur les organismes vivants. Il faut donc protéger l'homme et son environnement de ces rayonnements en isolant les déchets radioactifs. Pour ce faire, plusieurs **barrières*** de protection sont mises en place : les déchets sont retenus dans des enveloppes juxtaposées. La matrice de confinement constitue la première de ces barrières.

Deux grandes étapes peuvent être distinguées dans la gestion des déchets :

- l'**entreposage*** (par définition temporaire), qui consiste à disposer les déchets ou le combustible usé en bon ordre dans un endroit sûr, avec le projet de les reprendre plus tard pour leur assurer un destin plus pérenne. À l'issue de cette étape, il peut être envisagé de transmuter une partie des radionucléides présents, afin de diminuer la **radiotoxicité potentielle*** des déchets ultimes.

- le **stockage*** (définitif, quoique éventuellement réversible sur une durée choisie), qui consiste à placer les déchets ultimes dans une formation géologique profonde pour les mettre à l'abri des agressions du milieu naturel et de l'homme, le temps que la décroissance radioactive ait fait son œuvre.

Le conditionnement des déchets doit être compatible avec ces deux grandes étapes, complémentaires et non exclusives l'une de l'autre, et qui se succéderont dans le temps. Cela se traduit par la nécessité de pouvoir manipuler facilement les colis de déchets conditionnés, dans le respect des règles de sûreté et de radioprotection. Il faudra pouvoir reprendre lesdits colis au terme de la période d'entreposage, toujours de façon sûre ; le conditionnement choisi doit également avoir un bon comportement à très long terme, dans l'optique du stockage définitif. Ici, l'agresseur est l'eau souterraine, qui arrivera nécessairement à son contact au bout d'un temps plus ou moins long dans le milieu géologique.

À partir de cette situation, la loi du 30 décembre 1991 qui repoussait pendant quinze ans toute décision industrielle concernant le devenir des déchets à vie longue, a défini trois axes de recherche (fig. 1) : **séparation-transmutation***, stockage géologique, conditionnement et entreposage de longue durée des déchets, mobilisant ainsi au CEA, pendant quinze ans, plus de 300 chercheurs et un budget de 1,5 milliard d'euros.

Les études menées de façon très soutenue à partir de 1992, ont bénéficié d'importantes collaborations nationales (EDF, AREVA, ANDRA, CNRS, et universités) et internationales.

Conditionnement des déchets : des progrès continus

Lorsqu'ils sont produits, les déchets radioactifs, comme les autres déchets, se trouvent sous forme solide ou liquide : ce sont des déchets bruts. Pour pouvoir être manipulés aisément et de façon sûre, ils sont mis sous forme de **colis*** de déchets. Le colis garantit que les éléments radioactifs ne se dispersent pas. Il constitue une barrière entre les éléments radioactifs et l'environnement. Il satisfait aux normes de transport, d'entreposage ou de stockage. Le **conditionnement*** est ainsi l'en-

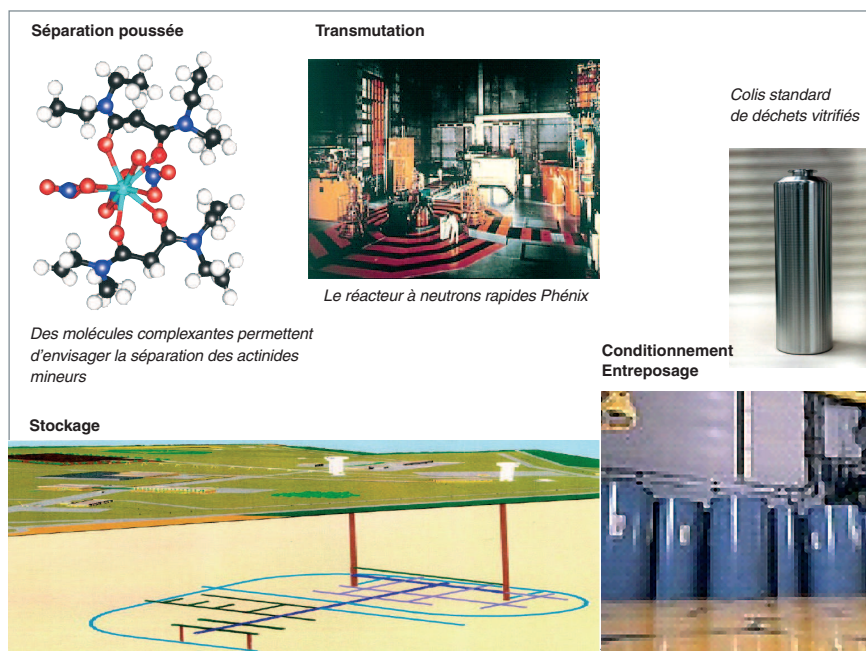


Fig. 1. Les axes de recherche actuellement poursuivis pour la gestion des déchets, plus particulièrement ceux de haute activité et à vie longue : la séparation poussée, pour ne conserver comme déchets que les matières réellement inutilisables, et donner aux « paquets » ainsi séparés un destin adapté et optimal (la transmutation) ; la transmutation, qui semble possible pour les actinides dans des réacteurs à neutrons rapides pour réduire la radiotoxicité potentielle des déchets ; le conditionnement, pour donner au déchet une forme stable et sûre ; l'entreposage, pour laisser aux déchets conditionnés le temps de refroidir... et aux humains le temps de réfléchir ; le stockage profond, pour isoler durablement les déchets ultimes.

semble des opérations successives à réaliser pour fabriquer ce colis.

Dès la mise en service, dans les années 90, des usines de **traitement*** du combustible usé actuelles de La Hague, AREVA a cherché à réduire le volume et l'activité des déchets produits par ces usines. Un important programme de recherches, PURETEX, conduit par l'entreprise et le CEA en a découlé. Ce programme a exploré différentes voies : modification des traitements chimiques mis en œuvre, changement de modes de conditionnement. L'exploitation des usines a aussi été optimisée en cherchant à réduire les quantités de produits utilisés (qui deviennent ensuite des déchets radioactifs) dans les diverses opérations que requiert le traitement du combustible usé.

En combinant toutes ces améliorations, des résultats très significatifs ont été obtenus (fig. 2). Le changement de traitement chimique des déchets liquides a permis de diviser par dix la radioactivité rejetée en mer. Le volume des déchets solides à vie longue a été divisé par six, grâce, notamment, à un nouveau mode de conditionnement des déchets de struc-

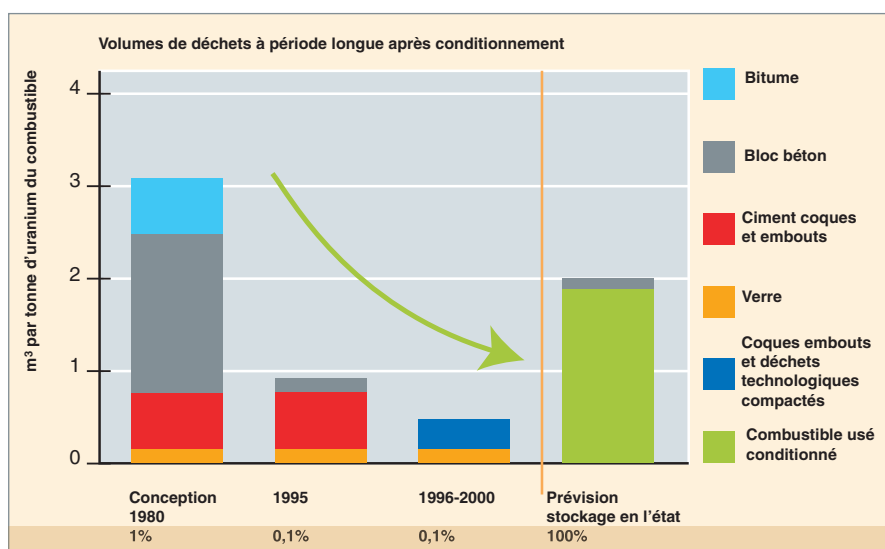


Fig. 2. Historique des volumes de déchets générés par l'installation UP3 de La Hague, dont la capacité de traitement est de 800 tonnes de combustible usé par an. Le pourcentage indiqué dans le bandeau en bas de la figure est la fraction de plutonium laissée dans les déchets.

ture des combustibles usés, le compactage. Ces déchets compactés sont placés dans un conteneur du même type que celui utilisé pour les déchets vitrifiés, standardisant ainsi le conditionnement des déchets ultimes issus des usines de La Hague.

Déchets et effluents

Les opérations de traitement chimique du cycle du combustible, ainsi que les centres de production d'électricité ou les centres de recherche nucléaire, produisent non seulement des déchets solides mais également des effluents sous forme liquide ou gazeuse. Dans certains cas, ces résidus sont rejetés directement dans l'environnement ; le plus souvent, toutefois, leur activité est trop importante ; il est alors nécessaire d'en séparer la fraction toxique et de la conditionner dans une matrice adaptée pour pouvoir rejeter le reste sans nuisance significative pour l'environnement (voir « le traitement des déchets organiques », p. 19-26).

Procédés de conditionnement

Les déchets de haute activité retirés du combustible sont conditionnés par intégration dans une matrice vitreuse, c'est-à-dire qu'ils sont mélangés à très haute température (1 150 °C) à du verre en fusion.

Ce mélange est ensuite coulé dans un conteneur en acier inoxydable d'environ 200 litres. Le colis de déchets vitrifiés est donc constitué d'un bloc de verre homogène qui contient dans sa structure même les éléments radioactifs, entourés d'une enveloppe étanche en acier inoxydable.

La **vitrification*** est aujourd'hui, en France, le procédé industriel pour le conditionnement des solutions de produits de fission issues du traitement des combustibles usés.

Les principales améliorations obtenues au cours de la dernière décennie sont :

- une réduction du volume des déchets d'exploitation du procédé de vitrification d'un facteur de 2 à 3 ;
- un gain d'environ 25 % sur le volume des déchets vitrifiés, obtenu en augmentant la proportion d'éléments radioactifs contenus dans le colis de déchets vitrifiés.

La mise en œuvre du procédé de vitrification en creuset froid, en cours d'installation à La Hague par AREVA NC, permettra de réduire encore le volume

final des déchets (voir « La vitrification en creuset froid », p. 67-70).

Les déchets d'exploitation sont le plus fréquemment cimentés. S'il s'agit de déchets solides, ils sont placés dans un conteneur en métal ou en béton dans lequel du ciment est ensuite coulé. On parle alors de déchets bloqués dans du ciment. Les déchets liquides, quant à eux, sont utilisés comme liquide de gâchage pour fabriquer le ciment. Ce dernier est ensuite coulé dans un conteneur en métal ou en béton. Il existe de nombreux modèles de conteneur, adaptés à la forme et à la taille des déchets qu'ils doivent contenir (voir « Les ciments comme matériaux de confinement », p. 71-89).

Certains déchets liquides d'exploitation peuvent être bitumés plutôt que cimentés.

Le procédé de bitumage a été largement utilisé en France pour conditionner en ligne les déchets résultant du traitement des effluents liquides par précipitation chimique. Ces déchets se présentent sous forme de boues qui sont séchées et mélangées à du bitume à une température de 150 °C environ. Le mélange est ensuite coulé dans un conteneur en acier inoxydable. Il s'agit d'un procédé qui bénéficie d'un large retour d'expérience.

Il est probable qu'à l'avenir ce procédé sera de moins en moins utilisé, car l'on vise aujourd'hui à minimiser l'introduction de matière organique combustible dans les stockages et à privilégier les matrices minérales que sont le verre et le béton. Quelques études sont toutefois encore menées pour adapter ce procédé au conditionnement du contenu de certains silos de boues anciennes dont les caractéristiques chimiques pourraient rendre difficile la vitrification ou la cimentation. L'objectif

est de minimiser le nombre de colis à produire, ce qui conduit à maximiser le contenu radioactif admissible par colis. Enfin, compte tenu du nombre important de colis existants, d'autres études sont en cours pour prévoir le comportement à long terme de ces colis en condition d'entreposage et de stockage (voir « Les bitumes », p. 91-97).

Certains déchets comme les gaines des crayons combustibles solides peuvent être simplement compactés par écrasement au moyen d'une presse et placés dans un conteneur sans être bloqués (voir « Le conditionnement des déchets de structure métalliques », p. 99-103).

Même si verres, ciments, bitumes ou gaines compactées sont des matrices éprouvées (fig. 3), une recherche prospective pour des conditionnements nouveaux permet de proposer des solutions pour certaines catégories particulières de déchets (organiques, mixtes, etc.) et de se préparer à répondre aux défis que poseront les réacteurs de nouvelle génération, tout en se maintenant dans une dynamique d'amélioration continue (voir « Recherche de matrices et de procédés alternatifs pour le traitement-conditionnement des déchets », p. 105-121).

Les déchets radioactifs sont, en général, conditionnés sur le site où ils ont été produits. Les centrales nucléaires, ainsi que les centres de recherche, disposent d'installations de cimentation et parfois de bitumage. Les usines de traitement du combustible usé disposent en outre d'installations de vitrification. En France, environ 3 000 colis de déchets vitrifiés ont ainsi été réalisés à Marcoule, où a fonctionné la première usine française de traitement (UP1 – 1958-1997).

Depuis 1990, les colis de déchets vitrifiés sont produits à La Hague où est actuellement traité le combustible nucléaire. Environ 13 000 colis ont déjà été fabriqués, et le volume de fabrication actuel est de l'ordre de 600 colis par an.

Les déchets de faible ou moyenne activité à vie courte sont transférés au centre de stockage de Soulaïnes, dans l'Aube, exploité par l'ANDRA.

Les déchets à vie longue sont conservés sur leur site de production dans des entrepôts spécifiques pour chaque type de colis. Par exemple, les colis de déchets vitrifiés à La Hague y sont entreposés.

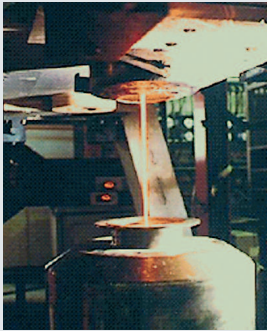
Des conditionnements qui doivent résister à l'épreuve du temps

Le colis est la première des barrières successives interposées entre les éléments radioactifs et l'environnement. Dans la perspective d'une gestion à long terme des colis, il faut donc évaluer la qualité de cette barrière au fil du temps.


Compte tenu des échéances de temps à considérer, notamment pour le stockage géologique, une simple extrapolation dans le temps de résultats acquis en laboratoire sur des durées de quelques années n'est pas suffisante.

La première étape consiste à comprendre et à hiérarchiser les phénomènes se produisant pendant l'existence du colis, en entreposage ou en stockage géologique. Cela se fait notamment en réalisant des expériences en laboratoire et en observant les analogues naturels ou archéologiques. À partir de cette compréhension, l'évolution du colis peut être décrite mathématiquement sous forme de modèles simulant les phénomènes en jeu, depuis la dégradation de matrices (modélisation à l'échelle atomique, méso- et macroscopique) jus-


- La solution de produits de fission qui contient aussi les actinides mineurs et environ 0,1% de l'U, est vitrifiée.



- Les coques et embouts sont rincés puis compactés.



- Les déchets technologiques sont cimentés.



Le volume annuel de déchets produit par le traitement du combustible d'un réacteur de 1GWe est :

- 2,5 m³ de déchets de haute activité (verre)
- 5 m³ de déchets de moyenne activité (gaines métalliques compactées)
- 12 m³ de déchets de faible activité (cimentés)

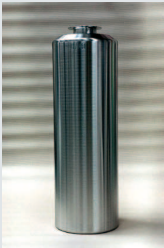


Fig. 3. Les déchets ultimes du traitement du combustible usé.

qu'à la migration des radionucléides en champ proche (modélisation chimie-transport). Il s'agit d'abord de se convaincre, par un faisceau d'indications concordantes, que les mécanismes d'altération des matrices sont bien compris et maîtrisés.

Ce travail sur le comportement à long terme des colis et des matrices de confinement des déchets constitue le premier maillon de l'évaluation de la sûreté d'un stockage.

Les travaux menés ces dernières années ont permis d'élaborer des modèles d'évolution pour tous les types de colis.

- Le verre a été choisi pour le confinement des déchets de haute activité et à vie longue en raison de sa souplesse d'utilisation et de sa durabilité. Cependant, les très longues durées de confinement nécessaires pour le stockage des déchets à vie longue ont justifié des études approfondies sur le comportement à long terme du verre en situation de stockage. Ces études ont confirmé son bon comportement : bien qu'il soit, en principe, métastable, donc susceptible de recristalliser sous une forme thermodynamiquement plus stable que la forme **amorphe*** initiale, ce processus est extraordinairement lent, si la composition du verre est bien choisie. Par ailleurs, ce matériau déjà amorphe subit peu de modifications structurales sous l'effet d'une auto-irradiation. Enfin, le verre résiste bien à l'eau : certes, les oxydes qui le composent se transforment lentement en hydroxydes, mais cette transformation est très lente. Les mécanismes d'interdiffusion et d'hydrolyse en jeu sont maintenant bien compris, mais le régime d'altération à très long terme dépend beaucoup de l'environnement du verre et fait encore l'objet de recherches actives.

- En ce qui concerne les colis de déchets cimentés, le principal risque à prendre en compte en conditions d'entreposage, est la fissuration du béton, du fait de son évolution physico-chimique, de certaines interactions entre les déchets et le ciment, et de la corrosion des armatures. Ce risque peut être réduit par une formulation de béton et un matériau de renfort (fibres ou armatures) adaptés.

À titre exploratoire, des études ont été menées pour optimiser la cimentation : pré-traitement du déchet et formulation de ciments présentant une meilleure compatibilité avec les déchets à conditionner.

En conditions de stockage géologique, le phénomène majeur affectant le comportement des matériaux cimentaires est la dégradation chimique, qui dépend fortement de la teneur en ions sulfates et carbonates dans l'eau du site. Différents modèles ont été développés, afin notamment de prédire l'évolution du confinement des éléments radioactifs dans le cas de l'altération externe d'un conteneur en béton par l'eau.

- Deux phénomènes principaux peuvent affecter significativement l'évolution à moyen et long terme des colis de boues bitumées :

- Le bitume gonfle sous l'effet des gaz de **radiolyse*** générés par la radioactivité contenue dans le colis, si celle-ci est importante. Cette production de gaz décroît au fil du temps. Ce gonflement peut affecter le comportement du colis en entreposage ;

- Le bitume relâche les éléments radioactifs qu'il contient sous l'effet de la lente pénétration de l'eau dans le colis en conditions de stockage.

Les premières estimations des performances des colis de boues bitumées ont été réalisées à partir des modèles développés. Ainsi, on prévoit que la dégradation des colis en stockage géologique durera quelques dizaines de milliers d'années, après l'arrivée de l'eau.

- Le colis de déchets compacté contient des pièces métalliques. Le modèle proposé pour ce colis est basé sur la localisation des éléments radioactifs à l'intérieur. Les éléments radioactifs situés en surface des pièces métalliques sont supposés directement entraînés par l'eau. Les éléments radioactifs inclus au sein des pièces métalliques sont relâchés au fur et à mesure de la corrosion du métal. D'après les expériences de corrosion conduites en laboratoire, les éléments radioactifs inclus dans les pièces métalliques en acier inoxydable, par exemple, sont ainsi relâchés au bout d'une centaine de milliers d'années.

- Bien qu'il ne fasse pas partie de la stratégie française sur l'aval du cycle, le **stockage direct*** des combustibles usés a aussi été étudié au CEA. Les études menées sur l'état physico-chimique du combustible sortant d'un réacteur ont montré que les gaines des crayons combustibles étaient encore capables de confiner les radionucléides sur une période de temps compatible avec un entreposage à sec ou en piscine de l'ordre de la centaine d'années. Elles ont également montré qu'il ne s'agissait pas d'un conditionnement confinant sur des durées plus longues, d'autres barrières ouvragées devant alors prendre le relais. (voir « Le combustible usé peut-il être une matrice de confinement », p. 123).

Étienne VERNAZ,

*Département d'études du traitement
et du conditionnement des déchets*

Bernard BONIN,

Direction scientifique