

Le combustible usé peut-il être une matrice de confinement ?

A sa sortie du réacteur, le combustible usé peut être considéré de deux manières radicalement différentes selon la politique suivie en matière de cycle du combustible :

Si le cycle fermé est choisi, le combustible usé est avant tout considéré comme une ressource : outre 1,5 % de matière **fis-sile***, soit deux fois plus que l'uranium naturel, il contient également 94 % de matière **fertile*** qui possède un potentiel énergétique de 2 tonnes d'équivalent pétrole par gramme. Le combustible usé est alors en sursis : il est **entreposé*** (temporairement, par définition), dans l'attente de son traitement.

Si le cycle ouvert est retenu, le combustible usé est considéré comme un déchet. Il aura alors à subir non seulement un entreposage, mais encore un **stockage*** (définitif par définition, avec cependant une option de réversibilité) en formation géologique. Bien que le choix du cycle ouvert ne soit pas celui fait par la France⁴, il est intéressant de voir où il mène du point de vue de la gestion des déchets, ne serait-ce qu'à titre de comparaison avec l'option française de traitement-recyclage.

Quelle que soit l'option retenue, le combustible usé aura donc à subir une période d'entreposage, d'une durée comprise entre cinq ans (durée minimum pour laisser le combustible « refroidir » avant les opérations de traitement) et une centaine d'années. Même dans l'option « cycle fermé », le temps d'entreposage peut être aussi long que cela : par exemple, les combustibles MOX usés, difficilement recyclables dans les réacteurs à eau actuels, devront être entreposés jusqu'à ce qu'il y ait dans le parc des réacteurs à neutrons rapides capables d'utiliser efficacement leur plutonium.

Cet entreposage peut se faire à sec ou sous eau, mais dans tous les cas la gaine du combustible usé doit jouer son rôle et éviter la dissémination des radionucléides produits pendant le séjour du combustible en réacteur. En entreposage à sec, le combustible usé est enfermé dans un conteneur qui le protège, permet sa manutention et joue le rôle de barrière de confinement. Se pose alors la question de la corrosion sèche et du comportement mécanique de crayons combustibles usés qui vont s'échauffer et subir la pression des gaz produits

par les désintégrations radioactives des actinides du combustible (voir *infra* « Caractéristiques initiales du combustible usé », p. 125). Les modes de dégradation de ce conteneur doivent également être étudiés.

En entreposage sous eau, la température atteinte par le combustible est moins importante. Les problèmes thermo-mécaniques susceptibles d'affecter le combustible usé sont moins aigus, mais il faut faire attention aux problèmes de corrosion aqueuse, éventuellement favorisés par la radiolyse (voir *infra* « Évolution du combustible usé en entreposage à sec », p. 129-132).

Dans l'option « cycle ouvert », le combustible usé sera ensuite placé en situation de stockage. Entouré de son conteneur, il devra assurer la rétention des radionucléides pendant une période de temps beaucoup plus longue encore. Plusieurs centaines de milliers d'années seront nécessaires pour que la décroissance radioactive ramène la radiotoxicité du combustible usé au niveau de celle du minerai d'uranium initial. Il sera probablement impossible d'éviter le contact direct de la céramique combustible avec l'eau du milieu souterrain, car les enveloppes métalliques entourant cette dernière ne sauraient résister à la corrosion sur des durées aussi longues. Le problème à étudier dans ce cas est celui de la **lixiviation*** de la céramique.

Contrairement aux verres, qui ont une microstructure homogène et amorphe, la céramique combustible est hétérogène et polycristalline. Elle est de plus très morcelée, du fait des gradients de température auxquels elle est soumise en réacteur et de l'accumulation de gaz en son sein. Lors du contact de la céramique combustible avec l'eau du milieu souterrain, une partie des radionucléides, localisée aux interfaces et aux joints de grain, sera libérée très rapidement. Cette fraction **labile*** fait également l'objet d'études approfondies, car c'est elle qui domine le « **terme source*** » d'un stockage profond de combustibles usés. L'ensemble des phénomènes décrits ci-dessus ont été modélisés au CEA, avec pour finalité l'analyse de la sûreté d'un entreposage et d'un stockage de combustible usé (voir *infra* « Modélisation du comportement à long terme du combustible usé », p. 133-135).

Enfin, des concepts d'étuis et de conteneurs de combustible usé ont été développés au CEA. Ils sont succinctement décrits plus avant (voir *infra* « Les conteneurs de combustibles usés dans les concepts d'entreposage de longue durée et de stockage direct », p. 137-139).

4. La loi française du 13 juillet 1992 définit comme déchet ultime un déchet « qui n'est plus susceptible d'être traité, dans les conditions techniques et économiques du moment, notamment par extraction de la part valorisable ou par réduction de son caractère polluant ou dangereux ». De façon générale, le combustible usé n'est pas un déchet ultime au regard de cette loi.

Caractéristiques initiales du combustible utilisé

Le combustible nucléaire des REP* (réacteur à eau pressurisée) consiste en un assemblage de 264 crayons* combustibles de 9,5 mm de diamètre externe, d'une hauteur de 4 m environ, tenus entre eux par 8 grilles solidaires de 24 tubes guides (fig. 128). Chaque crayon est constitué d'une gaine en alliage de zirconium de 570 µm d'épaisseur dans laquelle sont empilées les pastilles* d'oxyde d'uranium UO_2 pour le combustible UOX* ou d'oxyde mixte $(U,Pu)O_2$ dans le cas des combustibles MOX. Chaque pastille est obtenue par frittage de poudres d'oxydes d'uranium (ou d'oxyde mixte dans le cas des MOX) et est constituée de grains de diamètre moyen de l'ordre de 8µm soudés entre eux (joints de grains). Le combustible MOX* se caractérise en outre par la présence de zones enrichies en plutonium, appelées amas plutonifères, de quelques µm à quelques dizaines de µm de diamètre, répartis uniformément dans la pastille.

Le crayon de combustible subit de nombreuses transformations lors de son passage en réacteur. Son état, à l'issue de l'irradiation, constitue l'état initial du combustible utilisé avant transport puis entreposage ou stockage éventuels et conditionne son évolution à long terme. L'objet de ce chapitre est ainsi de décrire l'état physico-chimique des pastilles de combustible utilisé et des gaines en sortie de réacteur.

Composition chimique de la pastille de combustible utilisé en sortie de réacteur

La composition chimique du combustible nucléaire est modifiée au cours de l'irradiation par la formation de produits de fission à la place des éléments fissiles et par la production d'autres isotopes de U et de Pu et des actinides supplémentaires par capture* neutronique. Les éléments présents dans un combustible utilisé recouvrent une large partie du tableau de Mendeleïev (fig. 129). Ils peuvent être classés selon leur forme chimique dans le crayon :

- Les éléments solubles dans le réseau fluorine de la matrice comme les actinides (Pu, Np, Am, Cm) – classe d'éléments la plus abondante en fraction massique dans le combustible irradié, les lanthanides (La, Ce, Pr, Nd, etc.), ainsi que des éléments solubles sous forme d'oxydes (Zr, Nb, Sr) ;
- les éléments formant des précipités d'oxydes : Rb, Cs, Ba, Zr, Nb, Mo, Te ;

- les produits de fission formant des précipités métalliques : Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Sb, Te ;
- les gaz de fission –Kr, Xe, He –, l'hélium de décroissance *alpha* et les PF volatils en réacteur– I, Br, Rb, Cs, Se, Te.

Malgré ces différentes transformations, le potentiel d'oxygène du combustible évolue peu sous irradiation.

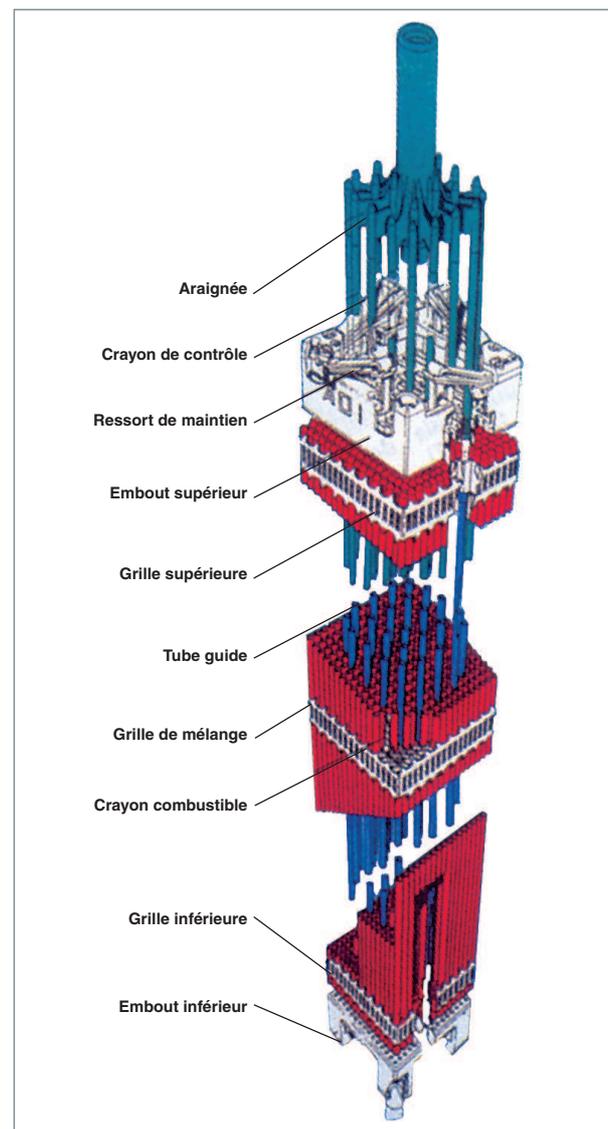


Fig. 128. L'assemblage combustible des REP.

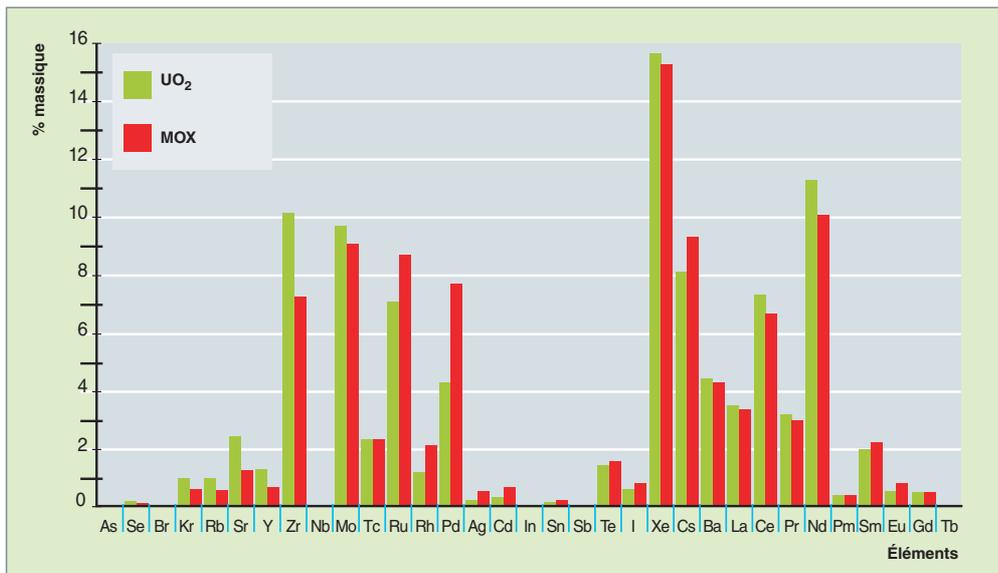


Fig. 129. Abondance relative des produits de fission pour des combustibles UO₂ en MOX irradiés à 60 GWj/t

État physique de la pastille de combustible utilisé en sortie de réacteur

Le développement d'un fort gradient radial de température dans la pastille pendant son passage en réacteur crée des contraintes mécaniques importantes conduisant à la fissuration de la pastille. Quel que soit le taux de combustion atteint, la pastille de combustible utilisé en sortie de réacteur peut être considérée comme fragmentée en une quinzaine de morceaux en moyenne (fig. 130). Le gonflement macro-

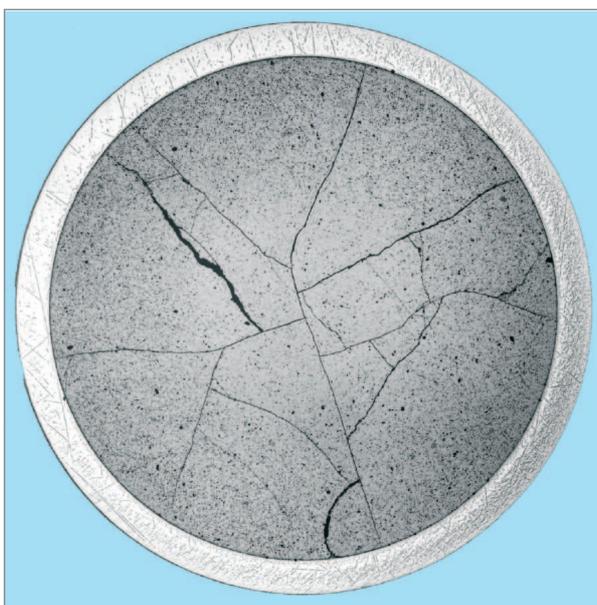


Fig. 130. Macrographie radiale d'une pastille de combustible utilisé.

scopique observé au cours de l'irradiation est dû à la formation des produits de fission, aux défauts d'irradiation et à l'apparition de bulles de gaz de fission dans les grains de UO₂.

L'irradiation en réacteur modifie fortement la microstructure de la pastille de combustible, notamment dans les deux zones suivantes :

- Les joints de grains dans lesquels s'accumulent des précipités métalliques ainsi que des bulles de gaz de fission (fig. 131). Même si les joints de grains résistent à des niveaux de contraintes élevés, ils sont fragilisés par le passage en réacteur. Pour les taux de combustion et les températures d'irradiation considérés ici, les fractographies de pastille de combustible utilisé en sortie de REP révèlent des ruptures essentiellement inter-granulaires, excepté en zone centrale de la pastille, alors qu'elles sont de type transgranulaire dans le combustible vierge ;
- les zones restructurées, en périphérie de pastille (*rim*) dans les combustibles UOX dont le taux de combustion est supérieur à 40 GWj.t⁻¹ et dans les gros amas riches en Pu (de taille supérieure à 10 μm) situés en zone externe de la pastille de combustible MOX. Ces zones restructurées se caractérisent par une porosité de taille micrométrique de l'ordre de 10% (fermée en sortie de réacteur) et des grains de petite taille (0,1 à 0,2 μm) [fig. 132].

État des gaines irradiées

Au cours de l'irradiation en réacteur, la microstructure des matériaux de gaine et de structure évolue à la fois du fait de l'irradiation (modification de la structure des dislocations) et du fait de la corrosion (oxydation et formation d'hydrures). Le passage en réacteur se traduit alors par un durcissement important des matériaux.

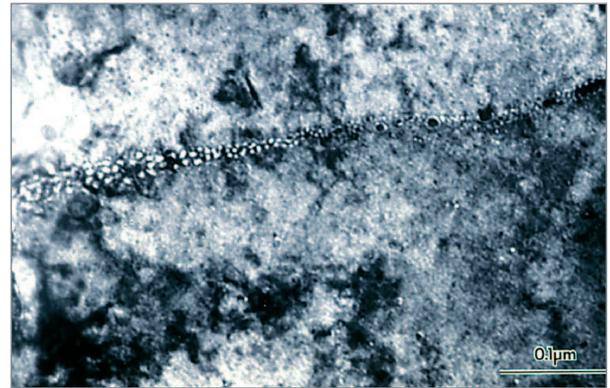
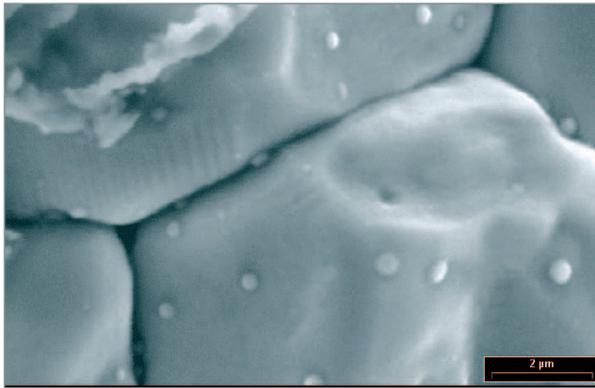


Fig. 131. Microphotographies de la céramique après irradiation prises au microscope électronique à balayage (à gauche) et au microscope électronique à transmission (à droite). On distingue l'accumulation de précipités métalliques (à gauche) et de bulles de gaz aux joints de grain (à droite).

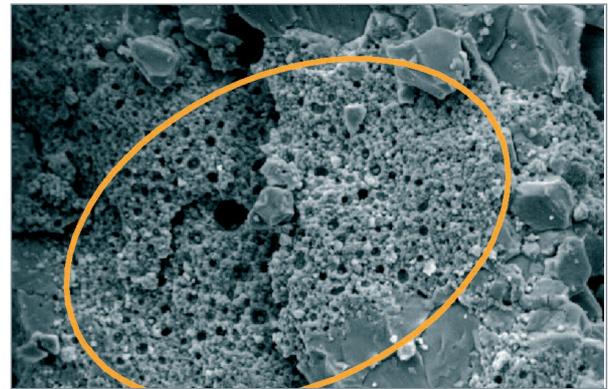
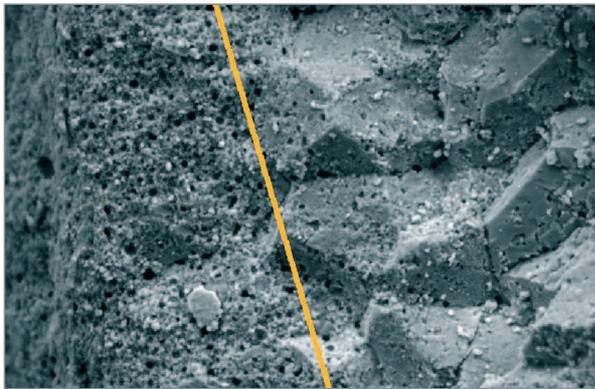


Fig. 132. Microphotographies des zones restructurées en périphérie de pastille dans un combustible UOX (à gauche) et dans un amas plutonifère d'un combustible MOX (à droite).

L'épaisseur de la couche oxydée dépend du profil axial de température durant l'irradiation et du type d'alliage utilisé. L'oxydation interne reste faible, de l'ordre de 10 μm . L'oxydation externe des gaines par l'eau est plus importante : elle est maximale dans la zone la plus chaude et reste généralement inférieure à 100 μm dans l'alliage de gaine Zircaloy-4 (elle est réduite à 25 μm après 6 cycles d'irradiation dans le nouvel alliage M5™ développé par AREVA NP, ce qui représente un progrès notable).

Par ailleurs, l'oxydation de la gaine par l'eau libère de l'hydrogène, dont une partie se trouve absorbée dans le métal. Cet hydrogène forme des plaquettes d'hydrures qui fragilisent la gaine.

En outre, suite au relâchement des gaz de fission dans les volumes libres du crayon, au gonflement de la pastille et au fluage de la gaine sous la pression externe du caloporteur lors du passage en réacteur, la pression interne du crayon après irradiation est supérieure à la pression de remplissage. Pour les crayons de combustible UOX gainés en Zircaloy-4, elle est en moyenne de 40 bars (à froid) pour une pression initiale d'hélium de 26 bars et un taux de combustion de 60 GWj.t⁻¹.

Dans les mêmes conditions, elle est légèrement supérieure pour un combustible MOX (50 bars).

C'est à une telle gaine, à la fois fragilisée et mise sous contrainte lors de son passage en réacteur qu'on demandera d'être encore capable de confiner la radioactivité dans le combustible utilisé en situation d'entreposage. La conception des conteneurs et des entreposages doit tenir compte de ces faiblesses.

► Bibliographie

CEA, « Les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue/ Recherche et Résultats ». Axe 3. Rapport final. Décembre 2005.

Cécile FERRY,
Département de physicochimie

Évolution du combustible usé en entreposage à sec

En entreposage à sec, tel que pratiqué aux États-Unis, ou lors de la phase de confinement d'un stockage géologique profond, avant l'arrivée de l'eau dans le colis, les assemblages de combustible usé n'échangent que de l'énergie avec l'extérieur, que ce soit sous forme de chaleur (impact thermique des combustibles irradiés), ou sous forme de radioactivité (radioactivité résiduelle α , β et γ des combustibles irradiés). Nous qualifions ces conditions aux limites de « système fermé », car il n'y a pas d'échanges de matière entre le système et l'environnement extérieur. Ces conditions correspondent aux conditions nominales de fonctionnement en entreposage.

Par opposition au système fermé, le système est dit « ouvert » en cas de perte de confinement par dégradation des conteneurs et rupture de la gaine des crayons de combustible usé. L'échange de matière avec l'extérieur est alors possible en plus des échanges d'énergie. L'altération de la céramique de dioxyde d'uranium se fait en phase gazeuse insaturée en vapeur d'eau et en présence d'espèces oxydantes (oxygène, oxydes d'azote générés par radiolyse...). Il s'agit là de conditions dégradées d'un entreposage à sec.

Évolution du combustible en système fermé

La décroissance radioactive des radionucléides est à l'origine des phénomènes physico-chimiques qui caractérisent l'évolution intrinsèque à long terme du combustible usé. D'une part, elle conduit à la formation d'éléments ayant des états d'oxydation différents qui pourraient affecter le potentiel d'oxygène du combustible, d'autre part, les désintégrations *alpha* produisent des atomes d'hélium au sein du cristal et sont également responsables de dommages d'auto-irradiation sous l'effet du recul de noyaux lourds sur une distance très courte, de l'ordre de quelques nanomètres. Une conséquence importante de cette évolution pourrait être un endommagement des joints de grain de l'oxyde irradié et, potentiellement, l'accroissement de l'inventaire en radionucléides labiles, qui pourraient être disséminés lors de l'arrivée de l'eau dans le colis d'assemblages de combustibles usés, au cours d'un stockage.

La décroissance *bêta* des produits de fission, tel le Cs 137 devenant du Ba 137, et des actinides, tel le Pu 241 décroissant en Am 241 modifie la composition chimique de l'oxyde irradié. On a pu montrer à l'aide de calculs d'équilibre thermo-chimique prolongés jusqu'à 300 ans, que cette évolution de la composition chimique n'est pas suffisante pour affecter l'état d'oxydation du combustible irradié après la fin de l'irradiation en réacteur. Le molybdène, produit de fission abondant, et le zirconium de la gaine constituent un tampon qui permet d'accommoder les variations de l'état d'oxydation des produits de fission.

La génération d'hélium par décroissance *alpha* des actinides soulève une question majeure pour la tenue à long terme du combustible usé. On présente sur la figure 133 un calcul type de l'activité résiduelle à l'échelle de dix mille ans pour un combustible de dioxyde d'uranium irradié à un taux de combustion de 47,5 GWj/tU. La concentration en hélium atteindra 0,7% atomique par atome de métal lourd en 10 000 ans ; pour un combustible MOX au même taux d'épuisement, elle atteindrait 4%. Au cas où l'hélium peut être relâché dans les volumes libres du crayon de combustible, cela entraînerait une augmentation significative de la pression interne dans le crayon, et, par conséquent, de la contrainte tangentielle de la gaine.

Dans l'hypothèse contraire de rétention de l'hélium dans la pastille de combustible, l'hélium pourrait précipiter sous forme de bulles de taille nanométrique ou s'accumuler aux joints de grain (piégeage dans les bulles de gaz de fission pré-existante), en cas de mobilité réduite dans le réseau cristallin. Les recherches

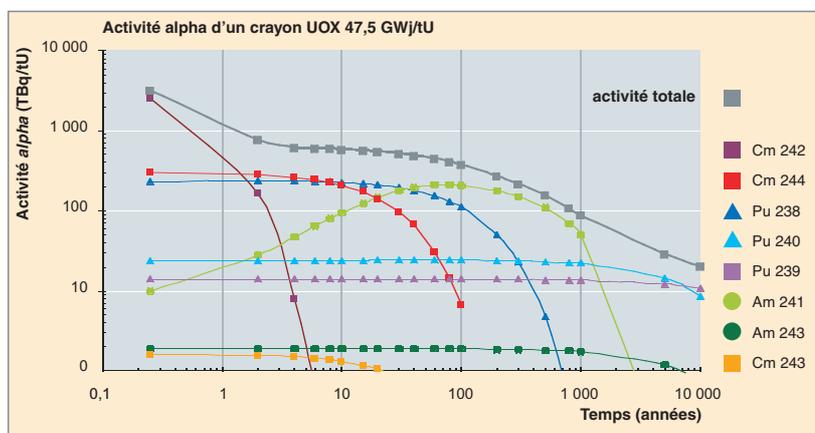


Fig. 133. Évolution dans le temps de l'activité *alpha* d'un combustible UOX irradié.

se sont concentrées sur la mobilité de l'hélium dans l' UO_2 et sur les conséquences d'une accumulation aux joints de grain du solide polycristallin.

Un coefficient de diffusion apparent a été évalué expérimentalement par des expériences d'implantations d'hélium dans des échantillons d' UO_2 , suivies de traitements thermiques en atmosphère contrôlée pour éviter une oxydation en cours d'essai. En parallèle, des mesures de désorption d'hélium ont été menées à l'Institut des Transuraniens de Karlsruhe sur des combustibles dopés au plutonium 238 dont la période de décroissance radioactive est de 87,7 ans. En extrapolant les résultats aux températures inférieures aux températures des

expériences, on observe, sur la figure 134, que la mobilité de l'hélium est supérieure à la diffusion du xénon et qu'elle varie sensiblement avec le niveau d'endommagement du combustible. En examinant de plus près le rôle des joints de grain et du dommage produit par l'implantation ionique, on a pu montrer que, dans un domaine de température compris entre 750 et 1 300 °C, la mobilité de l'hélium est accélérée au voisinage des joints de grain, tandis qu'elle était nettement plus faible au cœur des grains, l'hélium étant vraisemblablement piégé dans les défauts du cristal ou précipité sous forme de nanobulles (fig. 135, [1]). Ces recherches ont été réalisées en collaboration avec le CNRS/CERI d'Orléans et le LPS de Saclay. Au stade actuel, nous en concluons que l'extrapolation aux températures d'un entreposage à sec conduit à une mobilité limitée de l'hélium dans le combustible, au moins pour le dommage d'un entreposage centenaire.

La décroissance α des actinides est également à la source du dommage d'irradiation causé par les cascades de déplacements des atomes du réseau cristallin. Une étude atomistique en dynamique moléculaire est en cours pour simuler les effets des dégâts d'irradiation sur le cristal d' UO_2 et ses joints de grains. Des travaux expérimentaux portent également sur la caractérisation physique d'analogues naturels du combustible : uraninites et anciens combustibles dopés en actinides. Un exemple est présenté sur la figure 136 [2] : on observe sur cette photo prise au microscope électronique à balayage la microstructure atteinte en

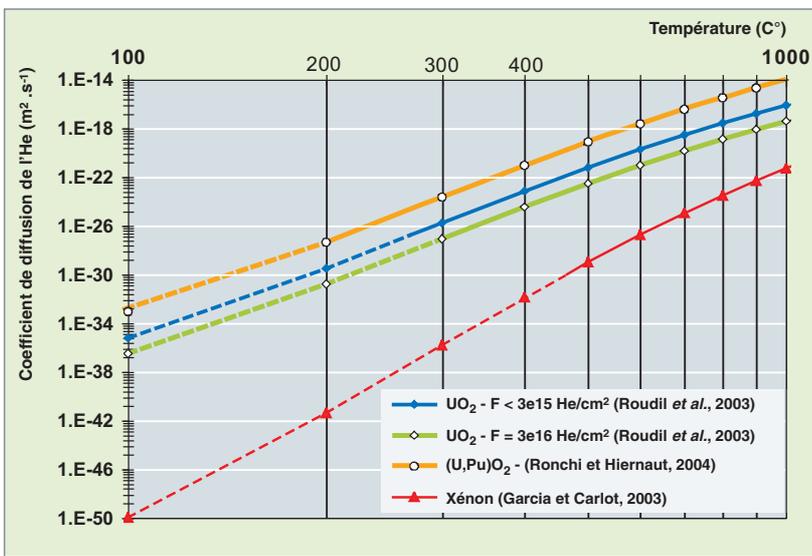


Fig. 134. Coefficients de diffusion apparents de l'hélium dans des combustibles nucléaires. Comparaison avec le coefficient de diffusion du xénon dans l' UO_2 .

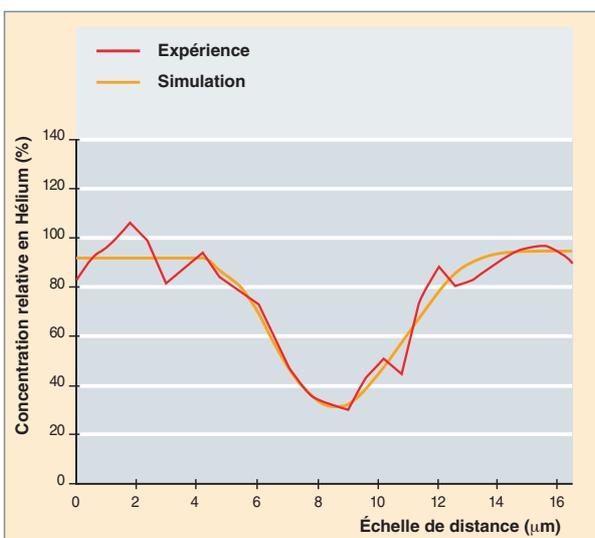


Fig. 135. Profil de concentration d'hélium autour d'un joint de grain d' UO_2 . Échantillon polycristallin implanté en hélium et recuit à 1 300 °C [1].

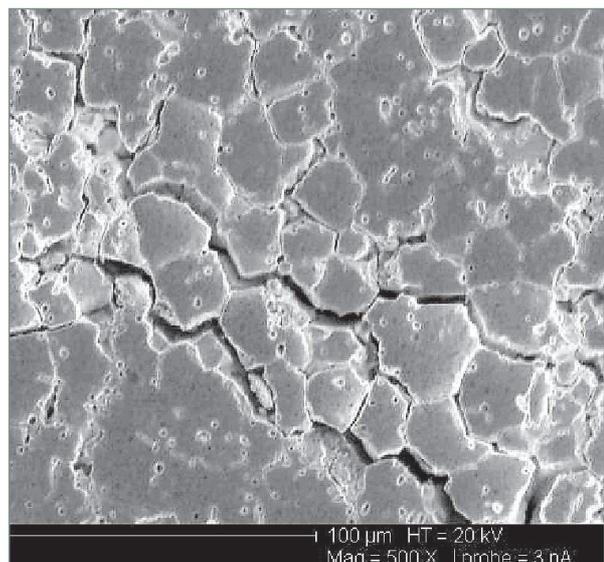


Fig. 136. Image au microscope électronique à balayage d'une pile de $^{238}\text{PuO}_2$ âgée de 30 ans [2].

trente ans par une pile de $^{238}\text{PuO}_2$ dont 21 % du plutonium a décréu à cet âge. De petites bulles et des fissures autour de quelques joints de grains sont apparues à un niveau de dommage supérieur de plusieurs ordres de grandeur à la dose que peut atteindre un combustible irradié en dix mille ans. Cette étude se poursuit sur des combustibles dopés qui atteignent des doses d'irradiation intermédiaires.

Évolution du combustible en système ouvert insaturé

En conditions incidentelles d'un entreposage à sec, le combustible irradié risque de se trouver au contact de l'air ou d'une atmosphère gazeuse oxydante. La transformation de l' UO_2 en U_3O_8 , un oxyde pulvérulent de masse volumique beaucoup plus faible que celle de l' UO_2 , constitue un risque majeur de dégradation du crayon combustible en entreposage.

Une étude de base des mécanismes d'oxydation a été engagée, avec pour objectif de comprendre toutes les étapes de l'insertion d'atomes d'oxygène dans le réseau cristallin de l' UO_2 afin de justifier les équations cinétiques d'oxydation et leur extrapolation à des temps inaccessibles à l'expérience de laboratoire. En particulier, on a réalisé une étude par diffraction de neutrons qui a permis de suivre la localisation des atomes d'oxygène insérés dans le réseau pour des compositions comprises entre UO_2 et U_3O_8 (fig. 137, [3]).

En parallèle, une étude de la cinétique d'oxydation de combustibles irradiés à un taux de combustion élevé est menée dans la durée. On a représenté sur la figure 138 le schéma type d'une telle cinétique. Le plateau intermédiaire correspond à la formation des espèces de type U_4O_9 et U_3O_7 , légèrement plus

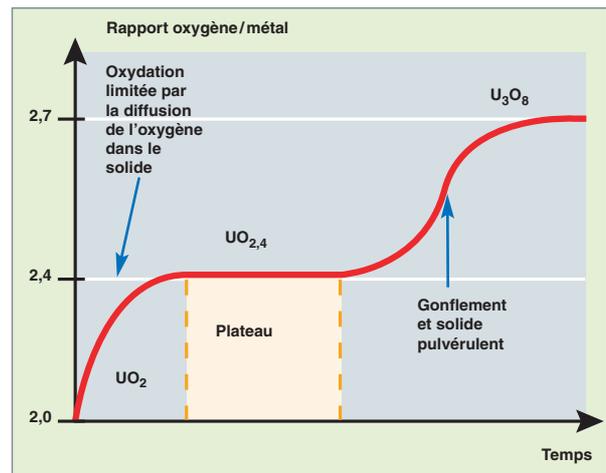


Fig. 138. Schéma de la prise de masse en oxygène d'un combustible irradié en fonction du temps, durant l'oxydation sous air.

denses que l'oxyde initial. On en trouve une illustration sur la figure 139, où nous avons reproduit une coupe observée en microscopie optique, d'un fragment de combustible irradié et oxydé à 200 °C durant 5 000 heures. À cette température, nous nous situons sur le plateau de prise de masse : on observe l'apparition de fissures consécutives à la formation des composés intermédiaires. Ce plateau est d'autant plus long que la température est basse.

Les données acquises lors de ces expériences et leur interprétation serviront à l'élaboration d'un modèle opérationnel de tenue du combustible utilisé au cas où il serait mis en présence d'une atmosphère oxydante.

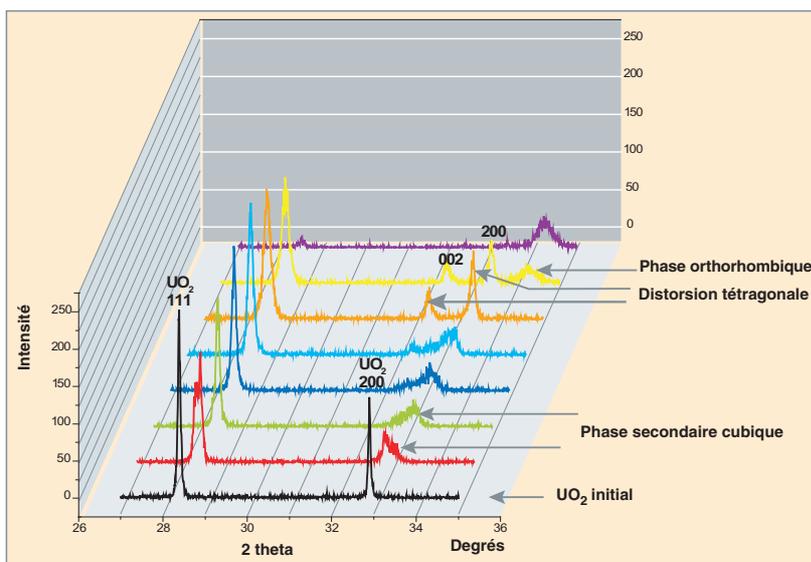


Fig. 137. Spectre de diffraction au rayons X d'un échantillon d'oxyde d'uranium montrant l'évolution structurale durant l'oxydation de l' UO_2 (cubique) en U_3O_8 (orthorhombique) à 250 °C sous une pression partielle d'oxygène de 0,2 atm. [3].

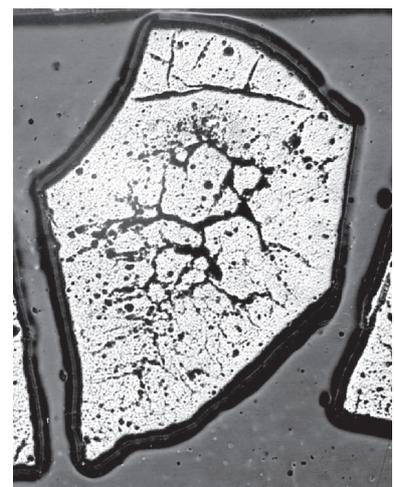


Fig. 139. Observation en microscopie optique d'une coupe d'un fragment de combustible irradié et oxydé durant 5 000 heures à 200 °C.

► **Références :**

[1] G. MARTIN *et al.*, « A quantitative μ NRA study of helium intergranular and volume diffusion in sintered UO_2 », *NIMB*, **249** (2006), 509-512.

[2] D. ROUDIL *et al.*, « Effects of a self-irradiation on actinide doped spent fuel surrogate matrix », *M.R.S. Symp.*, **Vol. 932 (2006)**, 529-536.

[3] G. ROUSSEAU *et al.*, « A detailed study of UO_2 to U_3O_8 oxidation phases and the associated rate-limiting steps », *J. Nucl. Mat.* **355** (2006), 10-20.

Jean-Paul PIRON,
Département d'études des combustibles

Modélisation du comportement à long terme du combustible utilisé

Les études de compréhension sur le comportement du combustible utilisé à sec et sous eau permettent de construire des modèles de comportement à long terme des combustibles utilisés dans ces différents contextes. L'objectif de ces modèles est de prédire le relâchement des radionucléides lors d'un incident en entreposage ou à l'arrivée de l'eau dans les conteneurs lors d'un stockage direct. Afin de garantir la robustesse des évaluations, les modèles de comportement développés par le CEA [1] représentent une vision simplifiée de l'évolution des combustibles utilisés. Des hypothèses pessimistes y sont intégrées pour gérer les incertitudes existant sur le comportement à long-terme des combustibles utilisés.

Le modèle de comportement de la pastille de combustible utilisé

La pastille de combustible irradié évolue essentiellement à cause de la décroissance radioactive des noyaux présents en son sein qui conduit à une accumulation de dégâts d'irradiation, à une modification des inventaires chimiques et à une production significative d'hélium par décroissance α . L'évolution des inventaires chimiques n'a pas d'impact significatif sur l'état d'oxydation de la pastille combustible. En revanche, la décroissance entraîne l'accumulation d'une quantité importante d'hélium dans la pastille, surtout pour les combustibles riches en émetteurs α comme les combustibles MOX (fig. 140; voir également, *supra*, « Évolution du combustible utilisé en entreposage à sec », p. 129-132). La question qui se pose est celle du

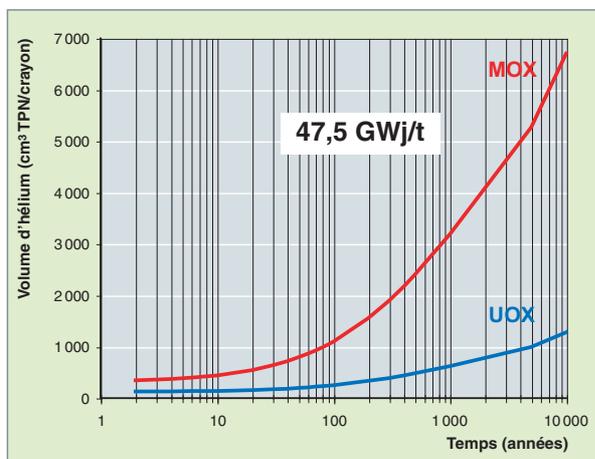


Fig. 140. Quantité d'hélium accumulée dans les crayons de combustibles UOX et MOX au cours du temps.

devenir de ce gaz, produit principalement au sein des grains des pastilles combustibles et de ses conséquences sur la tenue mécanique des joints de grains, fragilisés par l'irradiation.

Sur la base des connaissances acquises sur le comportement de l'hélium dans le combustible et sur les propriétés mécaniques de la pastille de combustible utilisé, une modélisation macroscopique conclut que la quantité d'hélium formée pendant 10 000 ans dans les combustibles UOX est insuffisante pour modifier la microstructure initiale de la pastille de combustible utilisé [2]. L'hélium devrait rester piégé dans les grains et les pores du rim*.

Cependant, ce résultat récent doit encore être validé par des modèles et expériences à l'échelle microscopique et le cas des combustibles MOX reste encore à évaluer.

Le modèle de relâchement des radionucléides par un combustible utilisé en stockage

Le stockage géologique profond conduit inévitablement à la rupture progressive des différentes enveloppes du colis (par corrosion essentiellement) et à l'arrivée de l'eau souterraine au contact du combustible. Schématiquement, le combustible évolue durant la période de corrosion des enveloppes métalliques à l'abri de toute altération par les eaux du site. Comme en entreposage, il évolue de manière intrinsèque sous l'influence de ses déséquilibres internes et des réactions de décroissance radioactive. L'évolution du combustible pendant cette première phase détermine l'état du combustible lors de l'arrivée ultérieure de l'eau. Dans une seconde période, le combustible s'altère en présence d'eau et relâche progressivement autour du colis une partie des radionucléides qu'il contient.

Le relâchement instantané des radionucléides à l'arrivée de l'eau

Entrant en contact du combustible utilisé, l'eau solubilise l'ensemble des radionucléides présents dans les vides et sur les surfaces accessibles du combustible. Il en résulte un relâchement instantané de cette fraction labile*. La quantité de radionucléides ainsi relâchés dépend de leur localisation dans le crayon à l'arrivée de l'eau au contact du combustible. Tenant compte de l'évolution intrinsèque attendue sur le long-terme, un modèle de relâchement conservatif a été développé : il

considère que 8% des produits de fission les plus mobiles (I, Cs) sont directement disponibles lors de l'arrivée de l'eau à 10 000 ans. Cette estimation est faite pour un combustible UOX ayant un taux de combustion moyen de 60 GWj/t.

Le relâchement des radionucléides avec l'altération de la matrice combustible

L' UO_2 est relativement stable en milieu géologique profond du fait du caractère réducteur du milieu d'accueil (solubilité de UO_2 extrêmement faible $\sim 10^{-9}$ mol/L). Cependant, la radioactivité résiduelle d'un combustible usé (notamment, la radioactivité *alpha* prépondérante à long terme) conduit à la radiolyse des molécules d'eau à l'interface combustible/eau. Les oxydants ainsi produits oxydent la surface du combustible (de U(IV) en U(VI)) ce qui entraîne sa dissolution et le relâchement des radionucléides occlus. La figure 141 représente de manière schématique l'ensemble des mécanismes d'altération en présence de radiolyse.

La modélisation de ces phénomènes est extrêmement complexe, dans la mesure où les réactions radiolytiques sont nombreuses (plus de 150 réactions dans les modèles couramment utilisés), de cinétiques rapides mais variées et dépendent largement du milieu environnant.

La prédiction de l'évolution à très long terme nécessite de simplifier la phénoménologie en ne retenant que les réactions prépondérantes. Dans cet esprit, le CEA a développé un modèle pour décrire le relâchement des radionucléides par dissolution radiolytique. Ce modèle permet d'évaluer le taux d'altération du combustible dans le temps comme l'indique la figure 142. Il s'agit là d'une estimation très majorante intégrant l'ensemble des incertitudes actuelles tant sur les modèles que sur les paramètres intervenant dans l'altération du combustible.

En effet, les études réalisées par les équipes européennes [4] ont montré que les effets de la radiolyse devraient être très limités dans le temps (pendant 5 000 à 15 000 ans pour un UOX de 60 GWj/t). Au-delà, la dissolution de la matrice sera contrôlée par la solubilité du combustible, et donc notamment par la concentration en uranium dissous. De ce fait, l'altération sera plus sensible aux conditions d'environnement imposées par le champ proche du colis (hydrogène, barrière ouvragée, roche).

En outre, il est probable qu'une partie des éléments relâchés par dissolution du combustible (uranium, actinides mineurs et produits de fissions) précipitent près du combustible sous forme de nouveaux minéraux dits secondaires. Ces derniers peuvent influencer l'altération du combustible s'ils sont capables de maintenir une concentration en uranium inférieure à celle du combustible. Ils peuvent également contribuer au confinement en stockage s'ils sont susceptibles de retenir une partie des radionucléides présents dans le combustible.

En conclusion, les mécanismes d'évolution à long terme des colis de combustible nucléaire usé sont clairement identifiés, même si certains points de leur évolution restent encore méconnus.

Une approche macroscopique de l'évolution intrinsèque de la microstructure de la pastille a permis de réduire une partie des conservatismes introduits dans les premières estimations de la fraction labile. Cette dernière est estimée à 8% de l'inventaire à l'arrivée de l'eau pour un combustible UOX ayant un taux de combustion moyen de 60 GWj/t. Un effort de recherche significatif est porté sur la compréhension de l'évolution des joints de grains à l'échelle microscopique afin de valider le modèle proposé.

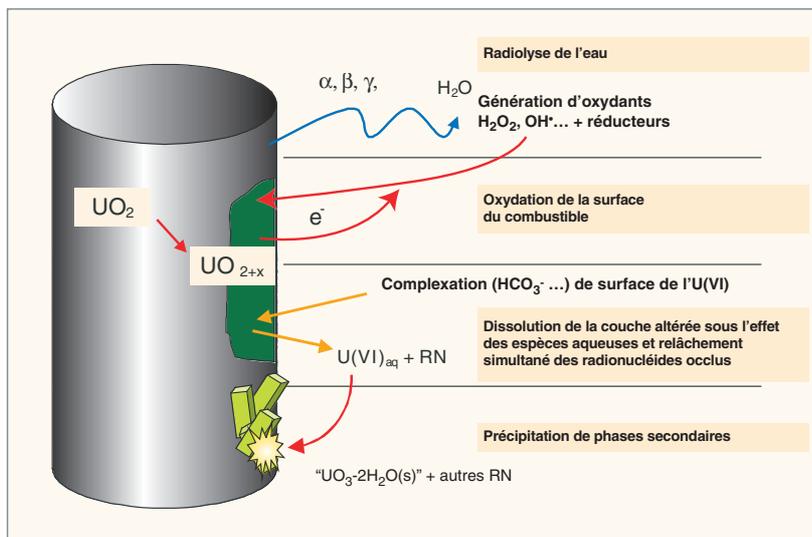


Fig. 141. Mécanismes génériques d'altération d'un combustible usé en présence d'eau.

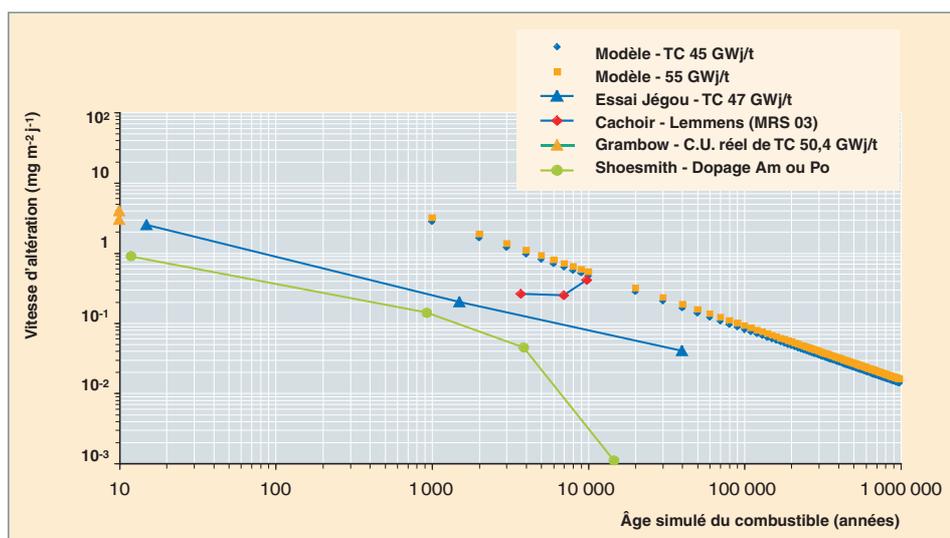


Fig. 142. Comparaison entre vitesse d'altération du combustible utilisé calculée en fonction du temps et données expérimentales [3].

En ce qui concerne l'évolution de la pastille de combustible utilisé sous eau, les études se poursuivent afin de prendre en compte le couplage avec l'environnement. Elles permettront de réduire les marges introduites dans le modèle actuel de dissolution purement radiolytique.

► Références

- [1] CEA, « Les déchets radioactifs à hautes activités et à vie longue/ Recherche et Résultats ». Axe 3. Rapport final. Décembre 2005.
- [2] C. FERRY, J-P. PIRON, A. POULESQUEN and C. POINSSOT, « Radionuclides Release from the Spent Fuel under Disposal Conditions: Re-evaluation of the Instant Release Fraction, Basis for Nuclear Waste Management XXX », *Mat. Res. Soc. Vol 985*, p. 65.
- [3] C. POINSSOT, C. FERRY, P. LOVERA, C. JÉGOU, J.M. GRAS (2005), « Spent fuel source-term model for assessing spent fuel performance in geological disposal. Part II: Matrix alteration model and global performance », *J. Nucl. Mat.* 346, 66-77.
- [4] « Final Report of the European project spent fuel stability under repository conditions », rapport CEA-R-6093 (2005), ouvrage collectif.

Cécile FERRY,
Département de physico-chimie

Les conteneurs de combustibles usés dans les concepts d'entreposage de longue durée et de stockage direct

Dans le cadre de l'examen des différents modes de gestion possibles des combustibles nucléaires usés, le CEA a été amené à étudier une option : la mise en stockage des assemblages, suite à une phase préalable d'entreposage de longue durée. À l'issue de la phase d'entreposage, les combustibles seraient transférés, sans réouverture, du conteneur d'entreposage au conteneur de stockage. Ce sont ces deux types de colis que nous allons décrire.

L'entreposage de longue durée et le conteneur associé

Le but de l'entreposage de longue durée est de fournir une solution temporaire dans la filière de la gestion des déchets en garantissant des conditions d'entreposage permettant :

- de conserver l'intégrité des colis primaires pendant une durée comprise entre cent ans et trois cents ans, afin de permettre leur reprise pour un devenir ultérieur ;
- d'assurer la sécurité des travailleurs, du public et de l'environnement pendant toutes ces opérations.

Les principes généraux de conception des conteneurs d'entreposage sont les mêmes pour les combustibles usés UOX, ou MOX, ou encore pour les colis de déchets vitrifiés.

Le conteneur décrit ici est destiné à accueillir les combustibles usés de type UOX pour un entreposage à sec de durée séculaire.

Il n'est affecté au conteneur que deux fonctions principales :

- fonction « confinement » :
- fonction « aptitude à la reprise ».

Des fonctions secondaires découlent de ces fonctions principales :

- fonction « aptitude à l'évacuation de la chaleur résiduelle des combustibles »
- fonction « garantie de sous-criticité »
- fonction « aptitude à la manutention ».

Les autres fonctions sont reportées sur l'entrepôt (protection biologique, protection physique, refroidissement externe).

Le respect de ces fonctions a conduit à concevoir un conteneur à double barrière de confinement (fig. 143) :

- la première barrière est constituée par un étui accueillant un seul assemblage : outre sa fonction confinement, cet étui constitue l'élément de base compatible avec un traitement ultérieur ou avec la mise en conteneur spécifique pour un éventuel stockage géologique ;

- la deuxième barrière est constituée par un conteneur de capacité de sept étuis.

L'étui est un cylindre de diamètre extérieur 330mm, de hauteur 4893mm et d'épaisseur 4mm, dont la capacité est de 1 assemblage. Il est élaboré en acier 304L, fermé grâce à une soudure TIG*.

Il a été dimensionné pour respecter en particulier, une tenue à la chute de l'ordre de 9m et pour permettre une extractibilité après une durée de trois cents ans (fig. 144).

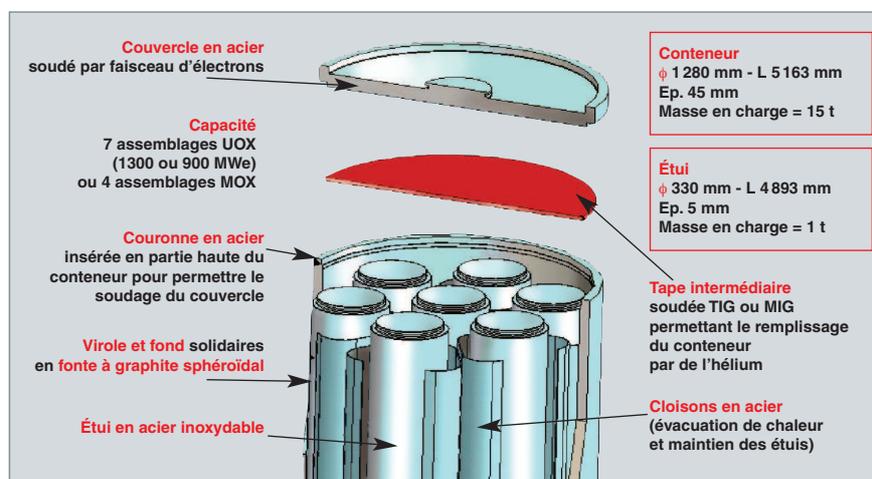


Fig.143. Le colis d'entreposage de longue durée de combustible.



Fig. 144. Démonstrateur « échelle 1 » de l'étui individuel.

Le conteneur qui constitue la seconde barrière de confinement, est un cylindre de diamètre extérieur de 1 280 mm, de hauteur 5 168 mm et d'épaisseur 45 mm, pour une capacité de 7 étuis pour combustibles usés UOX.

Il est constitué d'un corps en fonte à graphite sphéroïdal 400-15, avec une couronne en acier pour des raisons de soudabilité, et d'un couvercle en acier S235, soudé par faisceau d'électrons sur 45mm (fig. 145).



Fig. 145. Démonstrateur « échelle 1 » du conteneur d'entreposage.

Un conteneur en fonte

La corrosion peut être une cause de défaillance du conteneur d'entreposage. Les matériaux métalliques ont été envisagés selon leur comportement en corrosion.

Les matériaux « passivables » (aciers inoxydables, Hastelloy, Inconel) semblent séduisants pour l'entreposage. Cependant, en fonction du milieu et des contraintes mécaniques locales appliquées au matériau, des phénomènes de corrosion locali-

sée (corrosion sous contraintes, piqûres) peuvent apparaître. Les autres métaux passivables ou thermodynamiquement stables dans les conditions d'un entrepôt (titane, cuivre, tantale, or, ...) ont été écartés pour des raisons de coûts et / ou de disponibilité.

À la différence de la corrosion localisée, l'évolution de la corrosion homogène est plus facilement prévisible. Deux familles de métaux industriels courants ont été finalement envisagées : les aciers non ou faiblement alliés et certaines fontes. Par rapport à l'acier, la fonte présente la possibilité de réaliser le corps du conteneur en une seule partie, sans soudures, une meilleure résistance à la corrosion, un coût deux fois plus faible. L'option « fonte à graphite sphéroïdal » permet d'obtenir une résistance à rupture en traction comparable à celle d'un acier de construction mécanique. L'allongement à la rupture reste légèrement inférieur à celui d'un acier mais est compatible avec les critères de dimensionnement mécaniques retenus.

L'inconvénient relatif au soudage « en forte épaisseur » de la fonte a pu être contourné en insérant une couronne en acier en partie haute du conteneur lors de la coulée. La présence de cette couronne permet de réaliser une soudure acier / acier entre le couvercle et le conteneur lors de la fermeture finale après chargement. La faisabilité de cette liaison entre la fonte et la couronne en acier a été validée à différentes échelles.

Un point délicat : la fermeture du conteneur

Plusieurs systèmes de fermeture du conteneur ont été étudiés, qui, tous, nécessitaient une optimisation de leur mise en œuvre dans le cadre de la longue durée.

Trois techniques de soudage « pleine épaisseur » ont été évaluées : soudage TIG, soudage par faisceau d'électrons, soudage par laser YAG. Pour le soudage TIG, la faisabilité de la technique a été démontrée, cependant les retraits mesurés (comparaison avant et après soudure) sont importants et engendrent probablement des contraintes résiduelles non négligeables. Concernant le soudage par laser YAG, des contrôles effectués après soudage ont mis en évidence des défauts de soudure. Ce procédé ne présente pas de difficulté de déploiement en milieu hostile et est très prometteur, mais il serait souhaitable de poursuivre son optimisation.

La technique de soudage par faisceau d'électrons se caractérise par le fait que le soudage se fait en une seule passe. Les vitesses de soudage sont très élevées puisque le soudage complet d'un conteneur devrait se faire en moins de deux heures. Les essais de qualification ont aussi permis de vérifier le maintien de la qualité du cordon en début et en fin d'opération de soudage.

Le programme de démonstration a intégré la fabrication à l'échelle 1 d'un conteneur d'entreposage, mais également des tests de chute sur objets à échelle réduite.

Le conteneur de stockage

Comme il est décrit dans l'introduction, à l'issue de la phase d'entreposage, les étuis étanches doivent pouvoir être transférés, sans réouverture, dans le conteneur de stockage, assurant la continuité entre l'entreposage et le stockage.

Les contraintes spécifiques en termes de thermiques et de criticité ont conduit à retenir un conditionnement par quatre assemblages UOX.

Ce colis est composé de trois parties (fig. 146) :

- une virole ; il s'agit d'une pièce forgée, en acier non allié, d'épaisseur 110 mm.
- un insert ; cette pièce est coulée directement dans le conteneur, et comprend quatre alvéoles dans le cas du combustible UOX. Seul le procédé par coulée permet de garantir des jeux suffisamment faibles entre le conteneur et l'insert pour que le conteneur ne subisse pas, du fait de la pression externe du milieu, lors du stockage, de déformation supérieure à la limite élastique de l'acier qui le constitue.
- un couvercle ; il est soudé en pleine épaisseur par faisceau d'électrons en cellule après mise en place des assemblages. Ce procédé a été retenu pour les mêmes raisons que précédemment.

En conclusion, grâce aux développements menés au CEA, les composants techniques nécessaires à l'entreposage longue durée et au stockage du combustible usé existent désormais. Ces options de gestion du combustible usé sont donc disponibles, au cas où les industriels et les pouvoirs publics souhaiteraient les mettre en œuvre, en lieu et place de la stratégie de traitement-recyclage actuellement retenue.



Fig. 146. Le conteneur de stockage.

► Bibliographie

CEA, « Les déchets radioactifs à hautes activités et à vie longue/ Recherche et Résultats ». Axe 3. Rapport final. Décembre 2005.

Nicolas MOULIN,

Département de technologie du cycle du combustible

Conclusion sur l'entreposage et le stockage direct de combustibles usés

Ce qui précède montre que le combustible usé n'est pas une matrice de confinement. À sa sortie du réacteur, le crayon combustible est certes encore étanche, mais son état ne permet pas de garantir le confinement à long terme des radionucléides. La matrice céramique est endommagée par l'irradiation ; le crayon est sous pression à cause de l'accumulation des produits de fission et de l'hélium en son sein ; la gaine est fragilisée par l'irradiation ; elle est corrodée intérieurement par les produits de fission, et extérieurement par l'eau sous pression du réacteur. Malgré cela, les études sur la cinétique de corrosion indiquent que le combustible usé sera capable de confiner les radionucléides en situation d'entreposage, c'est-à-dire à l'abri des agressions extérieures et pendant une période de temps restreinte. L'entreposage à sec comme l'entreposage sous eau sont faisables, car les phénomènes d'oxydation à sec et de corrosion sous eau sont lents. Il conviendra toutefois de s'assurer que ledit entreposage est bien

conçu, et maintient le combustible dans des conditions de température acceptables. Mais en situation de stockage, la corrosion des enveloppes métalliques et de la gaine accomplira son œuvre à long terme et mettra la céramique au contact de l'eau souterraine. La fraction « labile » (quelques pourcents de l'inventaire radioactif) sera alors relâchée. Les pays qui ont choisi le stockage direct du combustible usé (Suède, Finlande, États-Unis) sont confrontés à cette difficulté. Pour la résoudre, tous font reposer la sûreté du stockage sur des barrières ouvragées sophistiquées, qui assureront le confinement à long terme des radionucléides. De loin le plus avancé, le concept suédois emploie des conteneurs acier-cuivre capables de résister très longtemps à la corrosion. Le soin apporté par les Suédois à l'élaboration de ces conteneurs, en particulier au niveau du contrôle des impuretés métalliques et des soudures, montre clairement la difficulté de l'entreprise. Décidément, l'option du cycle fermé et de la vitrification des déchets permet une gestion des déchets plus rationnelle...

Bernard BONIN,
Direction scientifique