

La gestion des déchets de haute activité

par Wm. L. Lennemann

DEFINITION DES DECHETS DE HAUTE ACTIVITE

Les termes "déchets radioactifs de faible, de moyenne ou de haute activité", qui laissent entendre qu'il existe des concentrations différentes de radionucléides ou de radioactivité dans les déchets, sont aujourd'hui d'emploi courant. Adoptés dans les années 50 pour des raisons pratiques, ils indiquaient de façon générale comment les déchets étaient traités et ce que l'on en faisait dans les conditions d'exploitation de tel ou tel site, sans désigner des concentrations ou des contaminations radioactives précises. Cela est toujours vrai, puisque ces trois catégories ne correspondent pas aux mêmes définitions ou aux mêmes quantités dans tous les pays ni même dans tous les établissements d'un même pays [1 et 2].

Au cours des dix dernières années, on a assisté à de nombreuses tentatives pour définir ces trois catégories en fonction du niveau de radioactivité, afin de supprimer toute confusion. Ces tentatives ont suscité une vive opposition car, par exemple, le traitement et les effets d'une curie de radiostrontium diffèrent de ceux d'une curie de plutonium, qui diffèrent à leur tour de ceux d'une curie de tritium et ainsi de suite pour tous les radionucléides. En outre, les déchets de faible, de moyenne ou de haute activité ne seraient pas définis de la même façon par les radioprotectionnistes, les exploitants, ou les responsables des transports ou de l'immersion, etc. Cependant, les expressions "faible, moyenne ou haute activité", malgré leur sens très large et bien qu'elles se recoupent parfois, sont généralement comprises par tous ceux qui s'occupent de la gestion des déchets radioactifs et de ses techniques.

Les déchets de haute activité sont caractérisés, comme leur nom l'indique, par des niveaux de rayonnement élevés mais, ce qui les distingue surtout, c'est qu'ils exigent des manipulations et des précautions particulières, par exemple un bouclier biologique épais et des systèmes de refroidissement artificiel en raison de la chaleur dégagée par la désintégration radioactive. L'expression "déchets de haute activité" désigne généralement les effluents liquides provenant du premier cycle des opérations de retraitement du combustible qui permettent de récupérer le plutonium et l'uranium non brûlé. Elle s'applique également à toute matrice enrobant, en concentration suffisante pour nécessiter un refroidissement, des produits de fission et des actinides (éléments transuraniens émetteurs alpha), à moins que ceux-ci n'aient été séparés des déchets. On peut citer comme exemple de déchets de cette catégorie les déchets de haute activité solidifiés ou le combustible épuisé "à jeter" et éventuellement les gaines. Sont parfois considérés comme des déchets de haute activité les composants de réacteurs fortement irradiés tels que barres de commande, tubes ou orifices d'écoulement, et les conteneurs de krypton 85 qui contiennent plusieurs millions de curies de ce gaz produit par la fission.

On examinera ici essentiellement la gestion des déchets de haute activité qui se forment à l'intérieur du combustible nucléaire pendant sa combustion (son irradiation) dans un

M. Lennemann dirige la Section de la gestion des déchets de la Division de la sûreté nucléaire et de la protection de l'environnement de l'AIEA.

réacteur. Sauf indication contraire, mes remarques s'appliquent aux combustibles des réacteurs à eau légère, bien qu'en principe elles soient aussi valables pour les déchets nucléaires produits dans d'autres types de combustible.

La principale précaution à prendre pour gérer les déchets de haute activité est de les isoler de la biosphère et d'éviter tout rejet appréciable de radionucléides, du moins dans des concentrations qui pourraient être dangereuses pour l'être humain, et ceci aussi longtemps que subsiste ce risque. Les spécialistes de la gestion des déchets nucléaires admettent généralement qu'un plan satisfaisant de gestion des déchets de haute activité comporte la chaîne d'opérations ci-après:

- stockage provisoire sous forme liquide (s'il s'agit de déchets liquides);
- solidification des déchets liquides et emballage des déchets solidifiés;
- stockage des déchets solides dans un milieu artificiel;
- entreposage des déchets solides dans des formations géologiques (soit sous terre, soit sous le fond des océans).

Les remarques qui suivent sont présentées dans l'ordre de ces opérations (voir figure 1). On peut également utiliser d'autres méthodes, que nous signalerons. A l'exception du procédé français de vitrification, dont l'exploitation industrielle vient de commencer à Marcoule, les méthodes industrielles actuelles ne permettent pas de traiter le combustible des réacteurs de puissance au-delà de la première opération, mais des travaux considérables de recherche-développement sont actuellement consacrés aux procédés de solidification et aux installations de stockage provisoire. On étudie également de très près les sites qui pourraient se prêter au stockage définitif des déchets ou les formations géologiques qui pourraient être transformées en cimetières. Ces questions seront examinées dans la suite du présent article.

RETRAITEMENT DU COMBUSTIBLE ET DECHETS DE HAUTE ACTIVITE

Le procédé de retraitement qui est actuellement appliqué au combustible des réacteurs de puissance, et qui continuera certainement de l'être pendant quelque temps encore, consiste soit à découper ou à cisailier l'élément combustible pour le réduire en morceaux, soit à dégainer le combustible et à le dissoudre dans une solution aqueuse d'acide nitrique. (Le gainage qui subsiste après dissolution du combustible est communément appelé "coque".) Le plutonium et l'uranium non brûlés (matières fissiles) sont récupérés par séparation chimique. La solution d'acide nitrique restante, qui contient, avec les produits chimiques ajoutés en cours de traitement, plus de 99% des produits de fission non volatils, ainsi que des impuretés provenant des gainages, des produits de corrosion, plusieurs millièmes du plutonium et de l'uranium initialement dissous et la plupart des actinides, constitue le déchet de haute activité. Chaque tonne de combustible retraité donne 5 à 10 m³ de ce déchet liquide de haute activité, selon le combustible et le diagramme de retraitement. Après avoir traité les déchets pour enlever tous les solvants organiques qui pourraient subsister, on les concentre par évaporation pour qu'ils n'occupent plus que 5 à 15% de leur volume initial en vue du stockage dans des réservoirs spéciaux. Le degré de concentration dépend de la nature des déchets, de la formation de précipités et de la capacité de refroidissement des réservoirs. Dans le cas des combustibles pour réacteurs à eau légère, à chaque millier de MW(e) produit correspondent environ 15 m³ de déchets liquides de haute activité à stocker.

Le tableau 1 indique les déchets de haute activité qui correspondent aux différents types de réacteurs et aux différentes techniques de retraitement du combustible. La gestion de ces déchets doit être intégrée dans l'exploitation de l'installation de retraitement et ne peut pas être organisée à court terme. Elle doit être prévue, étudiée et planifiée plusieurs

années à l'avance. On admet généralement que les déchets liquides de haute activité doivent être solidifiés à un moment ou à un autre pour se présenter sous une forme plus stable.

STOCKAGE DES DECHETS LIQUIDES DE HAUTE ACTIVITE

Actuellement, on estime en général que les déchets liquides de haute activité provenant du retraitement des combustibles des réacteurs de puissance doivent être conservés, sous leur forme acide, dans des réservoirs d'acier inoxydable de haute intégrité. (La méthode consistant à neutraliser le déchet acide au moyen d'un produit caustique et à le stocker dans des réservoirs d'acier au carbone n'est pas indiquée car elle augmente considérablement le volume du déchet, entraîne la formation de précipités et de boues et réduit les possibilités de traitement ultérieur).

Les conteneurs (cuves) sont placés dans des cellules de béton à parois épaisses ou des casemates souterraines qui assurent un blindage approprié, et soit ont une double paroi, soit sont revêtus d'acier pour retenir tout produit qui pourrait s'échapper des conteneurs primaires. Le conteneur extérieur doit avoir une capacité suffisante pour retenir tout le contenu de la cuve primaire. Les cuves actuelles en acier inoxydable ont une capacité de 70 à 1000 m³. Des systèmes de refroidissement par eau associés à des installations de refroidissement de secours sont prévus pour évacuer la chaleur résultant de la désintégration radioactive, la température de la solution étant habituellement maintenue en-dessous de 65°C de façon à réduire la corrosion de l'acier inoxydable. Les parcs de cuves de stockage doivent également être équipés de systèmes d'agitation, de ventilation, de surveillance, d'évacuation des cuves intérieures et extérieures, de condensation de la vapeur, d'élimination des gaz produits par radiolyse et de filtrage des gaz d'évacuation.

Les parcs où seront stockés les déchets liquides de haute activité devront être équipés de systèmes permettant de remplir et de vider fréquemment les cuves, et il faudra réduire au minimum les obstacles qui empêcheraient l'évacuation ou la décontamination des cuves intérieures et extérieures et de la casemate. Il faudra également ménager un espace suffisant entre le conteneur intérieur, le conteneur extérieur et la casemate pour les inspections et tous les travaux d'entretien. Les parcs devront aussi être équipés de très nombreux dispositifs et instruments de surveillance permettant de mesurer le niveau de remplissage des cuves et la température des cuves et des liquides, et de détecter les fuites. Pour le transfert des liquides, l'écoulement par gravité est préférable au pompage. La capacité des cuves doit être suffisante, et il est souhaitable de disposer à tout moment d'une cuve vide de secours. Les cuves doivent être étudiées et construites suffisamment à l'avance pour être prêtes lorsqu'on en a besoin. La gestion d'un parc de cuves pour déchets radioactifs liquides doit être soigneusement étudiée plusieurs années à l'avance.

Plusieurs pays ont déjà fait la preuve que l'on pouvait stocker en toute sûreté des déchets liquides de haute activité dans des cuves pendant plusieurs années. Quelques fuites se sont produites aux Etats-Unis, mais sur des cuves de modèle ancien, en acier doux. En revanche, il n'y a pas eu de fuites ou d'autres difficultés importantes là où l'on a stocké les déchets acides dans des cuves d'acier inoxydable, qui se sont révélées d'emploi sûr et pratique. Ces cuves conviennent à de nombreux types d'exploitation et ne restreignent aucunement les possibilités de traitement ultérieur des déchets. Elles assurent par ailleurs un stockage satisfaisant pendant des périodes extrêmement longues. Elles ne sont toutefois pas éternelles et doivent être associées à des systèmes d'évacuation de la chaleur et à d'autres systèmes auxiliaires. Il faut donc les surveiller et prévoir des cuves vides utilisables en cas de défaillance imprévue. Enfin, il faut les remplacer au bout d'un certain temps si l'on envisage de continuer à stocker les déchets selon cette méthode.

Cependant, on considère généralement que le stockage des déchets de haute activité sous forme liquide n'est qu'une solution provisoire et qu'il faut solidifier les déchets lorsque cela est possible. Cette solidification rend les déchets plus stables et diminue les risques de dispersion. En outre, la forme solide convient mieux au transport, au stockage et à l'évacuation.

SOLIDIFICATION DES DECHETS DE HAUTE ACTIVITE

La solidification, quel que soit le procédé employé, doit donc permettre de transformer la solution de déchets de haute activité en une masse solide moins mobile, plus stable, nécessitant une surveillance moindre et mieux adaptée au transport et au stockage provisoire ou définitif. Théoriquement, le déchet solide devrait présenter certaines caractéristiques — par exemple, une grande stabilité à la chaleur et aux rayonnements, une bonne conductibilité thermique et un point de fusion élevé. Il doit également conserver son intégrité mécanique, résister aux chocs et avoir un très faible taux de lixiviation par l'eau. En pratique, toutefois, il n'est pas nécessaire que le déchet solidifié présente toutes ces caractéristiques, ni que tous les déchets présentent des caractéristiques identiques: tout dépend de ce que l'on pense en faire ultérieurement.

On a mis au point plusieurs procédés de solidification des déchets liquides de haute activité utilisant notamment des lits fluidisés, des lits agités, des fours rotatifs ou à creusets et des chambres à pulvérisation [3]. Dans tous ces procédés, on déshydrate et dénitrate les déchets et on porte les résidus à des températures allant de 400 à 1200°C pour éliminer la plupart des composants volatils et obtenir un produit de calcination solide. Toutefois, la plupart des déchets calcinés étant légèrement solubles dans l'eau, on les considère généralement comme impropres au stockage provisoire ou permanent. On ajoute donc, le plus souvent, des particules vitrifiables de borosilicate ou de phosphate, soit au stade de la calcination, soit à une étape ultérieure du procédé de solidification, incorporant ainsi le produit de fission et les oxydes actiniques dans un verre en fusion qui, en refroidissant, donne un produit vitrifié dont le taux de lixiviation est analogue à celui du Pyrex. Les principaux procédés de vitrification permettent d'obtenir des blocs de verre monolithiques dans des conteneurs en acier inoxydable. A 1000 MW(e) produits chaque année dans des réacteurs à eau légère correspondent 2 à 4 m³ de verre contenant 20 à 30% de déchets sous forme d'oxydes, selon la quantité de chaleur de désintégration radioactive admissible, qui dépend elle-même des températures à ne pas dépasser au centre et à la surface des conteneurs pleins.

Bien que la solidification des déchets liquides de haute activité soit étudiée depuis une vingtaine d'années dans plusieurs pays qui retraitent les combustibles irradiés, deux procédés seulement sont suffisamment perfectionnés pour pouvoir être appliqués de façon courante. L'Idaho Chemical Processing Plant produit depuis 15 ans des déchets vitrifiés au moyen d'un procédé de calcination sur lit fluidisé, et l'exploitation industrielle d'une usine de vitrification équipée d'un calcinateur rotatif associé à un four de fusion produisant un verre borosilicaté a commencé à Marcoule, en France (procédé de l'AVM).

En plus de la calcination et de la vitrification de type classique, il existe des procédés plus récents reposant sur la production de granulés calcinés ou de granulés de fer qui sont ensuite enrobés de carbone pyrolytique, de carbure de silicone et de fines couches de métal. Dans certains de ces procédés, on incorpore les granulés calcinés ou vitrifiés dans des matrices de types divers de métal, d'alliage métallique ou de graphite. D'autres techniques, encore à l'étude ou déjà au point, sont notamment fondées sur des réactions exothermiques qui permettent d'obtenir des produits métalliques ou céramiques contenant les radionucléides et théoriquement insolubles, la production de minéraux cristallins

synthétiques enfermant les radionucléides à l'intérieur de réseaux cristallins à faible solubilité, de produits de calcination pressés et frittés ou de produits céramiques, et l'adsorption par des zéolites ou des éponges argileuses puis par traitement à haute température. Beaucoup de ces procédés aboutissent à un produit final solide d'une qualité supérieure à celle du produit obtenu par la simple vitrification, mais leur application est souvent beaucoup plus compliquée et le produit final beaucoup plus volumineux par unité d'électricité produite.

Quoi qu'il en soit, la plupart des procédés de solidification à haute température, notamment la calcination et la dénitrification, consistent à transformer par évaporation et dénitrification les déchets liquides en résidus solides. Cela nous conduit à examiner le traitement des gaz d'évacuation. En plus de la vapeur et des oxydes d'azote, les gaz d'évacuation entraînent habituellement de fines particules, dont certaines sont radioactives, ainsi que des radionucléides volatils tels que le ruthénium. On traite les gaz d'évacuation pour capturer et éliminer les composants radioactifs, afin que les rejets dans l'atmosphère ne dépassent pas des limites acceptables.

Le matériel des installations de solidification des déchets de haute activité est constitué pour l'essentiel par le système de traitement des gaz d'évacuation, qui est parfois la partie la plus complexe et la plus délicate de l'ensemble. Ce système est généralement composé d'une suite complexe de filtres, de condensateurs, de laveurs de gaz, de fractionneurs et même d'adsorbants sur lit sec. La plupart des condensats et des produits de lavage sont recyclés, les autres peuvent être évacués après un traitement qui ramène la radioactivité à des niveaux acceptables.

STOCKAGE PROVISOIRE DES DECHETS SOLIDIFIES DE HAUTE ACTIVITE

On étudie actuellement des solutions au stockage des déchets solidifiés de haute activité. Il faudra attendre au moins une dizaine d'années pour appliquer celles qui conviennent le mieux ou même seulement pour apporter la preuve qu'elles sont valables. D'ici là, il faudra stocker tous les déchets solidifiés de haute activité de façon à pouvoir les récupérer rapidement et de façon sûre. Et même, il sera peut-être souhaitable de les stocker plus longtemps, de façon à ce que les déchets soient davantage refroidis (désactivés) et la production de chaleur ralentie, surtout si l'on doit stocker les déchets dans des formations géologiques. Quoique certains recommandent de stocker définitivement les déchets de haute activité immédiatement après les avoir solidifiés, on devra probablement continuer à les stocker quelque temps à ce stade avant de les transporter dans une installation de stockage définitif.

Il convient de préciser la différence entre le stockage provisoire et le stockage définitif. Stocker provisoirement les déchets consiste à les déposer dans un emplacement où on pourra les récupérer. Les installations de stockage provisoire doivent être situées, conçues et exploitées de façon à faciliter les transferts éventuels de déchets. Stocker définitivement les déchets consiste à les déposer dans un emplacement sans intention de les récupérer, après s'être assuré toutefois qu'ils seront parfaitement isolés une fois qu'ils seront hors d'accès.

Les installations de stockage retenues jusqu'à présent pour les déchets solidifiés de haute activité se répartissent en trois catégories: a) les piscines; b) les casemates ventilées; c) les châteaux de transport ou les récipients de métal blindés et ventilés. Les piscines, les casemates ventilées peuvent être situées en surface, dans le sol ou dans des excavations souterraines. Chacune de ces solutions présente des avantages et des inconvénients évidents, mais elles offrent toutes du point de vue technique une sûreté suffisante. Le choix dépend des conditions locales et des préférences personnelles. Le stockage en

châteaux de transport ou en récipients métalliques blindés et ventilés est un stockage de surface qui nécessite des terrains beaucoup plus étendus que les deux autres solutions.

On pourra appliquer pour stocker les déchets de haute activité les enseignements tirés de l'expérience du stockage des éléments de combustible irradié dans des casemates ventilées et surtout dans des piscines. Bien que l'on ait étudié plusieurs variantes de chacune de ces solutions, la seule installation de stockage qui fonctionne déjà est une casemate ventilée qui sert à stocker le produit de l'atelier de vitrification de Marcoule. Une casemate ventilée analogue destinée à des déchets vitrifiés de haute activité serait actuellement construite en Inde. De même, à l'Idaho Chemical Processing Plant, le produit granulé provenant du calcinateur à lit fluidisé est stocké dans de grands réservoirs de 3,7 mètres de diamètre sur 14 mètres de haut situés dans une casemate ventilée. Il s'agit d'un cas particulier, car le produit calciné contient relativement peu de produits de fission (faible production de chaleur). Les trois principaux types de stockage sont décrits ci-après, étant entendu que chacun d'eux admet de nombreuses variantes:

a) **Piscines:** les conteneurs sont généralement, mais non obligatoirement, scellés à l'intérieur d'emballages d'acier inoxydable qui sont ensuite stockés dans des piscines de béton revêtues d'acier inoxydable et remplies d'eau déminéralisée. L'eau est un agent de refroidissement et constitue un écran transparent contre les rayonnements. La chaleur provenant de la désintégration radioactive est évacuée par circulation d'eau, puis transférée vers une boucle de refroidissement secondaire d'où elle est rejetée soit par des tours de refroidissement, soit dans un bassin d'évacuation ou toute autre source froide. Le système de refroidissement doit être redondant, il doit fonctionner sans interruption et sous surveillance constante et il nécessite une approvisionnement adapté en eau de refroidissement et des contrôles stricts de la chimie de l'eau afin de réduire au minimum la corrosion, particulièrement en cas de stockage prolongé. L'eau constitue d'ailleurs une barrière supplémentaire contre la contamination en cas de fuite du conteneur de déchets ou de son emballage et également une source froide en cas de défaillance brève du système de refroidissement.

b) **Casemates ventilées:** les conteneurs sont scellés dans des emballages d'acier au carbone qui sont suspendus dans des casemates de béton et entourés soit de manchons d'acier, soit d'écrans qui orientent l'air de refroidissement. L'air de refroidissement filtré provenant d'une zone de distribution inférieure monte par des anneaux entre les emballages et les manchons d'acier, ou est distribué de façon appropriée autour des emballages par les écrans et repris dans une zone supérieure. Après avoir traversé un filtre à haute efficacité, l'air chaud est évacué par une cheminée. En raison des chutes de pression et de la nécessité d'assurer un bon refroidissement, il faut prévoir une circulation forcée de l'air. Toutefois, si l'on n'a pas besoin d'un très fort refroidissement, on peut parfaitement assurer la ventilation de la casemate au moyen de courants d'air naturels. Le blindage contre les rayonnements est constitué par la construction en béton épais ou l'emplacement de la casemate. Ce système de stockage suppose des emballages de haute intégrité, une surveillance permanente de la circulation de l'air et, lorsqu'une circulation forcée est nécessaire, un système de secours fiable. Il a l'inconvénient de ne pas exclure l'éventualité d'une contamination par l'air en cas de défaillance simultanée du conteneur et de l'emballage.

c) **Châteaux de transport blindés et ventilés:** un ou plusieurs conteneurs de déchets sont scellés dans un château de transport en acier. Celui-ci est entouré d'un blindage en béton contre les rayons gamma et les neutrons, séparé du château par une couche d'air. Le château est ensuite transporté dans une aire de stockage extérieure où il est monté verticalement sur un socle de béton, de façon que la chaleur se dissipe par convection naturelle de l'air entre le château de transport d'acier et le blindage de béton. Ce système a l'avantage d'être

adaptable, car les installations peuvent être modifiées selon la nature des déchets et la taille et le nombre des conteneurs. Le système ne peut pratiquement pas être endommagé en raison du blindage massif de béton. Il n'impose qu'un minimum de manoeuvres et donc de surveillance. En revanche, comme tous les autres systèmes de stockage, il nécessite des contrôles permanents destinés à détecter toute fuite éventuelle de radionucléides. On peut repérer rapidement les châteaux de transport ou les blindages de béton défectueux et les réparer ou les remplacer. Comme il a déjà été dit, ce mode de stockage a toutefois l'inconvénient d'être très volumineux et de nécessiter environ dix fois plus de terrain que les deux autres systèmes.

On choisit le mode de stockage des déchets solides de haute activité en fonction du site, des considérations écologiques, des coûts et de la fiabilité à long terme des matériaux. Le choix dépend évidemment aussi de la durée probable du stockage provisoire ou de l'utilisation de l'installation de stockage. On a calculé que les coûts totaux de construction et d'exploitation d'une installation artificielle de stockage, y compris la surveillance pendant 100 ans après le dernier dépôt, sont comparables pour les deux systèmes ventilés, mais supérieurs d'environ 50% dans le cas de la piscine en raison des coûts supplémentaires de l'alimentation en électricité et en eau et du nombre d'employés nécessaires. Les matériaux et les techniques actuels devraient permettre de construire des installations et des systèmes de stockage qui puissent fonctionner convenablement pendant au moins cent ans, si besoin est. Cependant, on compte bien disposer de méthodes adaptées de stockage des déchets de haute activité dans une trentaine d'années, et peut-être même avant la fin du siècle. En revanche, comme il est indiqué plus haut, on peut avoir intérêt, pour des raisons techniques et économiques, à prolonger le stockage provisoire pour attendre que la désintégration radioactive ait abaissé la température des déchets, de façon que la dissipation de la chaleur pose moins de problèmes et ait moins d'incidences sur le cimetière de déchets.

STOCKAGE DEFINITIF DES DECHETS DE HAUTE ACTIVITE

Le stockage définitif des déchets de haute activité, et notamment des déchets contenant les transuraniens de période très longue, est un sujet d'actualité qui préoccupe le grand public. C'est une question difficile à exposer brièvement ou à aborder, car elle semble avoir suscité des passions excessives. Aucune méthode de stockage définitif des déchets de haute activité est actuellement appliquée, principalement parce que les quantités de déchets de ce type sont trop faibles et qu'elles le resteront probablement pendant encore une dizaine d'années. La mise au point d'un système fiable et éprouvé d'évacuation des déchets nucléaires est cependant pour beaucoup une condition à l'acceptation de l'énergie d'origine nucléaire.

Vu les facilités d'accès qu'il ménage, le stockage définitif des déchets radioactifs dans des installations artificielles en surface ou à faible profondeur n'est pas essentiellement différent du stockage provisoire. Afin d'isoler davantage les déchets des populations et de leur milieu, on a proposé plusieurs solutions pour l'évacuation des déchets de haute activité et des déchets contenant des éléments transuraniens [4]. Trois formules ont été envisagées:

- a) L'enfouissement des déchets (en milieu terrestre):
 - i) dans des formations géologiques profondes sous la terre ferme ou sous le fond des océans [5, 6]
 - ii) sur le fond des océans
 - iii) dans des zones de glaciation
- b) L'évacuation des déchets dans l'espace
- c) La transmutation nucléaire.

Tous les systèmes qui consistent à stocker définitivement les déchets radioactifs sur terre visent à isoler suffisamment les déchets ou les radionucléides qu'ils contiennent de la biosphère pour que l'être humain ou les autres espèces biologiques ne soient pas exposés à des niveaux d'irradiation inacceptables. On peut atteindre cet objectif en prévoyant un confinement fiable pour la durée nécessaire, ou un mécanisme qui empêche ou retarde l'échappement des matières nucléaires, avec un agent dispersant qui ramène à des niveaux acceptables toute quantité de radionucléides qui atteindrait réellement la biosphère.

On admet généralement que le stockage définitif dans un milieu terrestre est moins risqué si les déchets de haute activité se présentent sous une forme solide résistant à la lixiviation. Toutefois, les expériences menées en Union soviétique ont prouvé que l'on pouvait injecter des déchets liquides de haute activité directement dans des strates poreuses aquifères, à condition que l'isolation soit suffisante. L'Union soviétique consacre cependant des recherches intensives à la mise au point de techniques permettant de stocker définitivement des déchets vitrifiés dans des cimetières géologiques. Nous ne traiterons ici que du stockage définitif des déchets solidifiés de haute activité.

Heureusement, le risque constitué par une source radioactive, à la différence de ceux qui sont dus à de nombreux éléments dangereux non radioactifs tels que le mercure, le cadmium et le plomb, diminue avec le temps. La période pendant laquelle on doit isoler ou confiner les radionucléides dépend donc de leur concentration initiale et de leur période radioactive, qui déterminent le délai au terme duquel les concentrations auront été ramenées à des niveaux acceptables. On peut considérer en gros que la période au bout de laquelle une concentration élevée d'un radionucléide dans une source radioactive donnée est ramenée à un niveau ne présentant pas de risque est égale à vingt fois sa période radioactive.

On a calculé la durée pendant laquelle les déchets de haute activité doivent être parfaitement isolés d'après les concentrations relatives des produits de fission radioactifs et des actinides demeurés dans les déchets de haute activité. On admet tacitement que le césium 137 et le strontium 90, chacun d'une période d'environ 30 ans, sont les produits de fission déterminants, alors que le plutonium 239, dont la période est de quelque 25 000 ans, est l'actinide déterminant. En conséquence, la période pendant laquelle il est souhaitable d'isoler un déchet est d'un millier d'années dans le cas des produits de fission et d'environ 100 000 ans dans le cas des transuraniens contenus dans les déchets de haute activité. Il peut certes sembler présomptueux de faire des projections sur de telles périodes, mais ces périodes ne sont pas trop longues pour qu'on puisse prévoir pour de nombreux sites, avec un degré raisonnable de certitude, les événements géologiques.

Pour se prêter au stockage définitif des déchets radioactifs, une formation géologique doit avant tout pouvoir renfermer les radionucléides en les isolant de la biosphère jusqu'à ce que la désintégration ait ramené leur radioactivité à des niveaux ne présentant pas de risque. Le principal mécanisme naturel par lequel les radionucléides contenus dans des déchets déposés à une profondeur soigneusement étudiée pourraient être ramenés jusque la biosphère est l'action de l'eau souterraine. Il importe donc au plus haut point de protéger les déchets de cette action. Une formation géologique sèche et qui le reste devrait donc assurer une protection suffisante. On peut accroître la résistance d'une formation géologique à l'eau souterraine en circulation en l'entourant de barrières géologiques. D'autres barrières permettent d'améliorer le confinement des radionucléides et de choisir des formations qui ne sont pas entièrement sèches, à condition que les vitesses de déplacement de l'eau soient nulles ou extrêmement lentes sur de longues distances. Ces autres barrières sont constituées par:

- la forme des déchets (ceux-ci peuvent être, par exemple, relativement insolubles);
- la haute intégrité des conteneurs;

- la composition et la chimie de l'eau souterraine;
- la parfaite résistance des barrières géologiques environnantes au déplacement des eaux souterraines;
- les facteurs qui retardent la migration des radionucléides hors de la zone de stockage définitif. Il s'agit de divers mécanismes qui se produisent à l'intérieur des strates géologiques environnantes: échanges d'ions, filtrage, adsorption de surface et précipitations, par exemple. L'effet de retard peut varier considérablement selon la nature de la formation ou de la strate géologique et celle du radionucléide. Il convient de l'étudier soigneusement avant de le considérer comme un facteur de sûreté;
- mécanismes et/ou dispositifs artificiels conçus pour retarder la migration des eaux souterraines et les vitesses de dissolution des déchets.

L'indépendance de chacune de ces barrières montre que l'on peut prévoir une très grande redondance dans les systèmes visant à isoler les déchets dans une formation géologique.

Actuellement, le **sel gemme** en lits épais ou en intrusions diapiriques est considéré comme l'un des milieux géologiques les plus favorables au stockage définitif des déchets de haute activité et des déchets essentiellement contaminés par les transuraniens de période très longue. C'est ce que montrent surtout les études très importantes qui ont été faites aux Etats-Unis et en République fédérale d'Allemagne. Du point de vue du stockage des déchets, les formations de sel gemme ont essentiellement l'avantage de pouvoir être facilement creusées, de contenir très peu d'eau, d'avoir des propriétés thermiques relativement bonnes et des caractéristiques plastiques qui permettent d'inonder et de sceller toute pénétration artificielle ou toute faille éventuelle. En revanche, le sel gemme est soluble dans l'eau, il a des températures de décrépitation relativement faibles et il est assez corrosif pour la plupart des métaux.

Dans quelques pays, on étudie certaines **formations argileuses** qui ont une bonne plasticité. La plasticité des argiles est à peu près proportionnelle à leur teneur en eau. Pour être suffisamment plastiques, elles doivent contenir 15 à 20% d'eau, dont le déplacement est toutefois extrêmement lent ou nul. Bien que les argiles aient une conductibilité thermique beaucoup plus faible que le sel gemme et soient parfois difficiles à extraire, elles ont l'avantage de posséder une forte capacité d'adsorption, d'être insolubles et de corroder très peu les conteneurs de déchets.

On songe également à utiliser, pour enfouir les déchets radioactifs, **les roches cristallines ou dures**, par exemple le granite, le basalte, le calcaire et les roches métamorphiques. Ces roches sont imperméables lorsqu'elles se présentent en masse, mais sont fréquemment interrompues par un réseau de diaclases ou de fractures qui laissent passer de grandes quantités d'eau souterraine. Certaines formations de roches dures ne contiennent toutefois pas d'eau souterraine en circulation ou n'en contiennent que très peu, en raison généralement de conditions géologiques particulières, par exemple en cas d'obturation secondaire des fractures par des dépôts minéraux ou d'isolation des nappes aquifères par des formations imperméables. Même si l'apparition de failles devait mettre les déchets et les eaux souterraines en contact limité, l'isolation ne s'en trouverait pas nécessairement compromise car le conteneur, la forme des déchets ou les facteurs retardant la migration des radionucléides au travers des strates environnantes peuvent constituer des barrières supplémentaires.

On pourrait prolonger à l'infini l'examen des avantages comparés que présentent les différents types de formations géologiques, y compris les strates environnantes, du point de vue de l'enfouissement des déchets radioactifs. L'objet du présent exposé est simplement de montrer que plusieurs types d'emplacement se prêtent au stockage définitif des déchets dans des roches profondes.

Le principe du stockage définitif des déchets dans des formations géologiques situées sous le fond des océans ne diffère pas de l'enfouissement dans la terre. La principale différence a trait aux techniques de dépôt des déchets et à la facilité de leur récupération dans le cas où celle-ci deviendrait nécessaire. Si les techniques d'enfouissement dans la terre sont déjà au point, les systèmes d'enfouissement sous le fond des océans n'existent en revanche que sur le papier, bien que des opérations analogues aient déjà lieu au cours des explorations sous-marines. Toutefois, le stockage définitif des déchets dans des formations situées sous le fond des océans aurait l'avantage de les tenir éloignés de tout théâtre prévisible d'activités humaines, de favoriser fortement l'échange d'ions par la présence de sédiments de toute nature et de garantir une énorme dilution des radionucléides qui pourraient s'échapper.

On a aussi proposé de placer les déchets de haute activité, notamment les transuraniens, soigneusement conditionnés, sur le fond des océans. Cette méthode n'est applicable que si l'on est capable de fabriquer des matrices ou des conteneurs solides pouvant assurer un confinement suffisamment fiable aussi longtemps que nécessaire. L'un des avantages qu'elle présente est la capacité de refroidissement du milieu marin.

On a également proposé plusieurs solutions pour enfouir les déchets dans des couches de glace continentales, et notamment dans la calotte glaciaire de l'Antarctique, dont l'origine remonterait à plusieurs millions d'années. Selon les chercheurs, les conteneurs de déchets dégageant de la chaleur feraient fondre la glace et s'enfonceraient jusqu'à la couche rocheuse où ils seraient immobilisés par recongélation de la glace fondue. On pourrait rendre ce mode de confinement encore plus fiable en plaçant les déchets dans la couche rocheuse située en-dessous de la couverture glaciaire ce qui, d'une certaine façon, reviendrait à enfouir les déchets dans une formation géologique. Jusqu'à présent, on s'est peu intéressé à l'utilisation des zones glacées en raison de la mobilité des calottes glaciaires, d'une mauvaise connaissance des mécanismes qui régissent, à long terme, le climat de notre planète et des avantages que présente l'enfouissement dans des formations géologiques accessibles.

C'est en rejetant les déchets de haute activité dans l'espace qu'on les isolerait le plus complètement du milieu humain. En raison toutefois du coût de l'énergie nécessaire au lancement, on serait obligé en pratique de n'employer cette solution qu'exceptionnellement, pour des volumes réduits. Les risques d'accident au lancement et les conséquences d'un retour dans l'atmosphère des capsules contenant les déchets posent également des problèmes.

Certains considèrent la transmutation nucléaire comme la solution idéale, en principe, au problème du stockage définitif des radionucléides de période longue contenus dans les déchets de haute activité. La transmutation convertirait ces radionucléides en nucléides de période beaucoup plus courte, ou même stables. S'il est peu probable, en l'état actuel des connaissances, que l'on parvienne à mettre au point des techniques permettant de transformer les produits de fission de période longue, la transmutation des actinides transuraniens est peut-être réalisable. Une solution intéressante consisterait à éliminer de la masse des déchets, et particulièrement des déchets de haute activité, les transuraniens émetteurs alpha (actinides) de période très longue. Il ne faudrait plus alors isoler les matières contaminées par les produits de fission restants que pendant environ 1000 ans. Une fois éliminés les produits de fission fortement producteurs de chaleur, les transuraniens faiblement producteurs de chaleur pourraient être stockés de façon adaptée, ou recyclés dans des réacteurs nucléaires où ils seraient transformés par transmutation en produits de fission de période courte ou en éléments stables.

S'il semble techniquement possible de ramener les transuraniens contenus dans les déchets de haute activité à des concentrations négligeables, les incidences biologiques des quelques

produits de fission de période très longue qui resteront demandent à être étudiées. En outre, les produits raffinés de haute activité provenant du retraitement du combustible représentent moins de la moitié des transuraniens contenus dans les déchets du cycle du combustible nucléaire, et cette quantité serait encore considérablement réduite si les transuraniens étaient recyclés dans des réacteurs. On se demande actuellement si l'on a bien intérêt à ce qu'une forte quantité de transuraniens soit en circulation dans le cycle du combustible nucléaire.

L'enfouissement des déchets de haute activité dans des formations géologiques semble être la seule solution applicable en l'état actuel des techniques. Il a le mérite de ne pas exclure, du moins pendant un certain temps, la possibilité de récupérer les déchets en cas de nécessité [7]. Le plus grand facteur d'incertitude est sans doute l'incidence de la température des déchets de haute activité sur la zone qui entoure le cimetière. Il est évidemment possible d'atténuer cette incidence en modifiant la concentration des produits de fission générateurs de chaleur à l'intérieur des déchets, la durée de la période qui précède l'enfouissement et en enfouissant les déchets de façon plus ou moins dense.

ELEMENTS COMBUSTIBLES IRRADIES

On a fortement songé ces derniers temps à ne pas retraiter les éléments combustibles épuisés pour récupérer et recycler les matières fissiles et fertiles qu'ils contiennent (plutonium et uranium non brûlé), mais au contraire à les éliminer comme déchets. Il est peu probable que les pays se privent ainsi d'une ressource potentielle, du moins tant que l'on n'est pas sûr de pouvoir remplacer la fission nucléaire par une autre source acceptable d'énergie. Toutefois, dans les circonstances actuelles, on ne peut écarter la solution consistant à éliminer comme déchets les éléments combustibles épuisés. En plus des produits de fission et des transplutoniens qui composent normalement les déchets de haute activité, les

Tableau 1. Comparaison de la puissance thermique et de la radioactivité du combustible épuisé (CE) et des déchets de haute activité (DHA)

Temps écoulé depuis le déchargement du combustible épuisé (en années)	Puissance thermique watts/TMML		Radioactivité Ci/TMML	
	CE	DHA	CE	DHA
10	1200	1000	410 000	320 000
100	290	110	42 000	35 000
1000	55	3,3	1 800	130
10 000	14	0,47	480	42
100 000	1,1	0,11	58	21
1 000 000	0,39	0,15	21	10

TMML: tonne métrique de métal lourd initialement chargée dans le réacteur.

Tableau 2. Nature des déchets radioactifs liquides provenant de différents types de réacteurs

Type de réacteur	Combustible		Caractéristiques des solutions de déchets entrant dans l'évaporateur						Caractéristiques initiales du concentré à stocker			
	Type de combustible	Type de gainage	Combustion massique MWj/t	Délai minimal de refroidissement avant retraitement "T"	Volume de métal lourd l/t	Activité au temps "T" Ci/l	Contenu de chaleur au temps "T" W/l	Facteur de concentration possible	Volume (après évaporation) l/t	Activité au temps "T" Ci/l	Contenu de chaleur au temps "T" W/l	Acidité N
LWR (Etats-Unis)	UO ₂	Zircaloy 2 ou 4	29 000*	3a*	5 200	150	0,6	14	380		8,3	4-7
LWR (France)	UO ₂	Zr	33 000	1a	9 800	230	0,93	20	540	4 100	18,5	2,5
LWR (Royaume-Uni)	UO ₂	Zircaloy	33 000	150 j	6 250	860	3,2	16,5	400		5,3	0,5-1,0
LWR (Inde)	UO ₂	Zircaloy	15 000	150 j	7 200	300	9,0	9,0	800	3 000	0,9	2-3
LWR (Japon)	UO ₂	Zircaloy	28 000	180 j	5 500	210	0,59	16	350	3 100	9,3	2,5
VVER (URSS)	UO ₂	Zr	28 000	3a	5 500	60	0,27	13	420	730	3,3	4-6
Refroidi au gaz (France)	U-Mo	Mg	3 000	1a	7 600	70	0,24	70	110	4 800	17	0,8
Refroidi au gaz (France)	U/Si/Al	Mg	5 000	1a	5 400	100	0,34	50	100	5 400	18	2,5
Magnox	U (Naturel)	Magnox	1 300 3 500	125 j	4 500	460	0,25	50 100	90 45		12	3
AGR	UO ₂	Acier inoxydable	37 000 18 000	1a	5 000	600	0,33	20	100		16	
Candu HTGR	UC ₂ /ThC ₂	Graphite, SiC	Aucun retraitement prévu			100 000	180 j	5 700	1 700	7,5	3 600	
PFR	(U,Pu)O ₂	Acier inoxydable	60 000	180 j	9 100	900(A) 1 200(B)	4(A) 5(B)	2,5	3 600		10(C) 12(C)	3
MTR	U-Al	Al	200 000	~1a	400 000	200	0,8	1,3	300 000		1	- 1

* Valeurs probables d'équilibre pour les Etats-Unis (actuellement, le combustible des réacteurs nucléaires industriels n'est pas retraité)

- Notes (A) 1er cycle, moyenne entre l'extérieur et l'intérieur;
 (B) 6ème cycle, moyenne entre l'extérieur et l'intérieur;
 (C) en admettant que l'évaporation a lieu immédiatement (en pratique elle a lieu plus tard).

éléments combustibles épuisés contiennent environ 99 fois plus de plutonium et d'uranium que les déchets de haute activité que l'on obtiendrait après les avoir retraités. Les éléments combustibles épuisés sont également 7 à 10 fois plus volumineux.

Ce qui a été dit du stockage provisoire et du stockage définitif des déchets de haute activité solidifiés vaut également pour les éléments combustibles épuisés. Comme on l'a indiqué, les solutions proposées pour le stockage des déchets de haute activité solidifiés ont été déduites par extrapolation des techniques, de l'expérience et des solutions de stockage des combustibles irradiés des réacteurs, par exemple du stockage en piscine, dans des casemates ventilées ou dans des récipients métalliques ventilés. Il est à peu près certain que l'on peut stocker sous surveillance des combustibles de réacteurs irradiés convenablement emballés pendant de longues périodes, les solutions prévoyant le refroidissement par l'air étant probablement préférables lorsque les combustibles sont suffisamment refroidis.

Même si techniquement la solution consistant à stocker définitivement le combustible épuisé, emballé ou non, directement dans une formation géologique qui en assurerait le confinement, est satisfaisante, on ne pourra probablement jamais considérer qu'elle présente assez peu de risques pour être acceptable. Tout d'abord, il est bien évident que le combustible nucléaire est actuellement conçu pour donner un résultat optimal dans les réacteurs, et non pour satisfaire aux critères de stockage définitif. En outre, dans l'élément combustible, les produits gazeux de fission sont sous une énorme pression, et il faut tenir compte des effets radiologiques qu'ils pourraient avoir s'ils s'échappaient pendant le traitement de l'élément combustible ou dans le milieu de stockage, au moins tant que la désintégration radioactive n'a pas ramené leurs concentrations à des niveaux biologiquement acceptables. D'autre part, il est possible que les éléments combustibles confinés ou placés dans des réservoirs ou des coffres conçus spécialement pour conserver leur intégrité pendant une centaine de milliers d'années représentent malgré tout un danger. En fait, une période d'une centaine de milliers d'années est sans doute beaucoup trop courte à cause de la présence de plutonium dans le combustible épuisé. A terme, il peut être souhaitable de dégazer ou de traiter le combustible irradié pour lui donner une forme plus adaptée au stockage définitif, par exemple de découper ou cisailer les éléments combustibles pour les réduire en fragments plus petits et de les placer ensuite dans des matrices relativement insolubles. Actuellement, aucune technique de stockage définitif des éléments combustibles épuisés n'a été étudiée en détail et aucune n'a fait l'unanimité.

AUTRES DECHETS DE HAUTE ACTIVITE

La figure 1 indique les composants fortement irradiés de réacteurs et les concentrés de produits de fission qui peuvent constituer des déchets de haute activité. Leur examen sera bref.

Les composants fortement irradiés de réacteurs peuvent être assimilés à des déchets de haute activité en raison de leur activité induite. Ils nécessitent au départ un blindage épais assurant une protection contre les rayonnements, mais le refroidissement par l'air ambiant suffit généralement. Les principaux radionucléides générateurs de chaleur n'ont généralement pas des périodes longues et, avec le temps, ils décroissent jusqu'à des niveaux où ils peuvent encore exiger des précautions, mais ne rendent pas problématique le stockage définitif de ces composants dans le sous-sol ou ailleurs.

Actuellement, on stocke ces composants radiologiquement chauds dans des zones fortement blindées et bien ventilées, au moins jusqu'à ce que le dégagement de chaleur ait suffisamment ralenti pour que l'on puisse les préparer et les stocker définitivement.

Les concentrés de produits de fission ou d'actinides proviennent de la fraction des produits de fission ou des actinides qui a été enlevée pour telle ou telle raison, des circuits de

retraitement du combustible ou des circuits de déchets de haute activité. Ils peuvent également être contenus dans les résidus de l'évaporation ou de la concentration des déchets liquides de moyenne activité. A moins qu'on ne les destine à d'autres usages, on peut diriger ces concentrés liquides vers les réservoirs de stockage de déchets liquides de haute activité. Il faut alors s'assurer que ces déchets, et particulièrement les résidus d'évaporation, n'ajoutent pas des composants incompatibles avec le procédé de solidification prévu. Il est parfois souhaitable ou indispensable de solidifier ces déchets liquides de haute activité par un procédé distinct.

Cet article est adapté d'une conférence faite par M. Lennemann au Cours sur l'établissement et l'exécution de projets nucléoénergétiques organisé par l'AIEA, qui a eu lieu à Karlsruhe, en République fédérale d'Allemagne, du 4 septembre au 24 novembre 1978.

Références

- [1] "Standardization of Radioactive Waste Categories", Collection Rapports techniques No.101, AIEA, Vienne, 1970.
- [2] "Progress Report on the Results of the Inquiry on Classification of Radioactive Wastes", Document de travail RWM (77)1, Septembre 1977, Comité de la gestion des déchets radioactifs, AEN/OCDE, Paris.
- [3] "Techniques for Solidification of High-level Wastes", Collection Rapports techniques No.176, AIEA, Vienne, 1977.
- [4] Table ronde 3.1. "Solid High-level and Long-lived (Alpha-contaminated) Radioactive Waste Disposal Options and Their Availability", extrait de "Nuclear Power and Its Fuel Cycle", Vol.4, Agence internationale de l'énergie atomique, Vienne, 1977.
- [5] "Site Selection Factors for Repositories of Solid High-level and Alpha-bearing Wastes in Geological Formations", Collection Rapports techniques No.177, AIEA, Vienne, 1977.
- [6] "International Aspects in Geological Disposal of Nuclear Waste", D. Richter et Wm.L. Lennemann, Comptes rendus du First International Symposium on Storage in Excavated Rock Caverns (Rockstore 77) Stockholm, Sept. 1977 (Pergamon Press).
- [7] "Storage and Disposal of High-level and Alpha-bearing Wastes", extrait de "Management of Radioactive Wastes", Wm.L. Lennemann, H.E. Parker et P.J. West, rapport présenté à la Conférence nucléaire européenne, à Paris, avril 1975.