



**LES APPLICATIONS
DE L'IRRADIATION**

04 et 05 AVRIL 2018
MERCREDI 14h30 à 17h30 / JEUDI 08h30 à 16h30



Problématique de l'irradiation de céramiques alumino-silicatées pour surconteneurs de stockage de déchets HA

Projet « Noumeha » - Programme NEEDS – Déchets

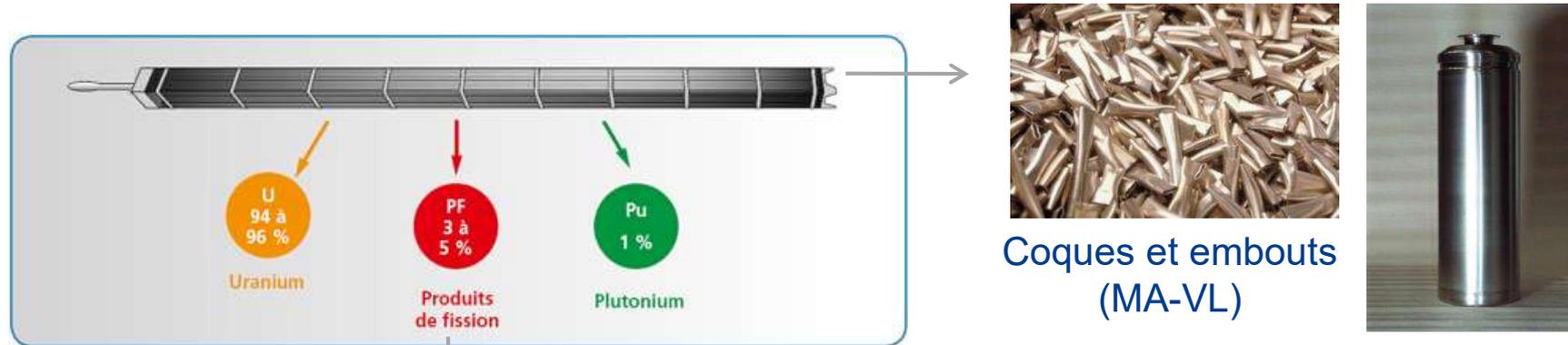


Adeline DANNOUX-PAPIN (CEA/LCBC)
Etienne SAVARY (CNRS/SAIREM)



Les déchets de haute et moyenne activité à vie longue (HA/MA-VL)

1- Déchets issus du traitement des combustibles usés



Produits de fission et actinides mineurs vitrifiés (HA)

2- Déchets produits par l'exploitation des réacteurs et des autres installations (MA-VL)



Volume de déchets prévus : environ 75 000 m³ de déchets MA-VL et 10 000 m³ de déchets HA

Scénario industriel fourni par les producteurs, fin de vie du parc électronucléaire actuel

Les déchets de haute et moyenne activité à vie longue (HA/MA-VL)

Déchets de haute activité (HA) et de moyenne activité à vie longue (MA-VL) :

- ◆ 3 % du volume
- ◆ 99 % de la radioactivité
- ◆ Durée de vie > 100 000 ans
- ◆ Origine : industrie nucléaire, recherche, Défense nationale



Exemple de colis béton de déchets MA-VL



Exemple de colis de déchets HA vitrifiés

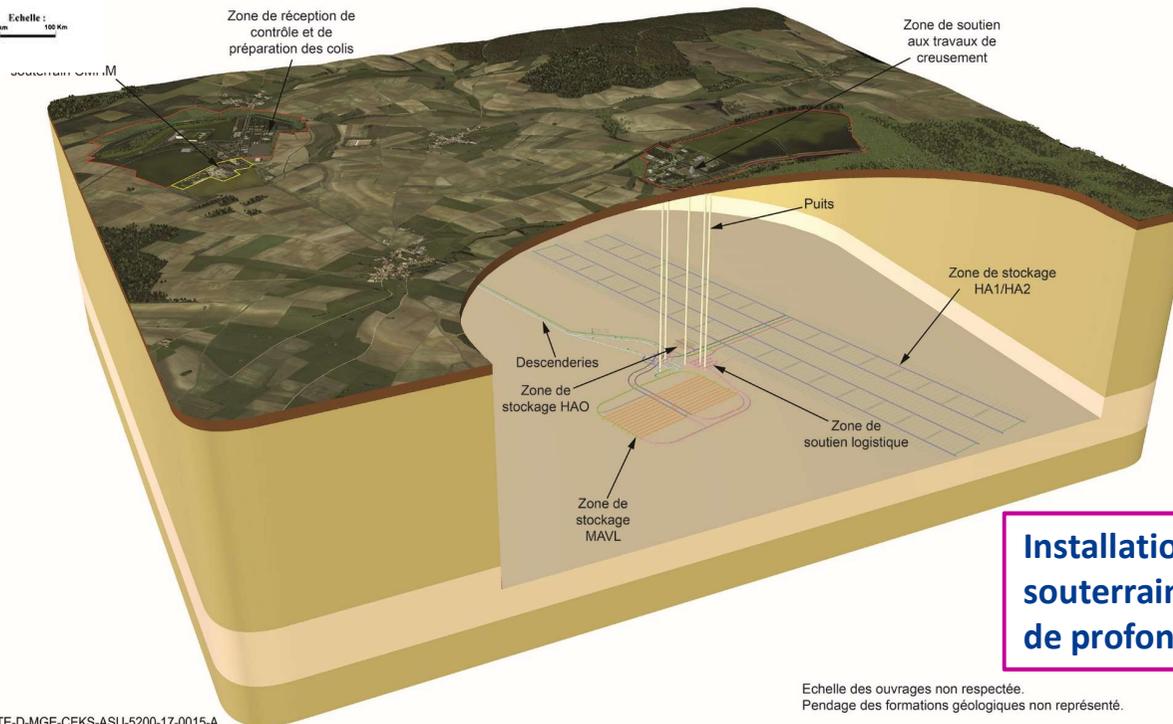
Le projet de stockage Cigéo



2 installations de surface :

- réception, contrôle et préparation des colis
- travaux de creusement et de construction

S'il est autorisé, Cigéo sera implanté à la limite des départements de la Meuse et de la Haute-Marne, où l'Andra mène des études depuis près de vingt ans.



Installation souterraine à 500 m de profondeur

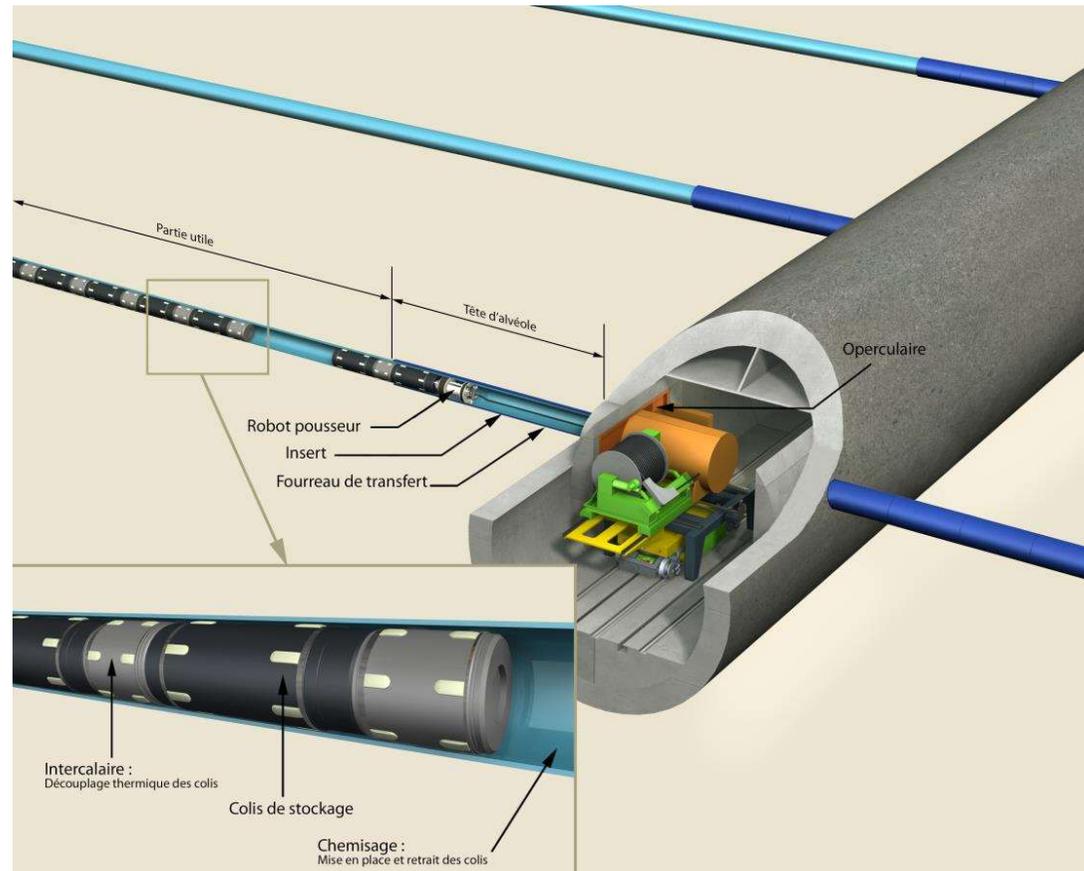
Le projet de stockage Cigéo – Les alvéoles HA

Alvéole de stockage
horizontale

- ◆ Longueur 100 m
- ◆ diamètre 0,70 m

Surconteneur Métallique

Chemisage métallique



- ◆ Permettre la mise en place et le retrait éventuel des colis de stockage pendant la période séculaire d'exploitation réversible
- ◆ Réduire « durablement » le chargement mécanique du surconteneur à une pression hydrostatique

Le colisage des déchets de haute activité (HA)

Colis de déchets primaire

- ◆ Déchets vitrifiés issus du retraitement du combustible utilisé
- ◆ Hauteur 1,30 m, diamètre 43 cm
- ◆ Poids ~ 500kg



Colis conditionné dans un conteneur en acier non allié (épaisseur 65mm, hauteur 1,60 m)

- ◆ Interdire l'arrivée d'eau au contact du colis primaire pendant la phase thermique et jusqu'à ce que la radio-toxicité des substances radioactives ait suffisamment décru (≈ 500 ans)
- ◆ Dissipation de la chaleur des colis
- ◆ Mise en alvéole et retrait éventuel des colis

Problématique :

Risque de production d'hydrogène par corrosion en milieu anoxique



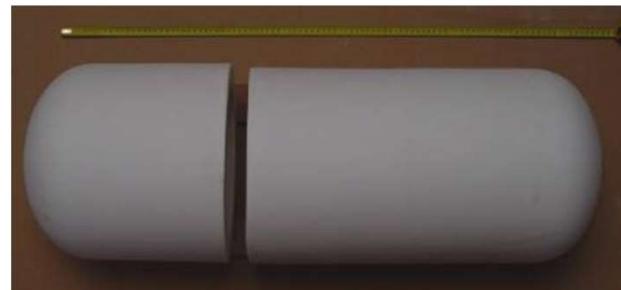
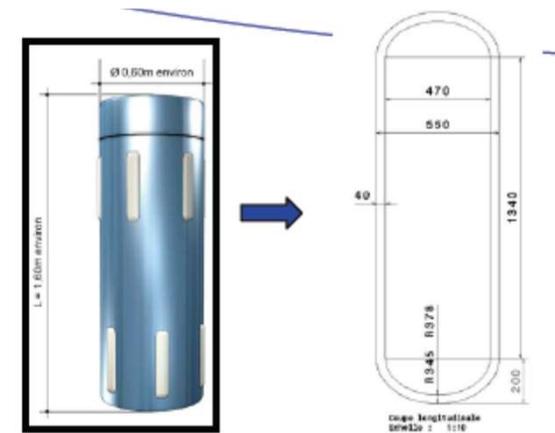
Vers un sur-conteneur en céramique

Porcelaine Pierre Arquié



Partenariat Andra – Porcelaine Pierre Arquié

- Adaptation du design pour un surconteneur en céramique
- Adaptation des paramètres des procédés de coulage et de frittage pour la réalisation de pièces épaisses (40 mm)
- Réalisation d'un surconteneur échelle ½ épaisseur échelle 1 (L = 70 cm ; e = 4 cm)



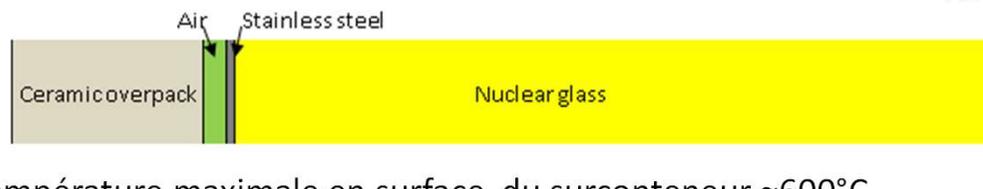
➔ Problématique du scellement de ce sur-conteneur

Problématique du scellement du sur-conteneur céramique

- Verrou technologique : **scellement du sur-conteneur céramique**

- Exigences :

- Conservation des propriétés du verre nucléaire ($T_{\text{verre nucléaire}} < 450^{\circ}\text{C}$)



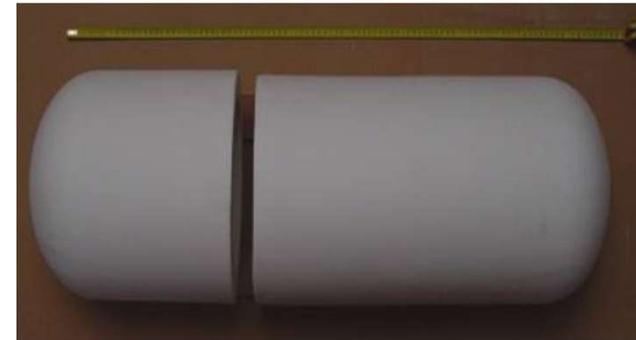
- Température maximale en surface du surconteneur $\approx 600^{\circ}\text{C}$
- Zone de chauffe limitée à la zone de scellement \Rightarrow influence sur le choix des procédés
- La zone de scellement doit avoir les mêmes propriétés que le sur-conteneur
 - Etanchéité air, eau
 - Tenue mécanique ($100 < \sigma_{\text{compression}} < 150\text{Mpa}$)
 - Résistance à la lixiviation (Eau de Bure, 90°C) et aux radiations
- Limitation des substances chimiques introduites dans le stockage
 - Scellement sans ajout
 - Scellement avec phase vitreuse de composition proche de la céramique
- Procédé de scellement en cellule nucléarisée, faisabilité et coûts

Problématique du scellement du sur-conteneur céramique

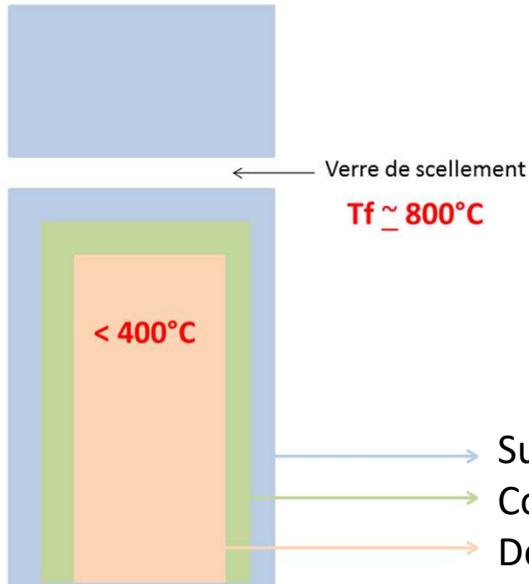
➤ Scellement par fusion d'une poudre de verre (800-900°C) :



Stockage des déchets radioactifs



Alumino-silicate



- ? Nécessité d'un chauffage localisé
- ? Compatibilité avec une zone nucléarisée
- ? Possibilité de transposition à l'échelle du sur-conteneur

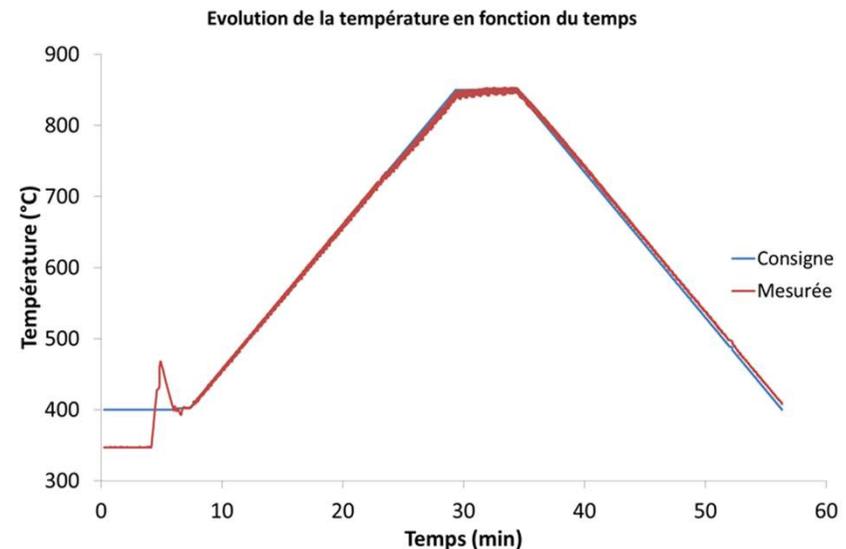
► **Scellement par micro-ondes**

Scellement du sur-conteneur céramique par micro-ondes



➤ Scellement par fusion d'une poudre de verre (800-900°C) :

✓ **Automatisation complète du procédé :**



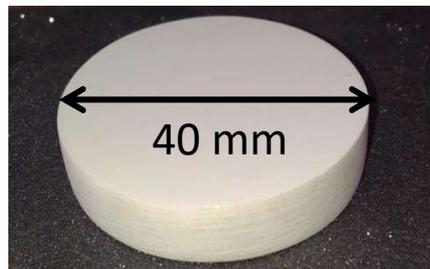
- ✓ Procédé autonome
- ✓ Reproductibilité des essais (cycle thermique)
- ✓ Possibilité de déporter les générateurs MO et l'ensemble des commandes en vue de l'installation en zone nucléarisée

Scellement du sur-conteneur céramique par micro-ondes

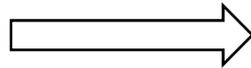


➤ Scellement par fusion d'une poudre de verre (800-900°C) :

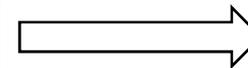
✓ **Faisabilité du scellement démontrée à l'échelle laboratoire :**



Société PPA, Limoges



Dépôt
barbotine



Emallage
Four CV



Scellement
Micro-ondes
1 heure

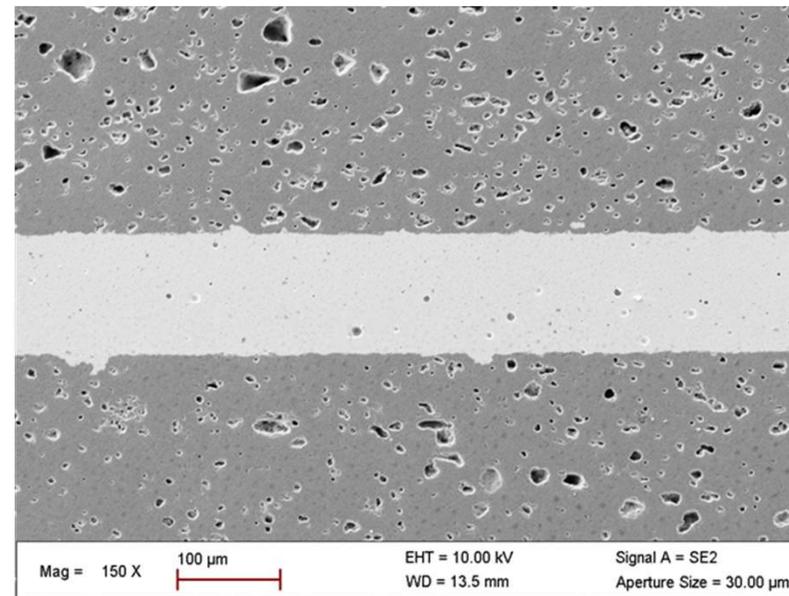
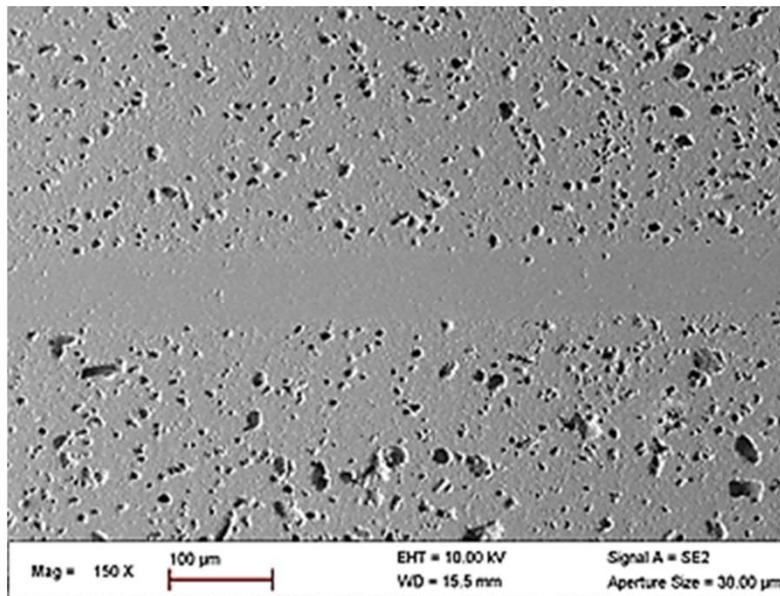


Scellement du sur-conteneur céramique par micro-ondes



➤ Scellement par fusion d'une poudre de verre (800-900°C) :

✓ **Faisabilité du scellement démontrée à l'échelle laboratoire :**

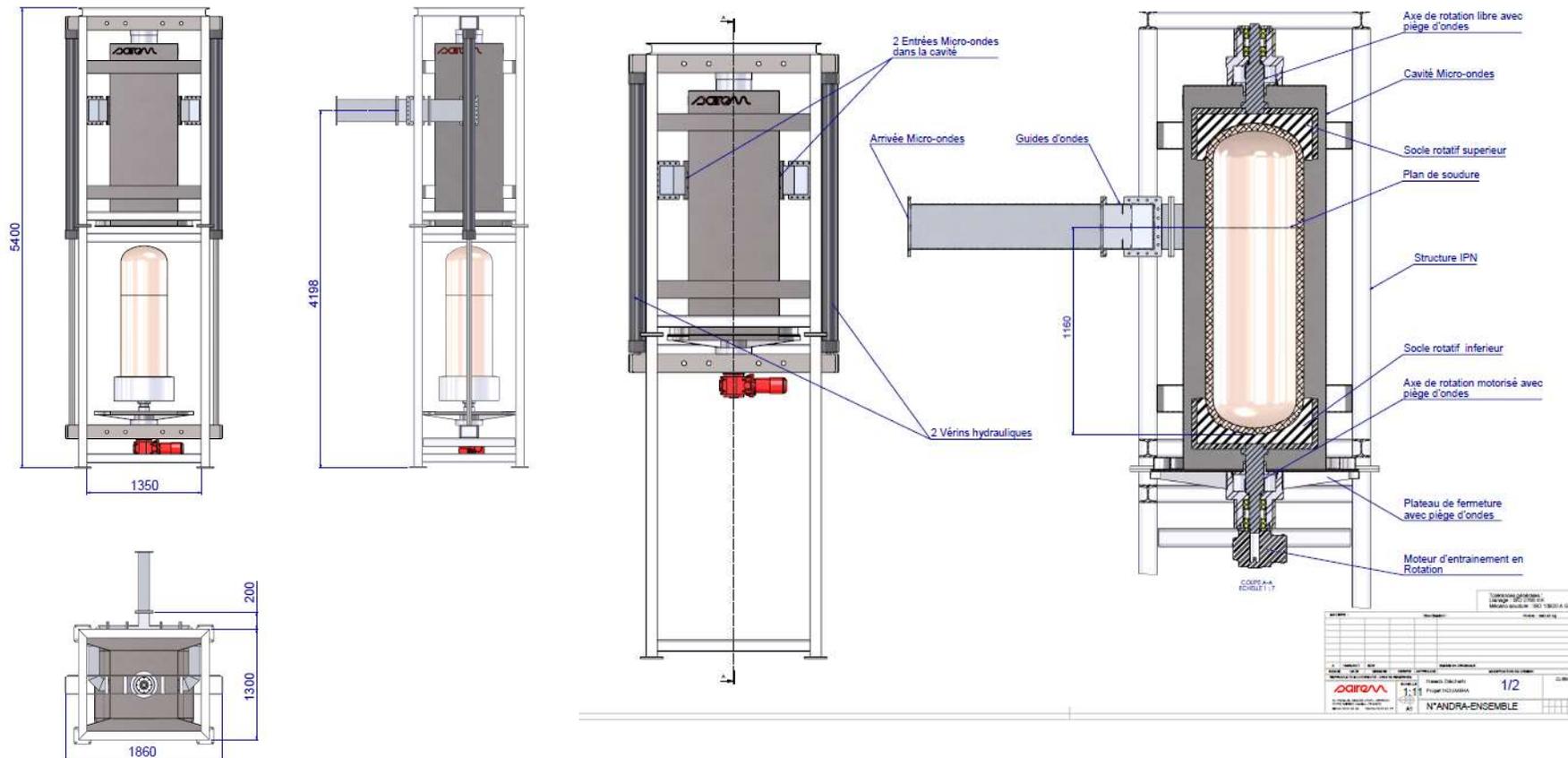


Scellement du sur-conteneur céramique par micro-ondes

➤ Scellement par fusion d'une poudre de verre (800-900°C) :

✓ **Vers l'industrialisation :**

Sairem



➔ **Nécessité de caractériser le comportement de ces assemblages sous irradiation**

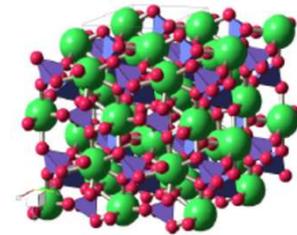
Le matériau céramique

➤ Composition et structure chimique :

Matériaux solides non métalliques et inorganiques → domaine de matériaux très vaste
2 principaux ensembles : oxydes (Al_2O_3) / non-oxydes (SiC)
Structure cristalline iono-covalente, avec la présence d'une porosité inter-granulaire faible
Absence d'eau

➤ Propriétés :

Grande rigidité mécanique (module d'Young)
Résistance à la corrosion et à l'usure
Inerte chimiquement
Résistance thermique
Température de fusion élevée



Structure cristallographique de la monazite

➤ Domaines d'utilisation divers :

Bâtiment, les produits blancs, abrasifs, électronique, médecine, optique, génie thermique, nucléaire, ...

➤ Céramiques étudiées pour le conditionnement spécifique de radionucléides :

- ✓ Hollandite pour le confinement du Cs radioactif ($\text{Ba}_x\text{Cs}_y(\text{Al},\text{Fe})_{2x+y}\text{Ti}_{8-2x-y}\text{O}_{16}$)
- ✓ Fluoroapatite à un silicate pour le confinement de l'I radioactif ($(\text{Ca}_{10-x}\text{An}_x(\text{PO}_4)_6(\text{SiO}_4)_y\text{F}_2)$)
- ✓ Zirconolite pour le confinement des actinides mineurs
- ✓ Monazite et phosphate diphosphate de thorium

→ *Dégâts issus d'auto-irradiation alpha, bêta*



Apatite



Zirconolite



Hollandite

Effets de l'irradiation gamma dans les verres

➤ Création de défauts électroniques :

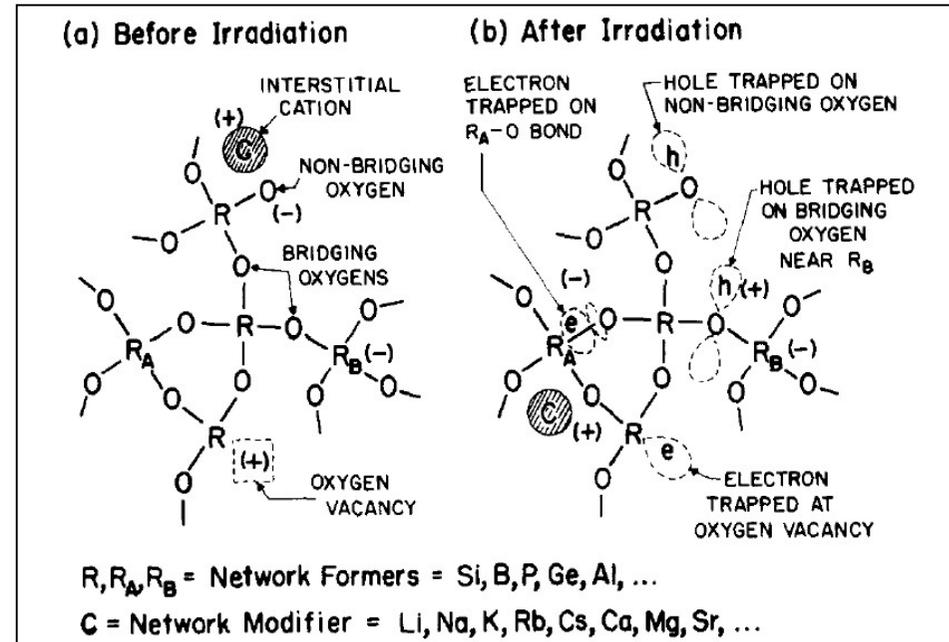
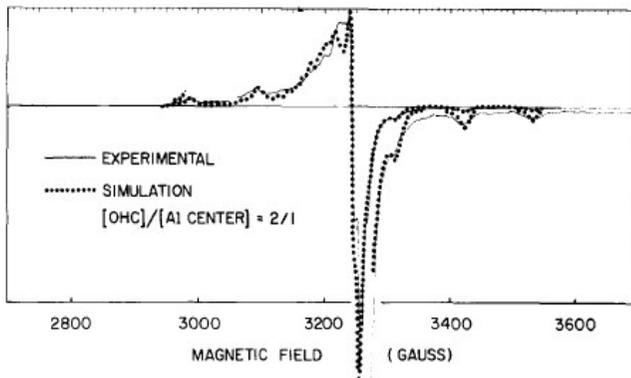
Paires (e^- / h^+)

h^+ : électron non appariés

Migration

Recombinaison

Observation par spectroscopie de Résonance
Paramagnétique Electronique (RPE)



Griscom D.L., *J. Non Crystalline Solids*, 13, (1973/74), 251-285

piégeurs d' e^-

lacune d'oxygène ($R=Si$),
Cations interstitiels,
Affinité électronique de R ($R_A=Ge$)

piégeurs de h^+

Oxygène non pontant,
Charge négative ($R_B=Al, B$)

Selon la structure minéralogique :

- La nature des défauts diffère (électroniques, lacunes, déplacements d'ions, modification de l'arrangement électronique local)
- Les défauts électroniques peuvent subsister, s'accumuler et s'étendre

Choix des conditions d'irradiation

➤ Atténuation du rayonnement gamma dans la céramique :

Simulations avec code MCNPX (simulation Monte-Carlo)

Epaisseur céramique : 40 mm

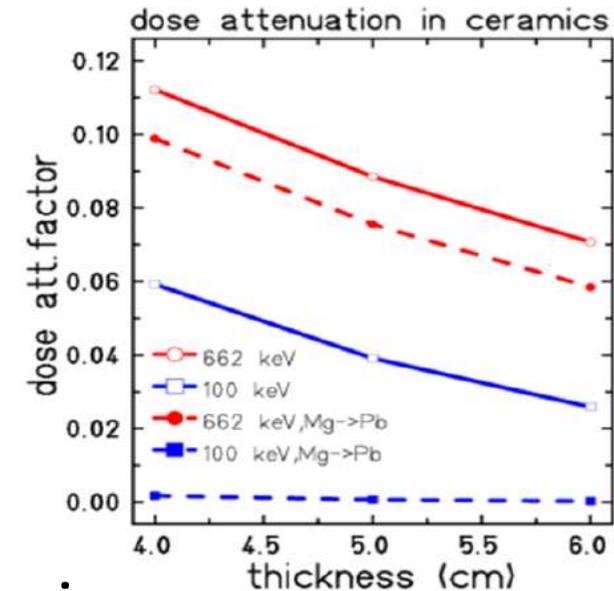
Rayonnement gamma considérés :

660 keV pour ^{137}Cs / 100 keV pour ^{246}Cm et ^{242}Pu

→ Forte atténuation : 0,11

→ Après 100 ans, $Dd_{\text{entrée}} = 9 \text{ Gy/h}$

$Dd_{\text{sortie}} = 1 \text{ Gy/h}$



➤ Estimation des doses intégrées au niveau de la céramique sur une période de temps de 500 ans

Temps (ans)	Doses intégrées (MGy)		
	Entrée	Moyenne	Sortie
100 ans	8	5	1
500 ans	39	22	5

$D_{\text{moy}} (500 \text{ ans}) < 22 \text{ MGy}$

Décroissance des radionucléides non prise en compte ($T_{1/2} (^{137}\text{Cs}) = 30 \text{ ans}$)

Conditions d'irradiation

➤ Conditions d'irradiation :

Irradiation à 2 débits de dose :

Débit de dose le plus proche de la source (2300 Gy/h) :

- Objectif : atteindre la dose la plus forte possible en un an
- Dose intégrée à un an = **15 MGy (sans interruption)**
- Doses intermédiaires : 2,5 – 4 – 7,5 – 10 MGy

Débit de dose intermédiaire (600 Gy/h) :

- Objectif : observer l'effet du débit de dose
- Dose intégrée à un an = **4 MGy**
- Doses intermédiaires : 2,5 MGy

Atmosphère : atmosphère de l'enceinte d'irradiation (air ambiant / casemate ventilée)

Planning :

Début irradiation

Fin irradiation

Février

Avril

Mai

Juillet

Août

Décembre

Dd 1 = 2300 Gy/h

D = 2,5 MGy

D = 4 MGy

D = 7,5 MGy

D = 10 MGy

D = 15 MGy

Dd 2 = 500 Gy/h

D = 2,5 MGy D = 4 MGy

Conditions d'irradiation

➤ Matériaux à irradier :

Tests mécaniques

- Assemblages céramique/verre avec 2 types de verre testés
→ Répétabilité sur 3 échantillons

- Echantillons céramique seule
→ Répétabilité sur 3 échantillons

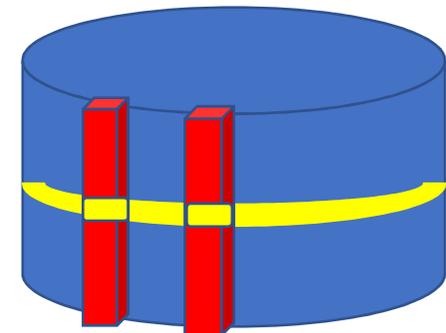
Essais de lixiviation

- Céramique seule
- 2 verres testés

Au total : 84 échantillons à irradier

■ Géométrie des assemblages

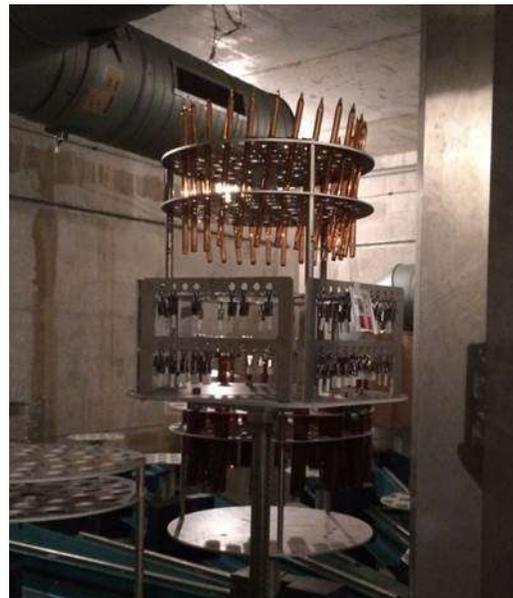
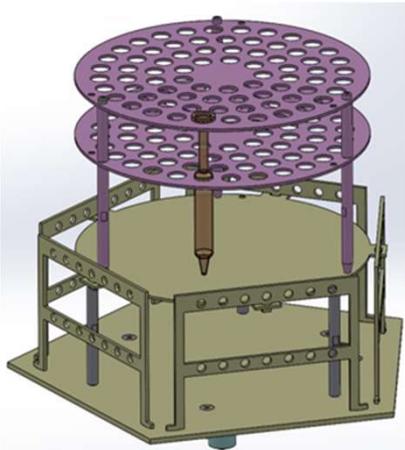
Réalisation d'assemblages avec des pastilles de hauteur 10 mm
→ Découpe pour réaliser des barrettes de 3 x 4 x 20 mm



Conception des portoirs

➤ Contraintes :

- ✓ Assurer une dose intégrée égale pour tous les échantillons
- ✓ S'adapter sur le plateau d'irradiation
- ✓ Eviter l'écrantage des échantillons entre eux / des autres échantillons en cours
- ✓ Accueillir la totalité des échantillons / autres échantillons



Résultats

➤ Essais mécaniques

Cellule de flexion

$$\sigma_f = \frac{3PL}{4bd^2}$$

σ_f = Module de rupture (Pa)

P = La charge à la rupture (N)

L = espacement des deux rouleaux inférieurs (m)

b = largeur de l'éprouvette (m)

d = épaisseur de l'éprouvette (m)

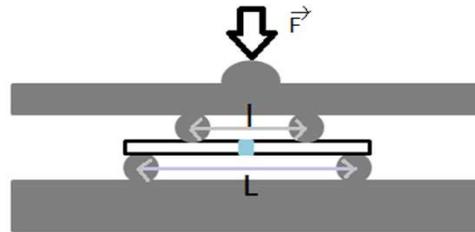
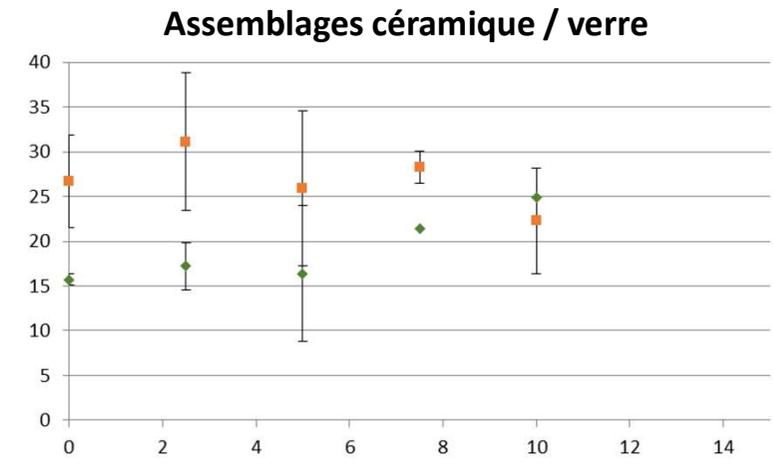
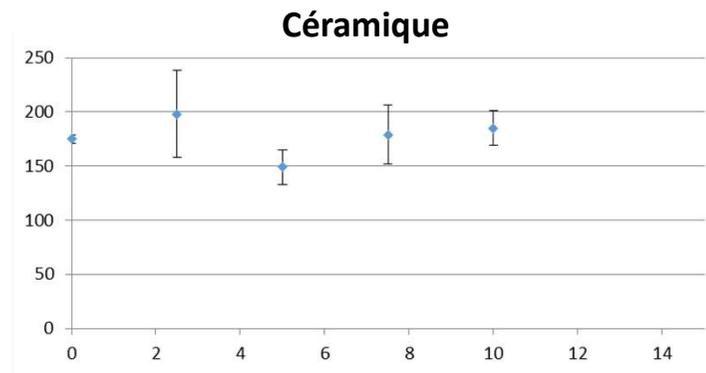


Figure 1- Essai de flexion 4 points

- L= 16 mm
- l= 8mm

Diamètre des rouleaux

- D= 1,5xd = 4,5 mm



Pour tous les matériaux assemblés ou non, pas d'effet évident de l'irradiation sur la tenue mécanique

➤ Essais de lixiviation en cours

