



L'énergie nucléaire et la gestion de ses déchets



philippe-barboux@chimie-paristech.fr

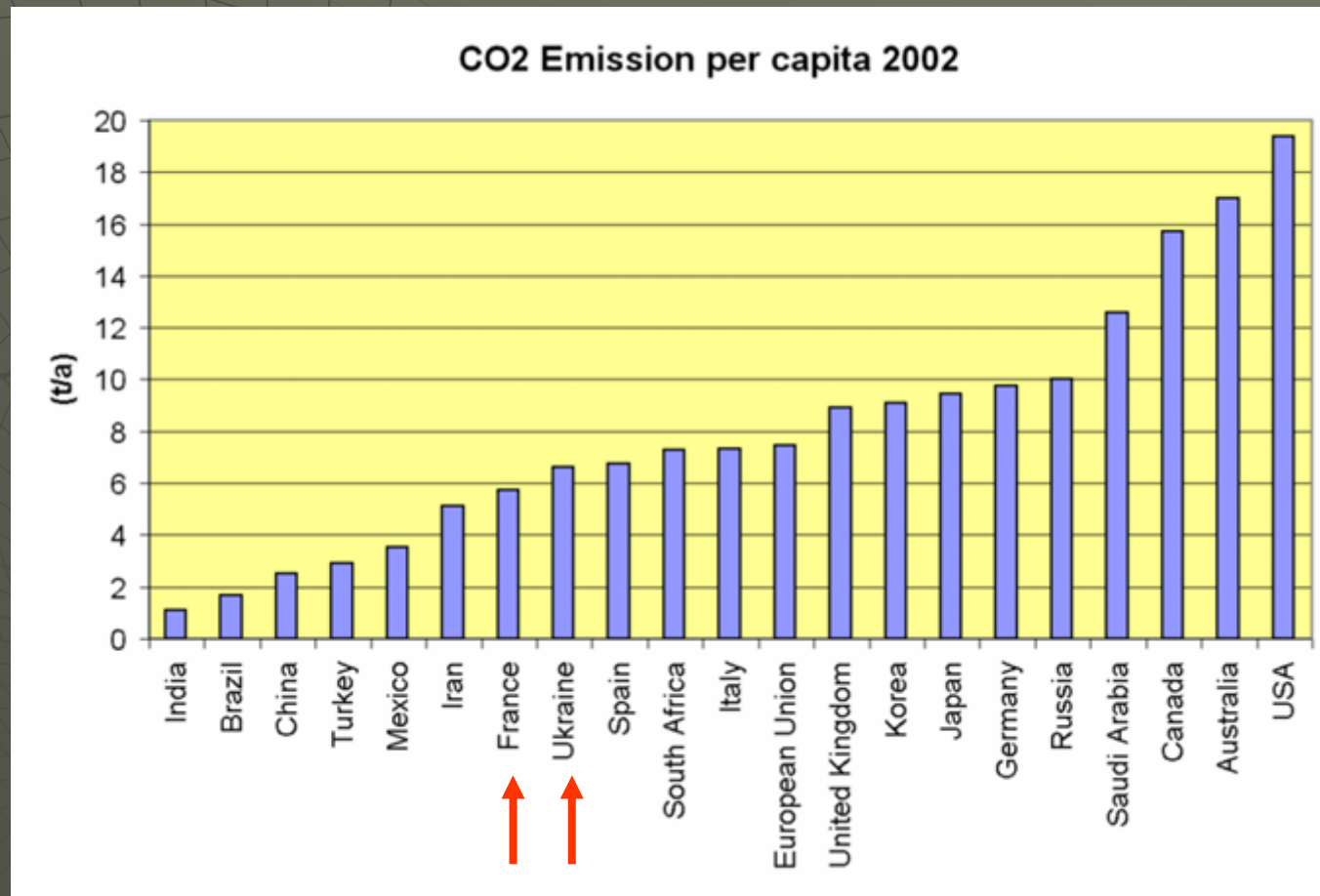
Collège de France 16 Mars 2011



58 réacteurs sur 19 centrales
 exploitées par EDF 63 GWe 1970 → 75 % de son énergie électrique

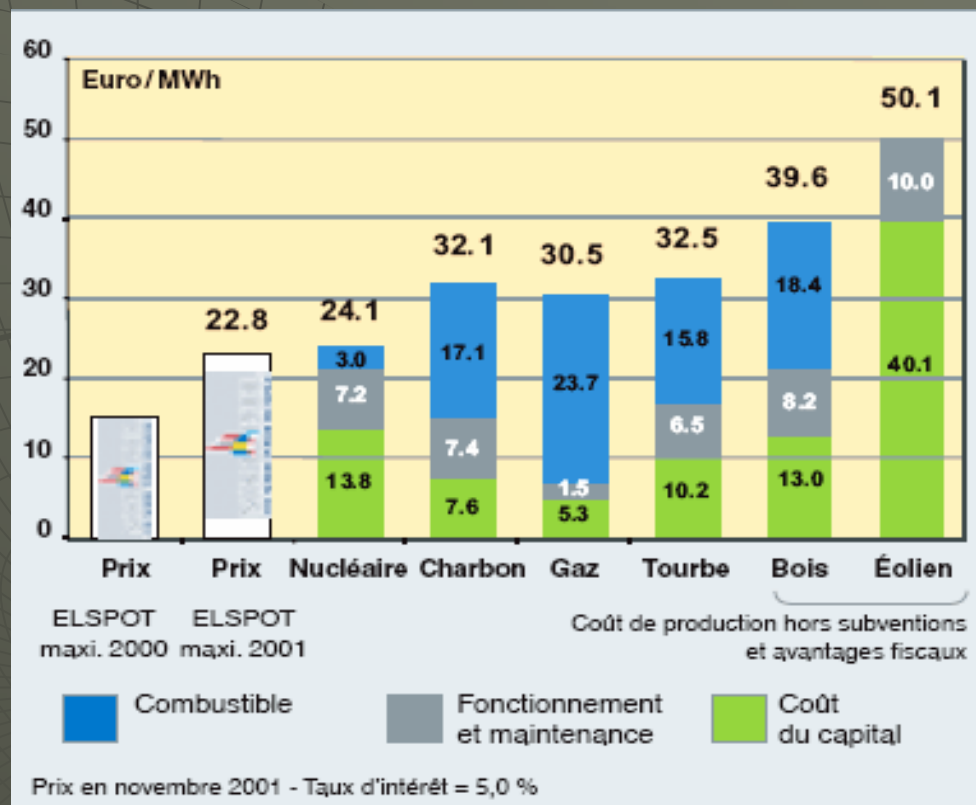
Pays	Population (million)	Réacteurs en fonctionnement	Production nucléaire (TWh)	% de la production electrique	Tonne CO2/hab
Etats-Unis	305	103	768,8	20,3	20,6
France	65	58	401,3	77,1	6
Japon	127	54	321,9	34,3	9,9
Allemagne	82	19	162,3	30,5	9,7
Russie	141	30	125,4	15,4	10,6
Canada	34	14	72,4	12,8	20
Royaume Uni	61	33	83,0	22,6	9,8
Ukraine	46	13	71,2	46,0	7
Corée du Sud	49	16	112,1	39,3	9,7
Suède	9	11	69,2	43,9	5,5
Total	919	436	2 543,8	17	

Des arguments pour le nucléaire



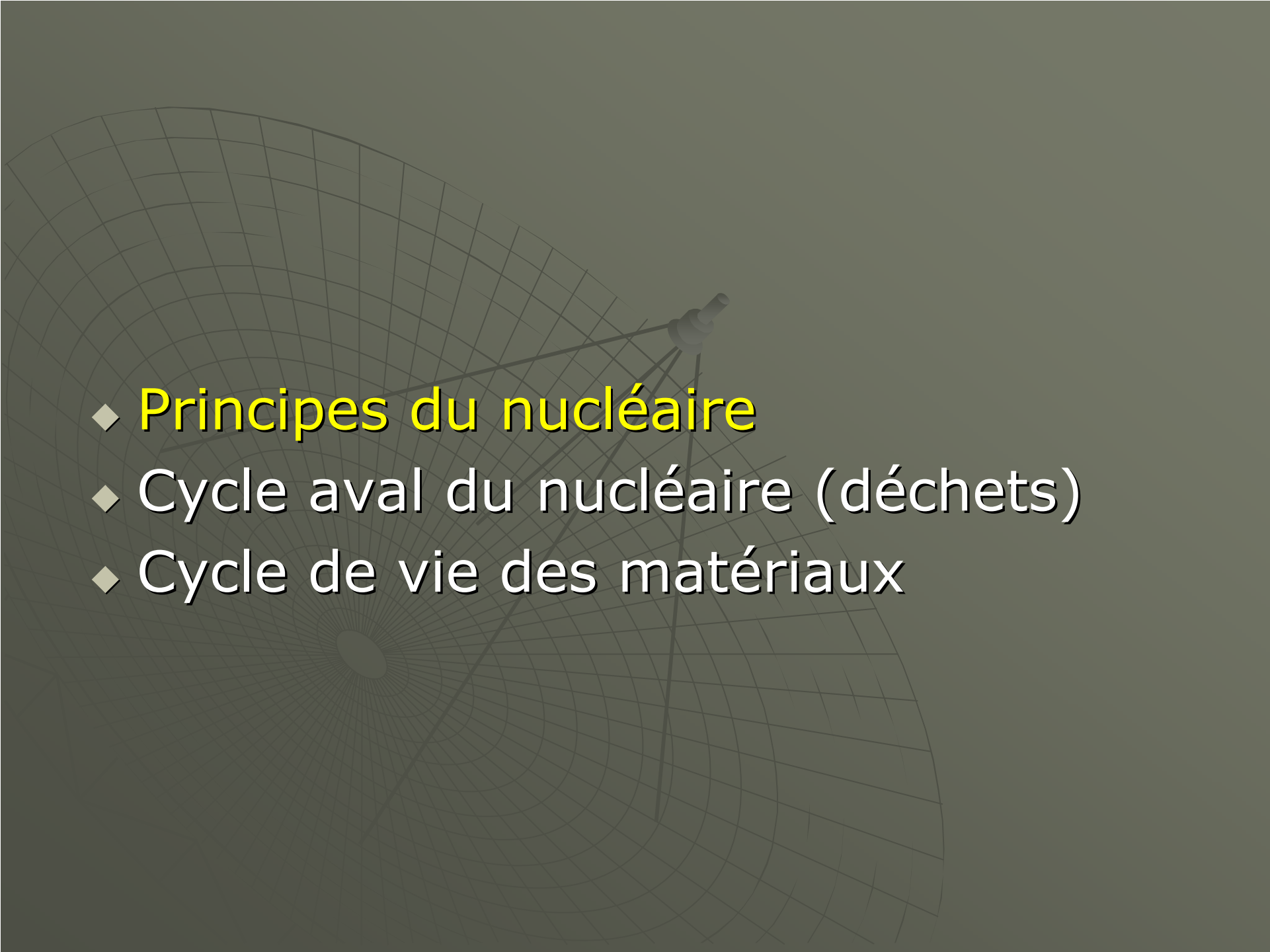
Mais acceptation sociale ? risques et déchets ?

Un investissement énorme



démantèlement/ entreposage/gestion déchets 20% du coût production
 soit 0,8 centimes d'euros/kWh
 (cout production 0.04 €/kWh)

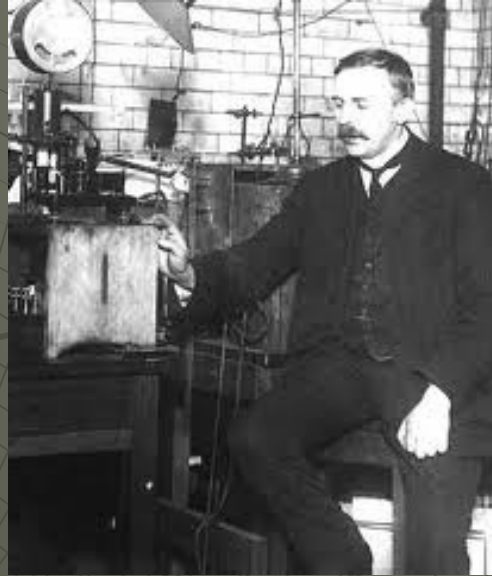
Source Elspot bourse scandinave du kilowatt-heure. (mars 2002.)

- 
- ◆ **Principes du nucléaire**
 - ◆ Cycle aval du nucléaire (déchets)
 - ◆ Cycle de vie des matériaux

Radioactivité naturelle ou artificielle



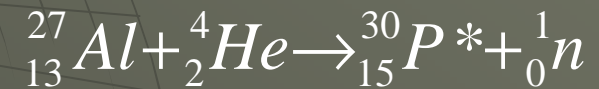
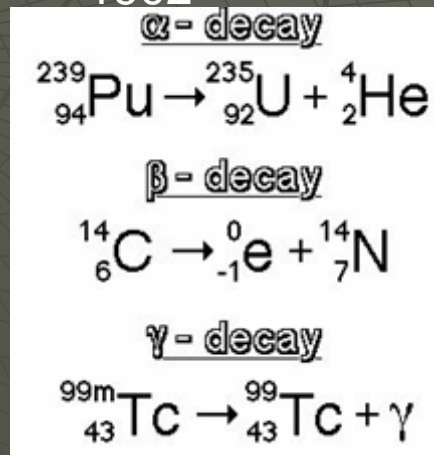
Henri Becquerel 1896
Sel de K et U



Rutherford Soddy
1902



Irène Frédéric Joliot Curie
1934



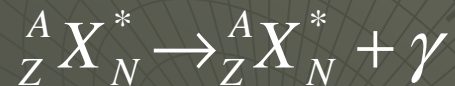
radioactivité

Émission beta (électron)

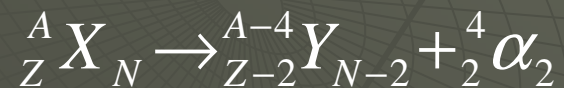


Exemple tritium

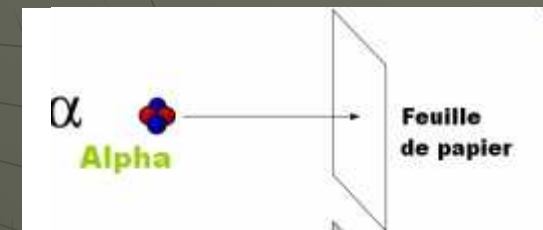
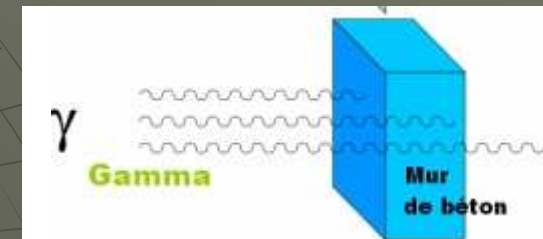
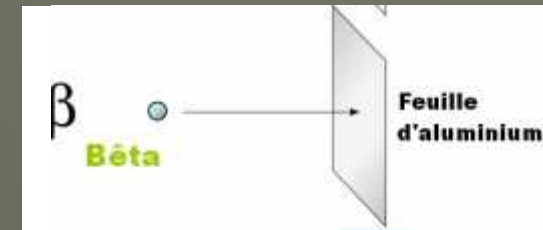
Émission gamma (rayon γ)



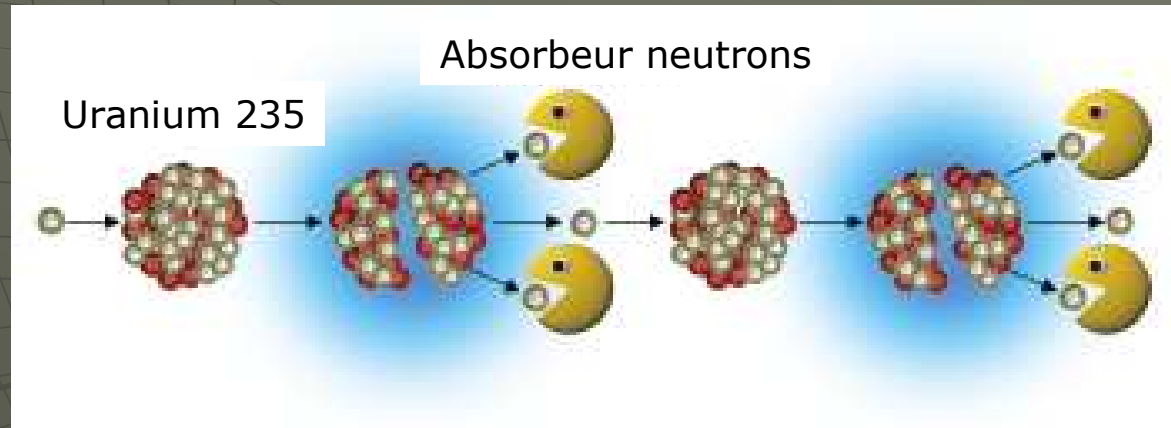
Émission alpha (He^{2+})



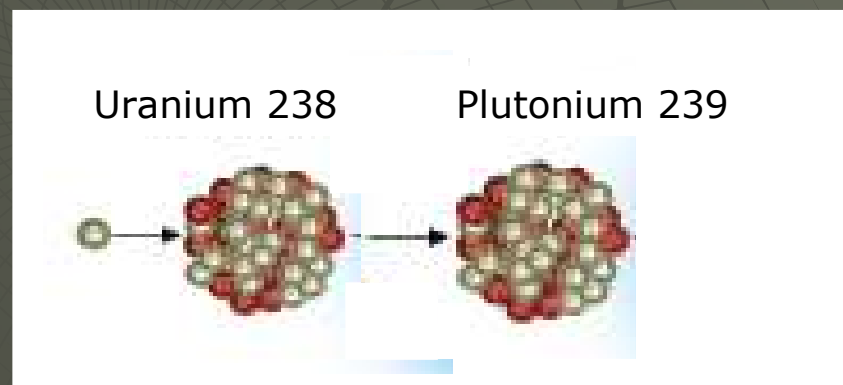
Éléments lourds U, Pu, Am, etc...

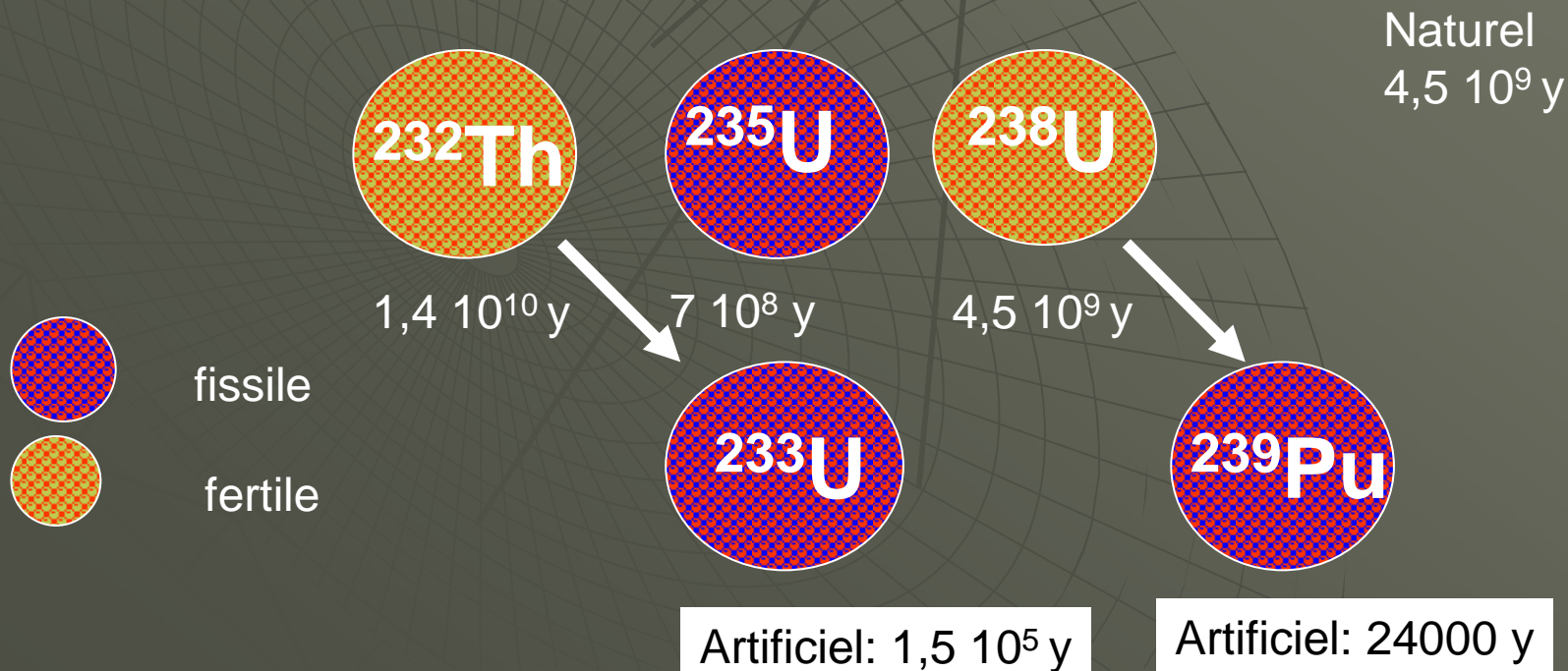
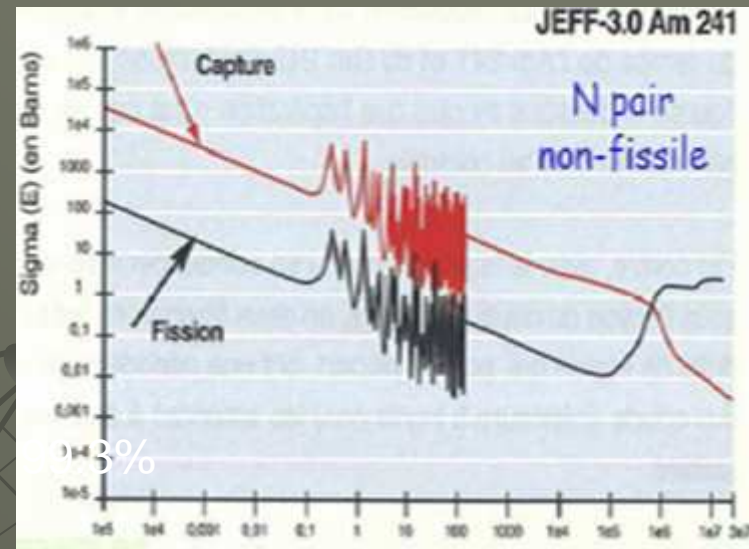
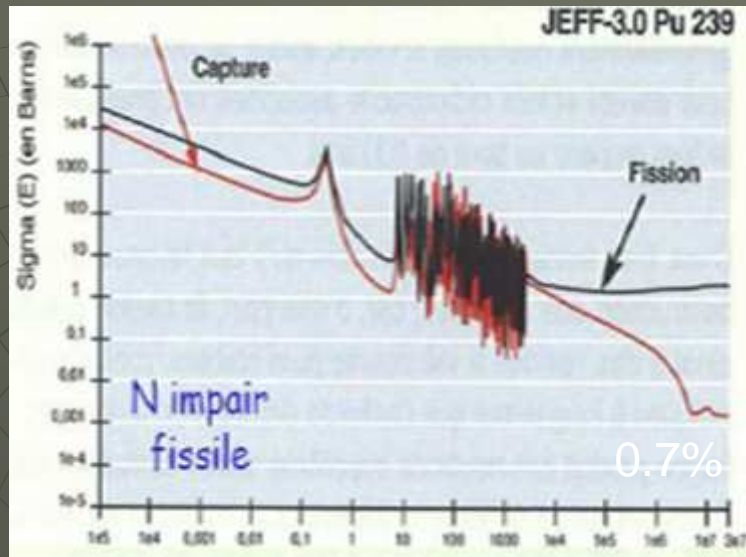


Fission et réaction en chaîne

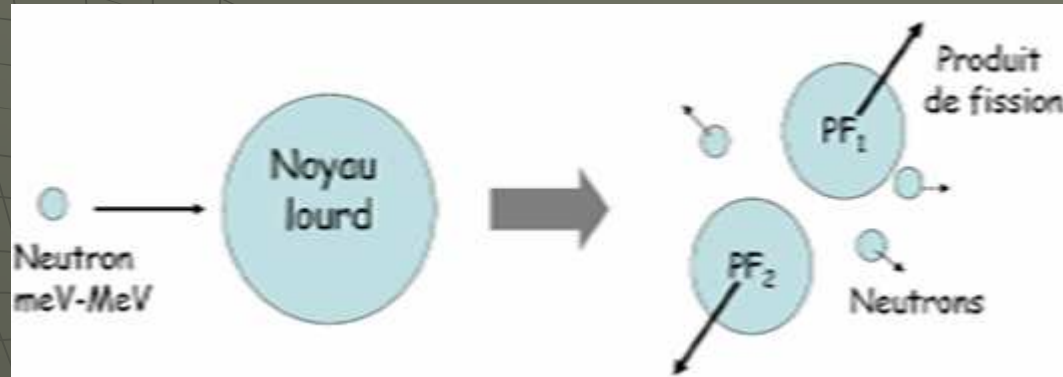


capture





fission



Les PF les plus abondants

Cas de ²³⁵U

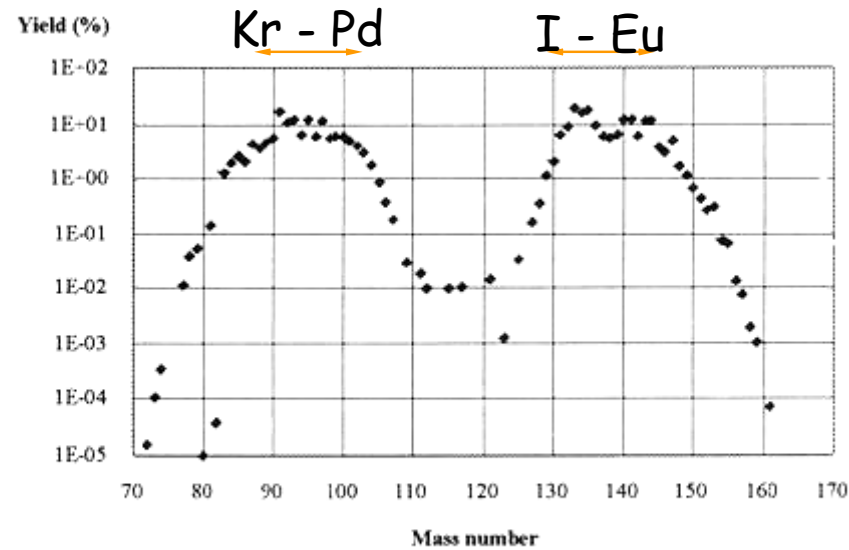


Fig. 1.6 Variation of fission yield with mass number

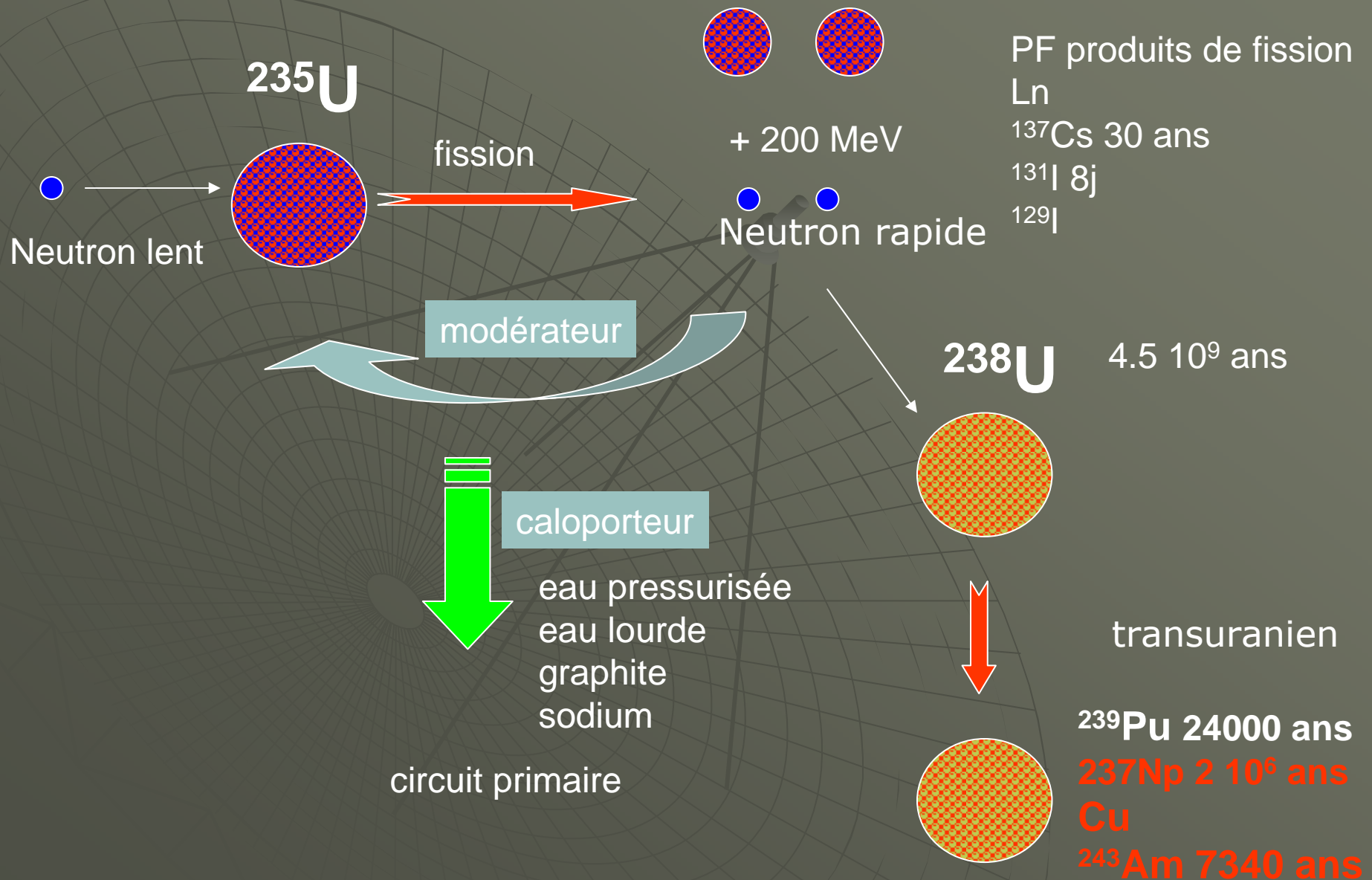
Xenon ¹³⁵Xe

Iode ¹³¹I

Cesium ¹³⁷Cs

Strontium ⁹⁰Sr

Principe d'un réacteur



Le triptyque

Du carburant : ^{235}U (0.7%) dans ^{238}U à l'état naturel

Un modérateur pour ralentir les neutrons

Graphite peu efficace (graphite gaz)

Eau légère H_2O absorbe (REP, EPR) enrichir à ^{235}U à 4%

Eau lourde D_2O absorbe (CANDU)

Un caloporteur

Eau sous pression ou non (bouillante)

Gaz (CO_2)

sodium

+ Des barres de contrôle (Bore)

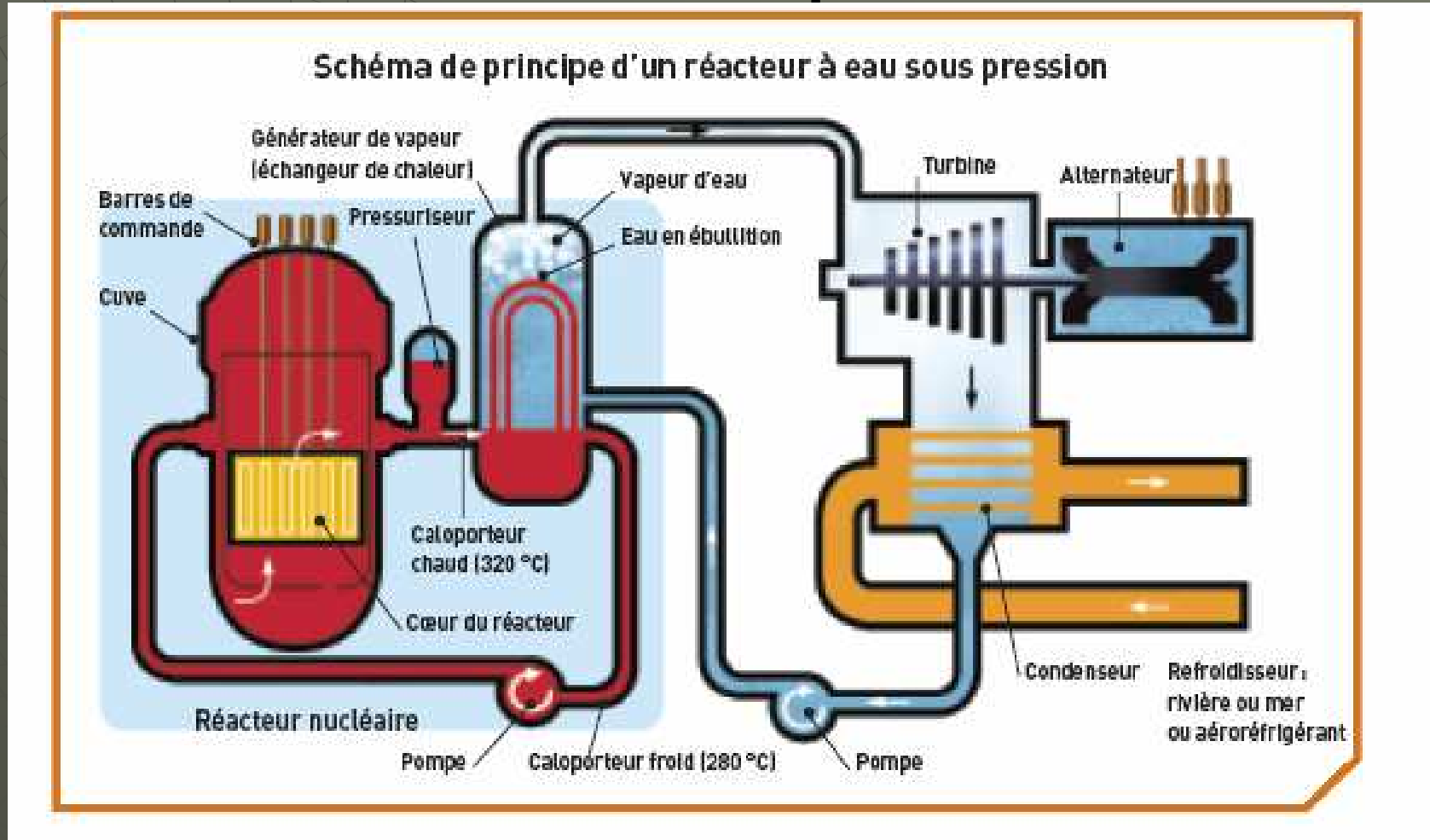
bore, carbure de bore ou solution de borates

LES DIFFÉRENTES FAMILLES DE RÉACTEURS

FILIÈRES	COMBUSTIBLE	MODÉRATEUR	CALOporteur
Réacteur UNGG (Uranium naturel graphite-gaz) Première filière développée en France. Tous les réacteurs de cette génération ont maintenant été arrêtés, le dernier en 1994.	Uranium naturel (0,7 % d'uranium 235)	Carbone solide (graphite)	Gaz carbonique
Réacteur CANDU Filière développée au Canada.	Uranium naturel	Eau lourde*	Eau lourde sous pression
Réacteur RBMK (<i>Reactor Bolchoe Molchnastie Kipiachie</i> ou en français "Réacteur bouillant de grande puissance") Ces réacteurs constituent 40 % du parc nucléaire de l'ancienne Union Soviétique (par exemple, Tchernobyl...).	Uranium enrichi à 1,8 % d'uranium 235	Carbone (graphite)	Eau bouillante
Réacteur à eau bouillante (REB) Filière développée aux États-Unis, au Japon et en Suède	Uranium enrichi à 3 % d'uranium 235	Eau ordinaire entrant en ébullition dans le cœur	
Réacteur à eau sous pression (REP) La filière la plus classique dans le monde occidental. Elle est également développée en ex-URSS sous le nom de "VVER".	Uranium enrichi à 3 % d'uranium 235	Eau sous pression maintenue à l'état liquide. L'eau sous pression est à la fois le modérateur et le caloporteur.	
Réacteur à neutrons rapides (RNR) La caractéristique de ces réacteurs est qu'ils ne comprennent pas de modérateur : les neutrons restent rapides. Un prototype en France : le réacteur Phénix (250 MWe).	Uranium enrichi ou plutonium	Aucun	Sodium liquide. Ne ralentit pas les neutrons

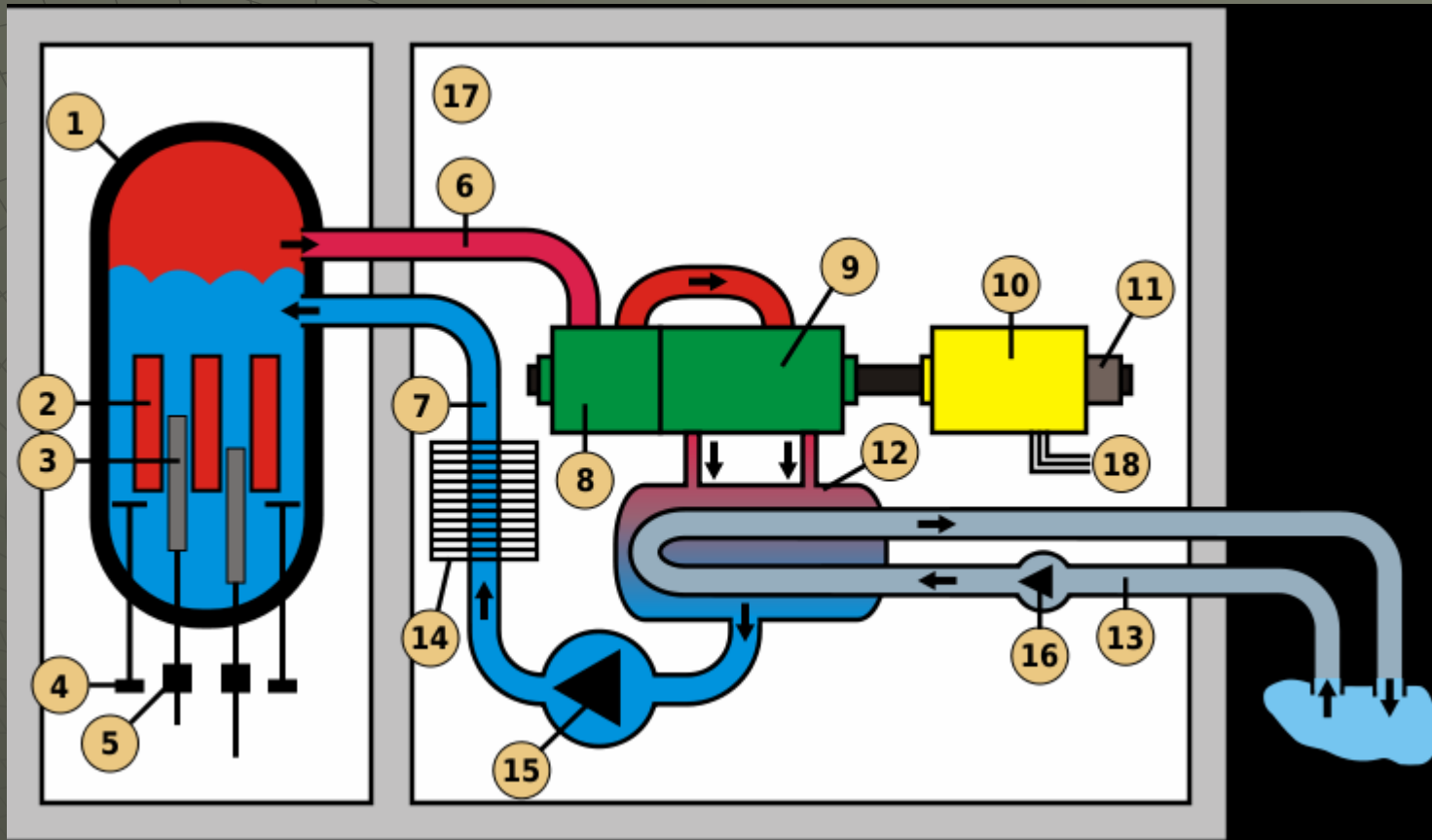
*Eau lourde : eau constituée de molécules d'eau dont l'atome d'hydrogène est un atome de deutérium, isotope lourd de l'hydrogène (voir livret L'atome).

Réacteur à eau pressurisée

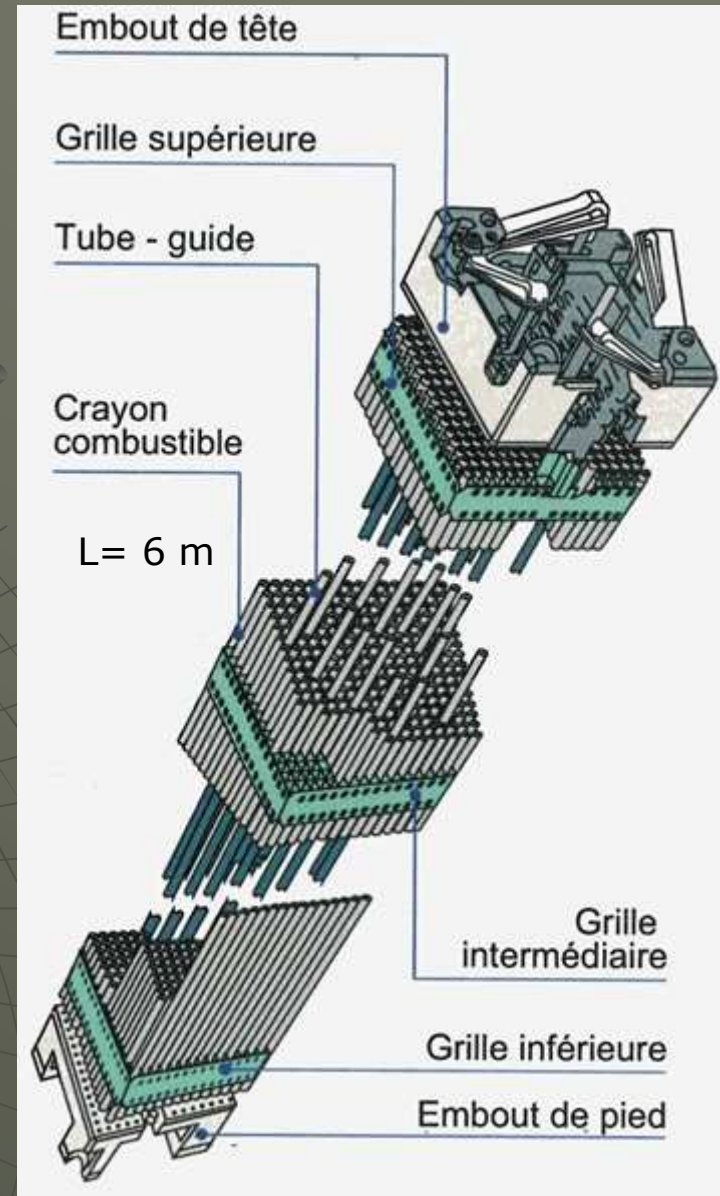
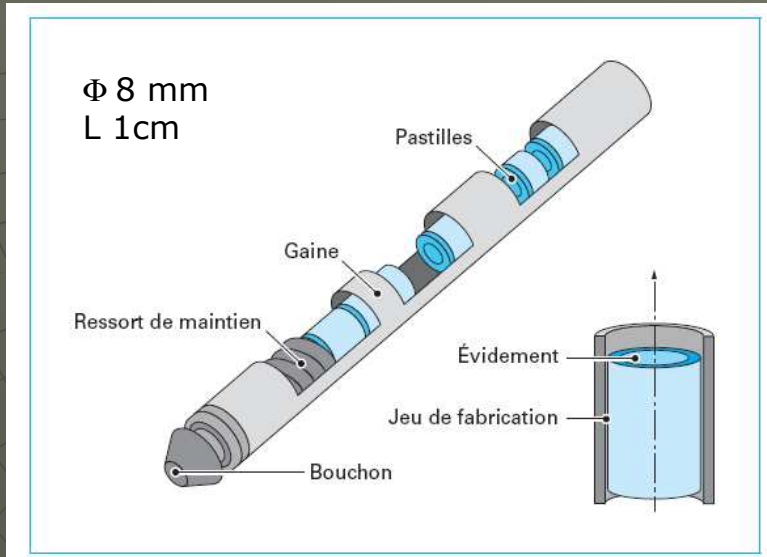


Trois boucles de refroidissement

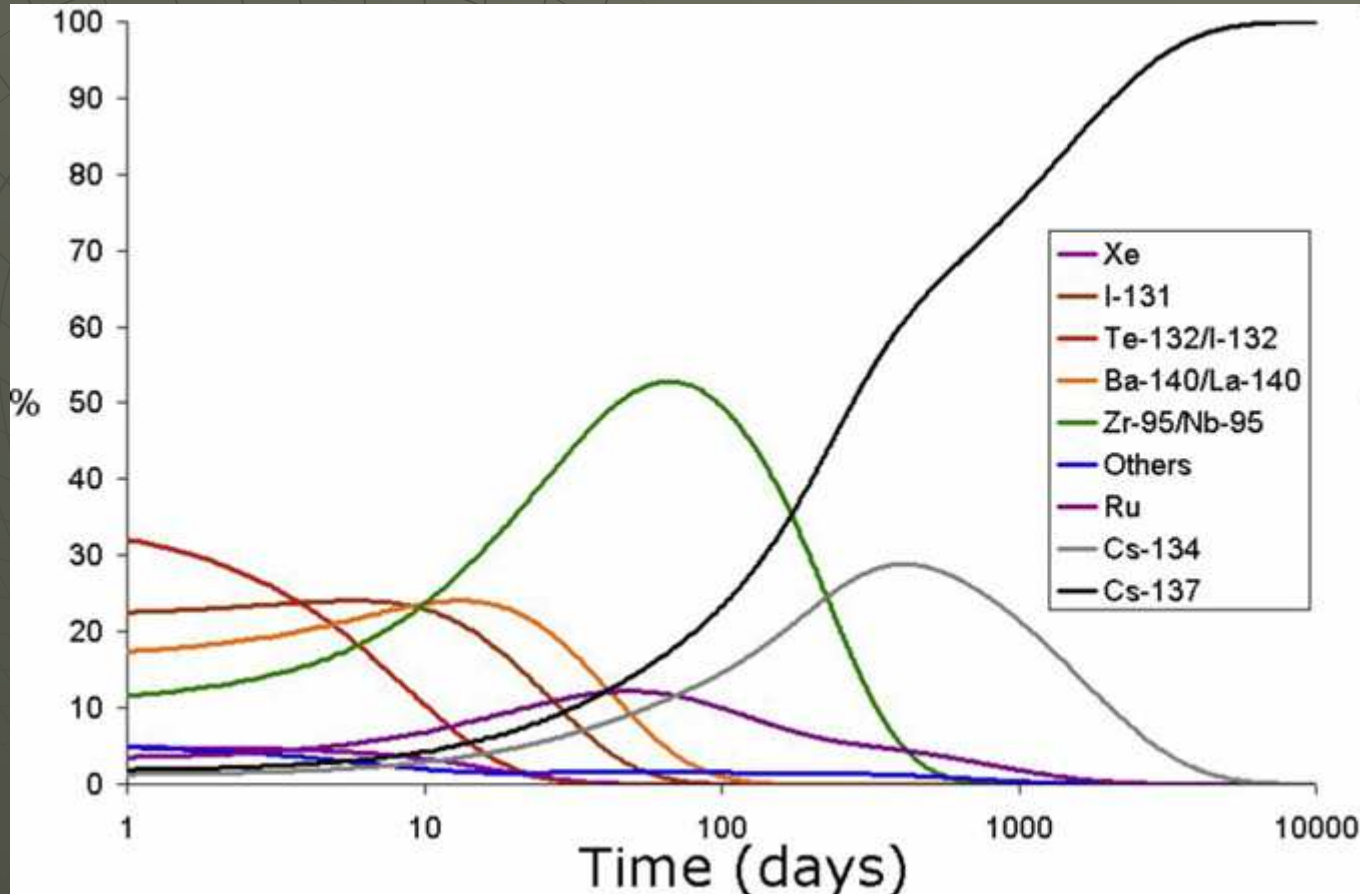
Réacteur à eau bouillante



Construction plus simple
pilotage plus difficile
corrosion plus importante



Durée de vie des produits de fission



Xe

^{131}I 8 jours

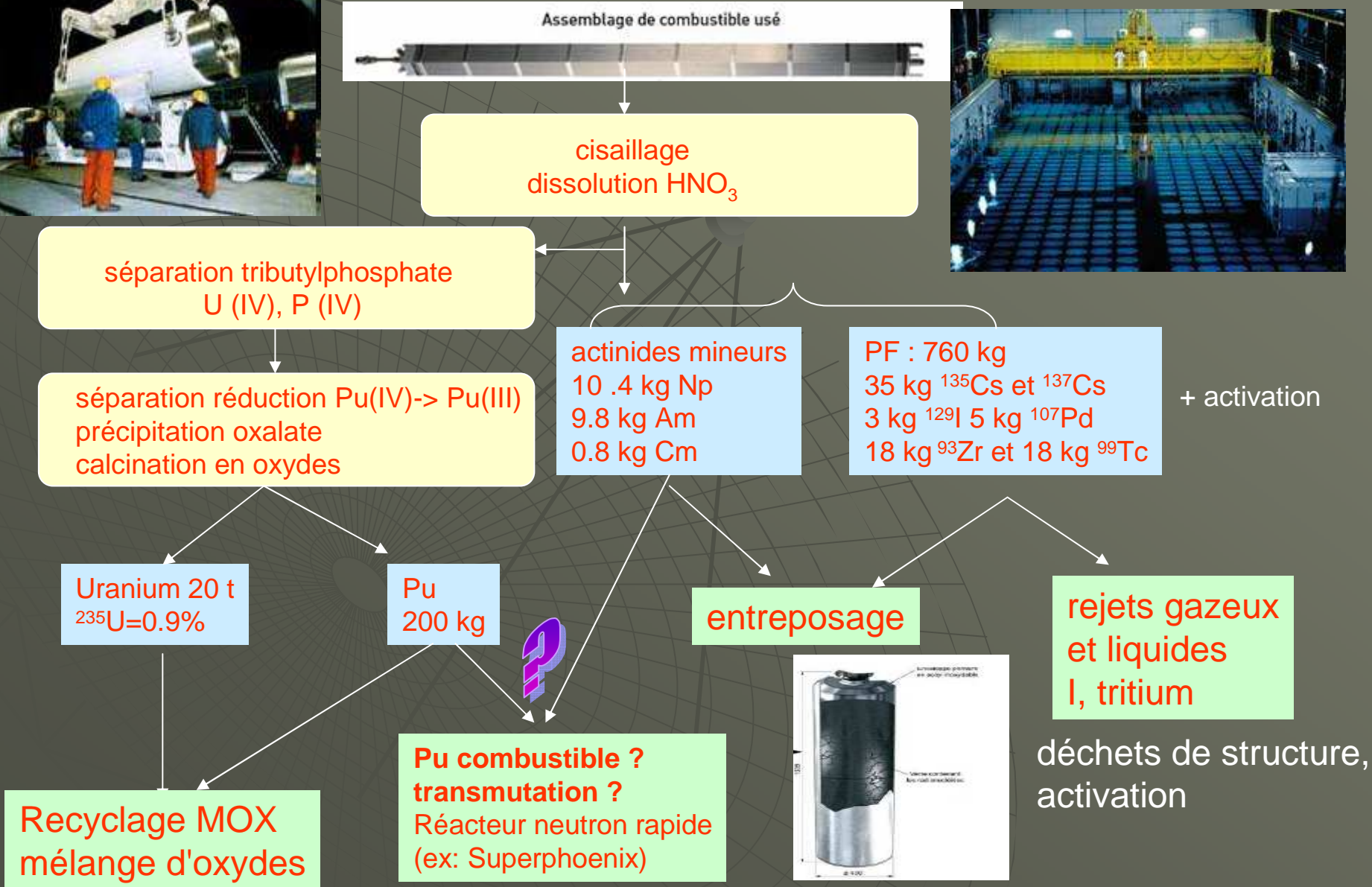
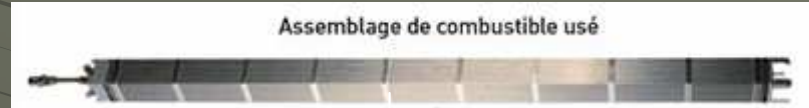
^{137}Cs 30 y

^{90}Sr 30 y

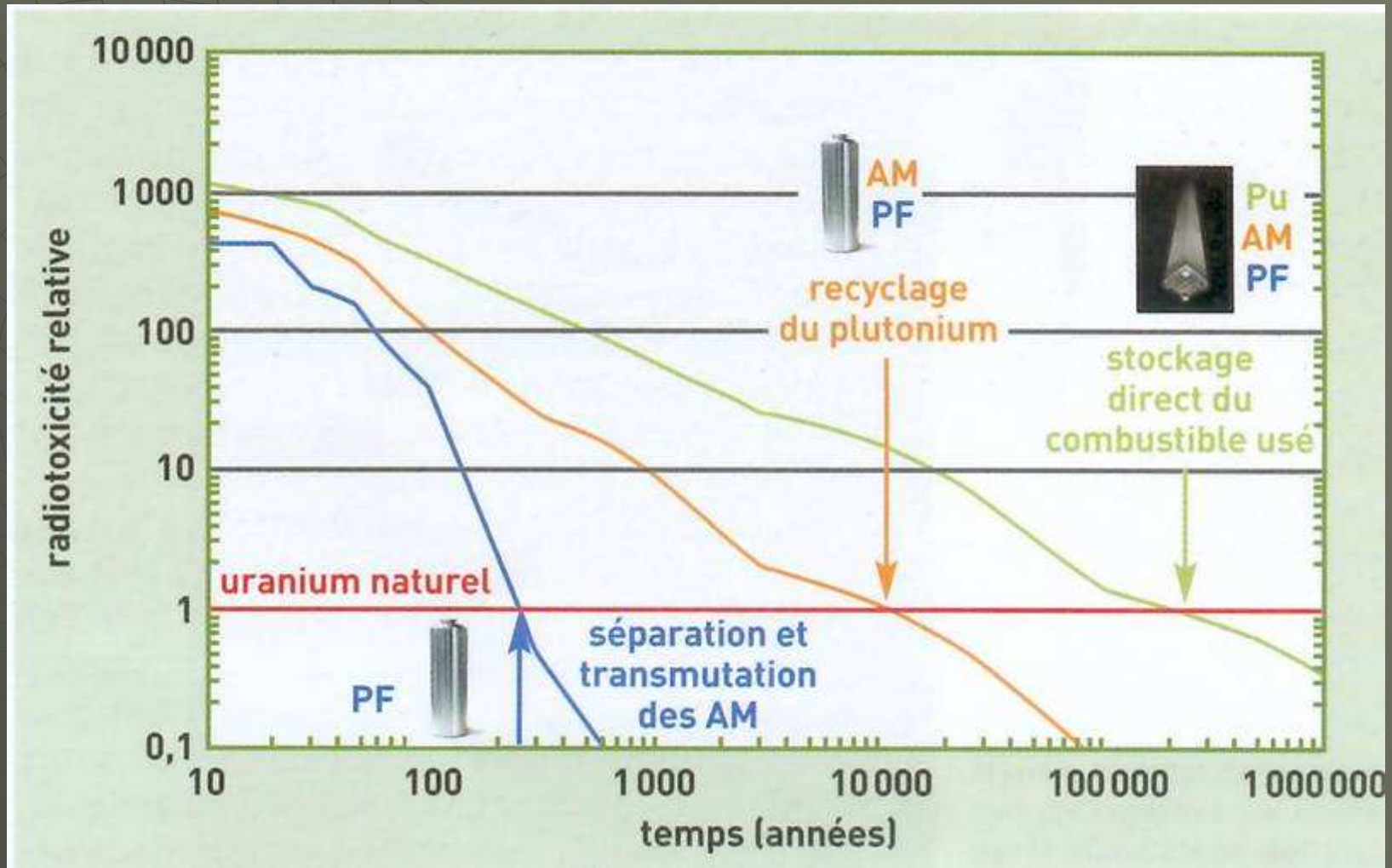
arrêt réacteur 1200 MW 1h (1% = 12 MW), 1 j (0,5 % 150 kW)

1 REP de 1000 MW chargé en UOX1

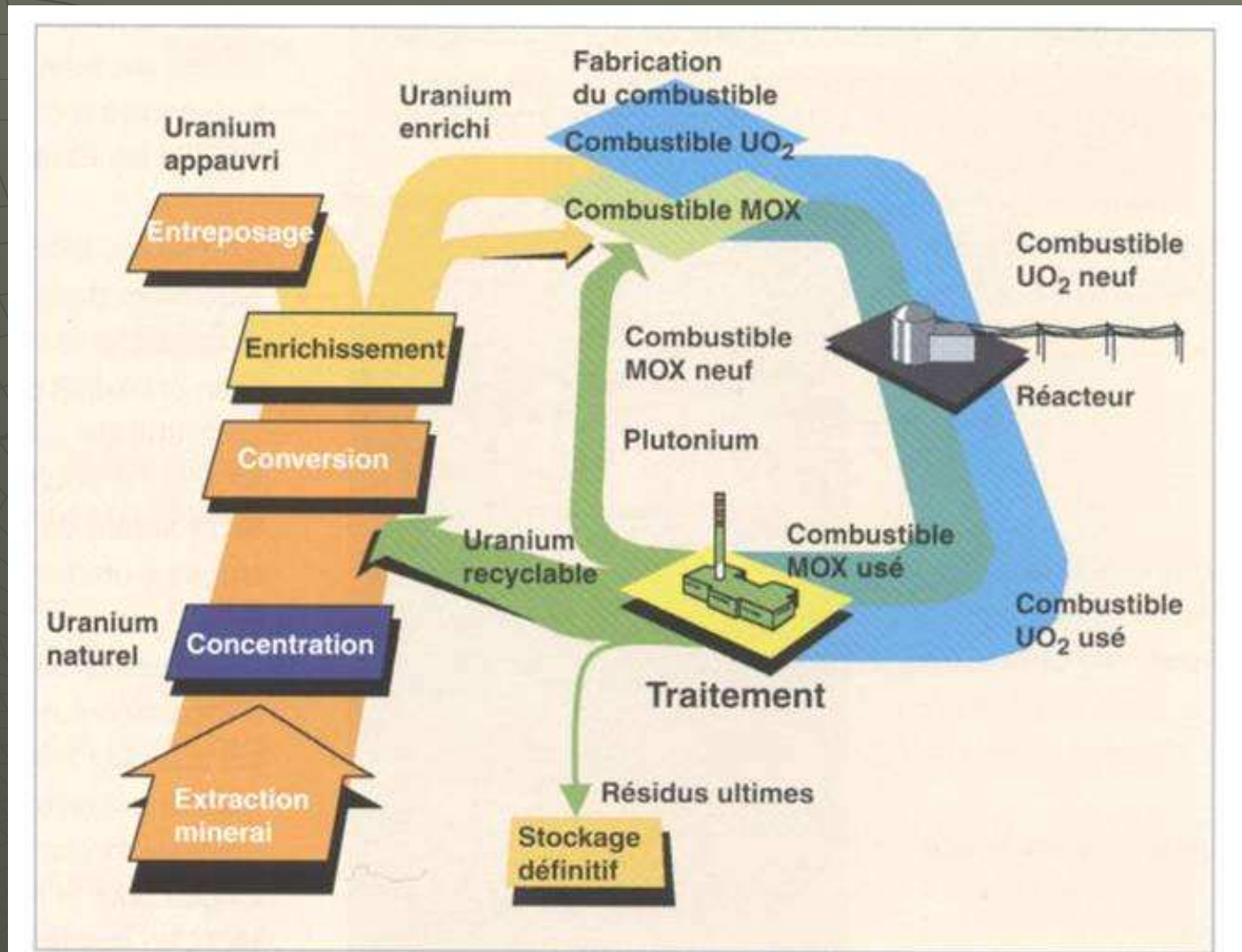
6 TWhé/an → 21 t de combustible $^{235}\text{U} = 3.5\%$ → 0.9%



Gestion des déchets

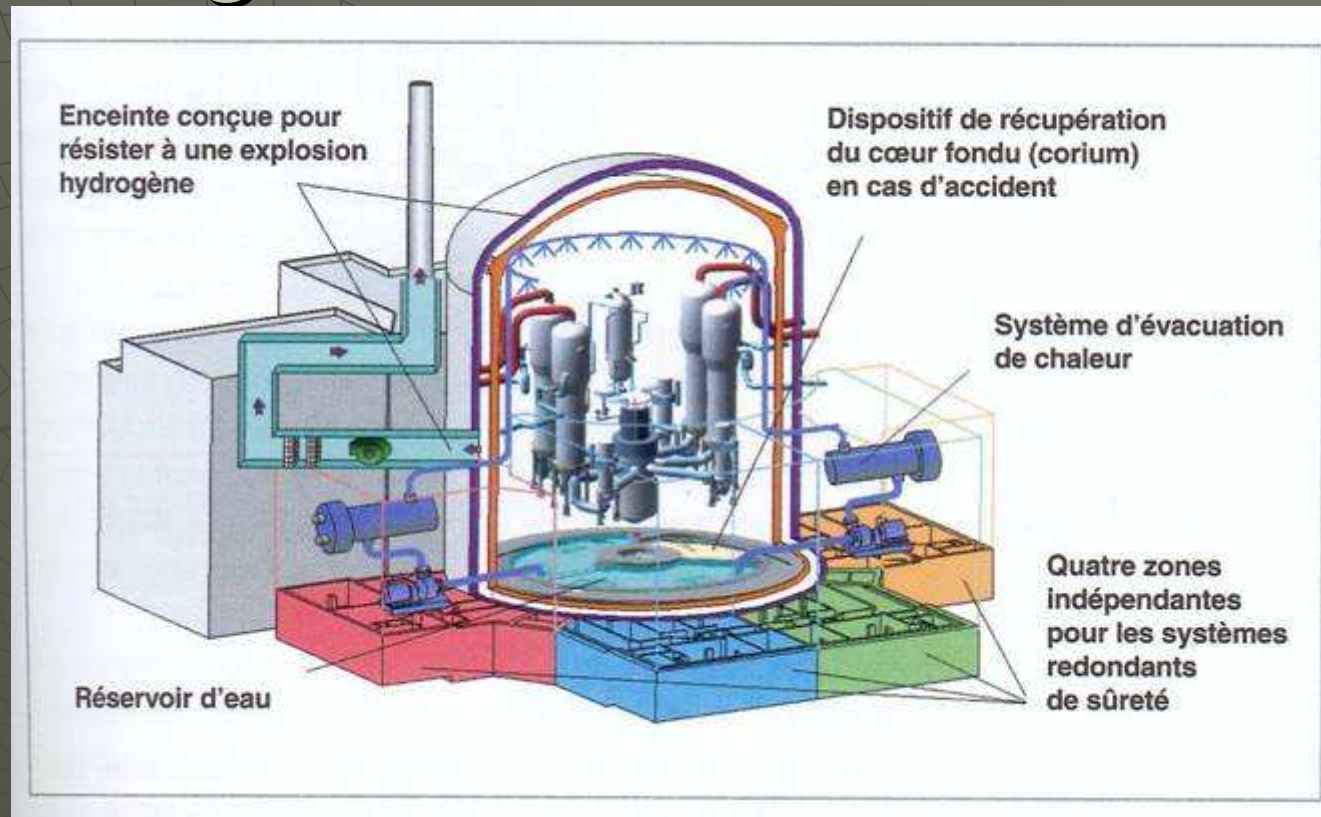


Retraitement du combustible civil MOX



Mais Coût élevé/ 20% du Pu seulement/ moins bon rendement

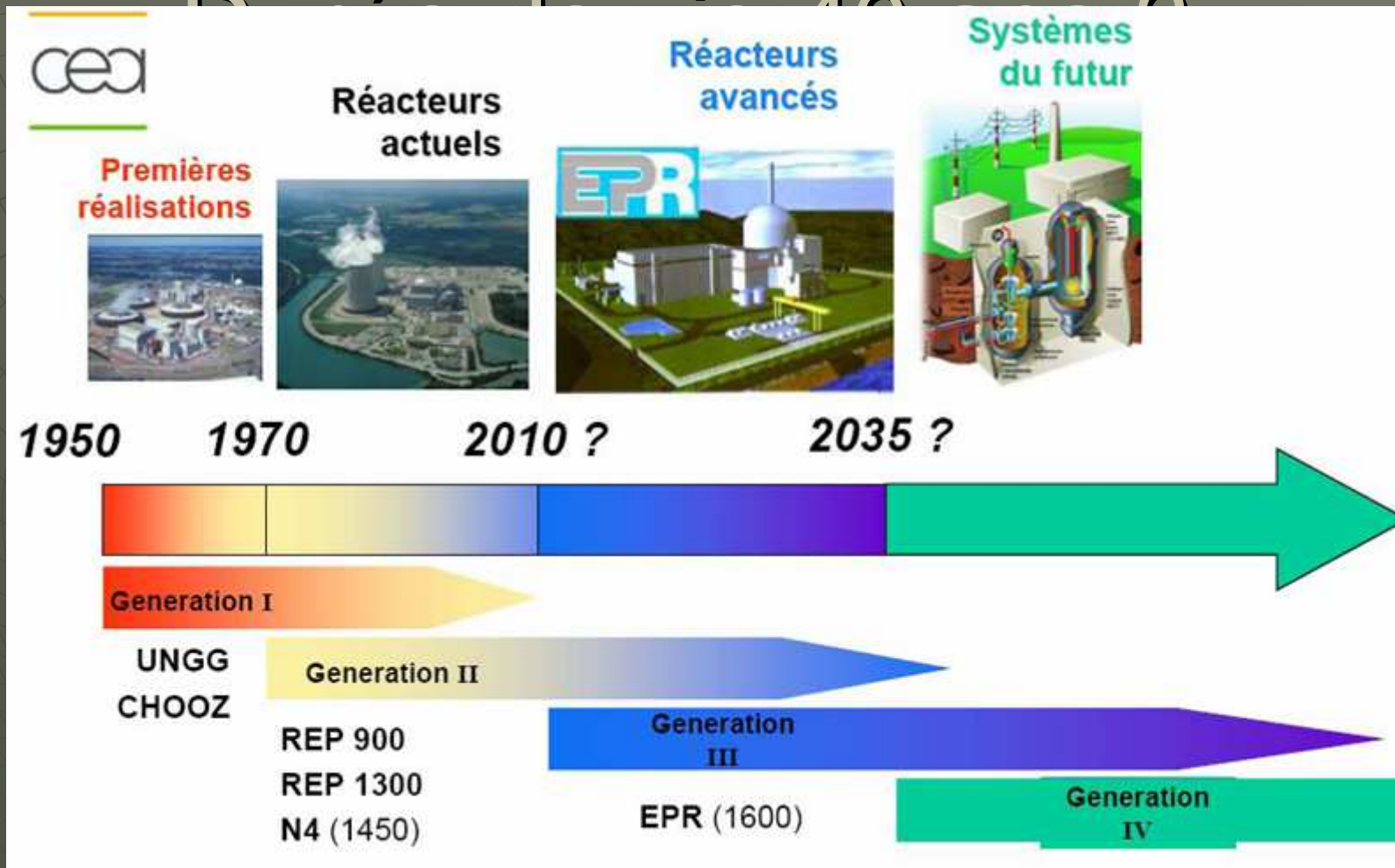
génération III: EPR



puissance 1,6 GWe
rendement de 36% au lieu de 26%
jusqu'à 100% MOX
60 ans au lieu de 40 ans
sûreté renforcée : Hydrogène / cœur fondu

du REP en mieux

European Pressurized Reactor, puis Evolutionary Power Reactor



Gen II: Fessenheim construite en 1970 (démarrage 1977)
 Gen III: Flamanville démarrage construction en 2005

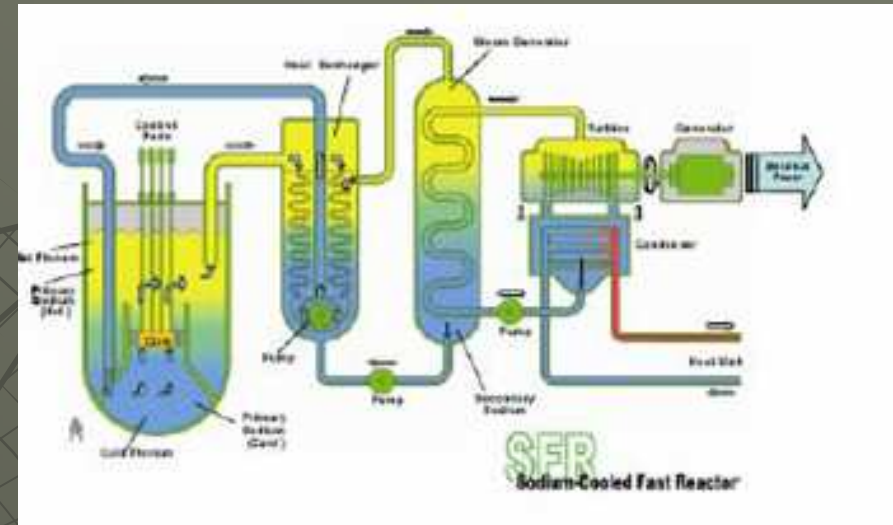
génération IV : RNR

Sodium fast reactors:
gaz fast reactors
Autres voies

réacteurs sous critiques
à accélérateurs à
neutrons
ITER: fusion nucléaire

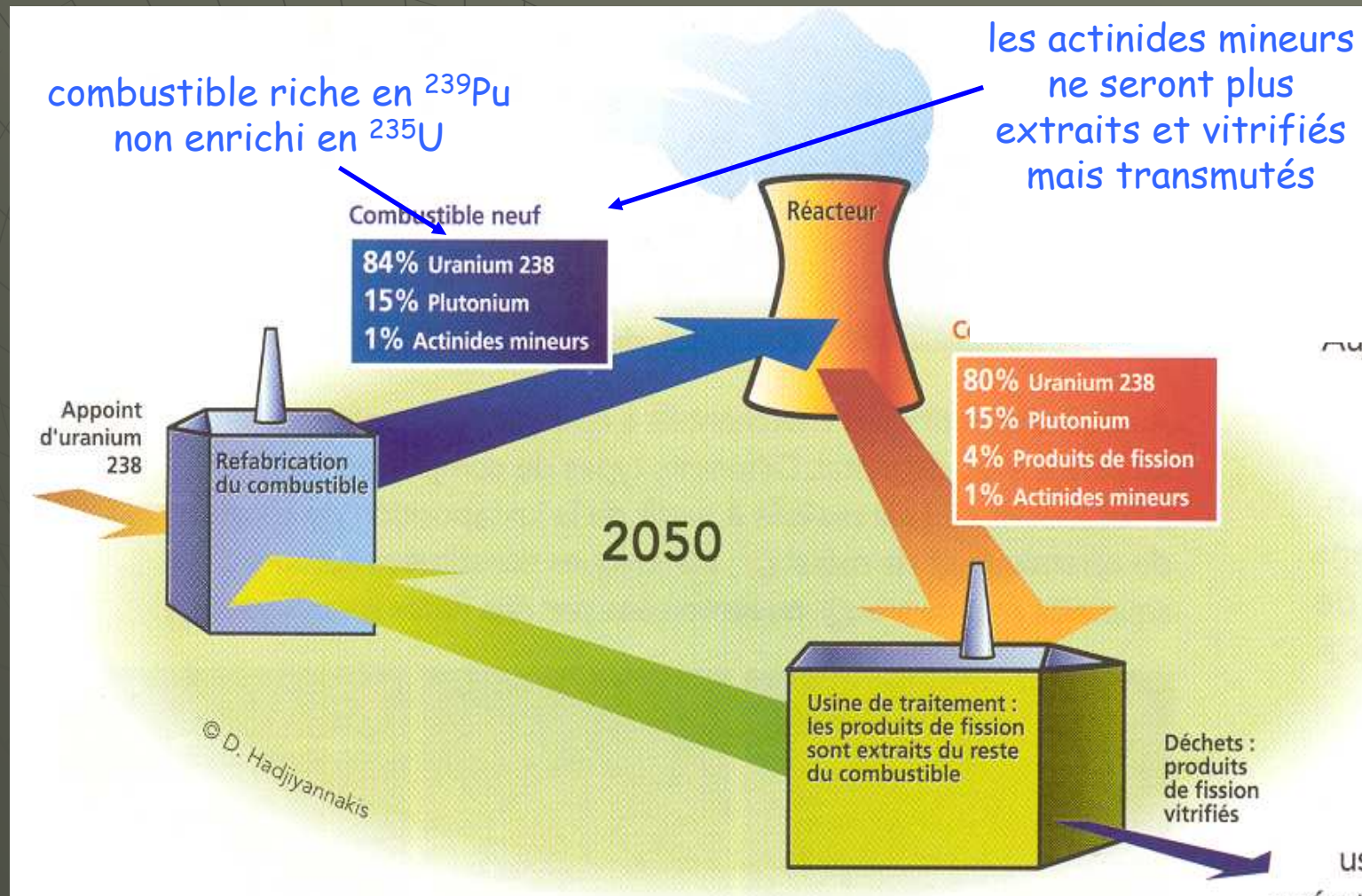
réacteurs à neutrons rapides capables de brûler U^{238}
Réserve 40 ans → 2000 ans
capable de brûler les déchets par transmutation

comité d'orientation et de suivi des recherches pour les
systèmes nucléaires (COSSYN)

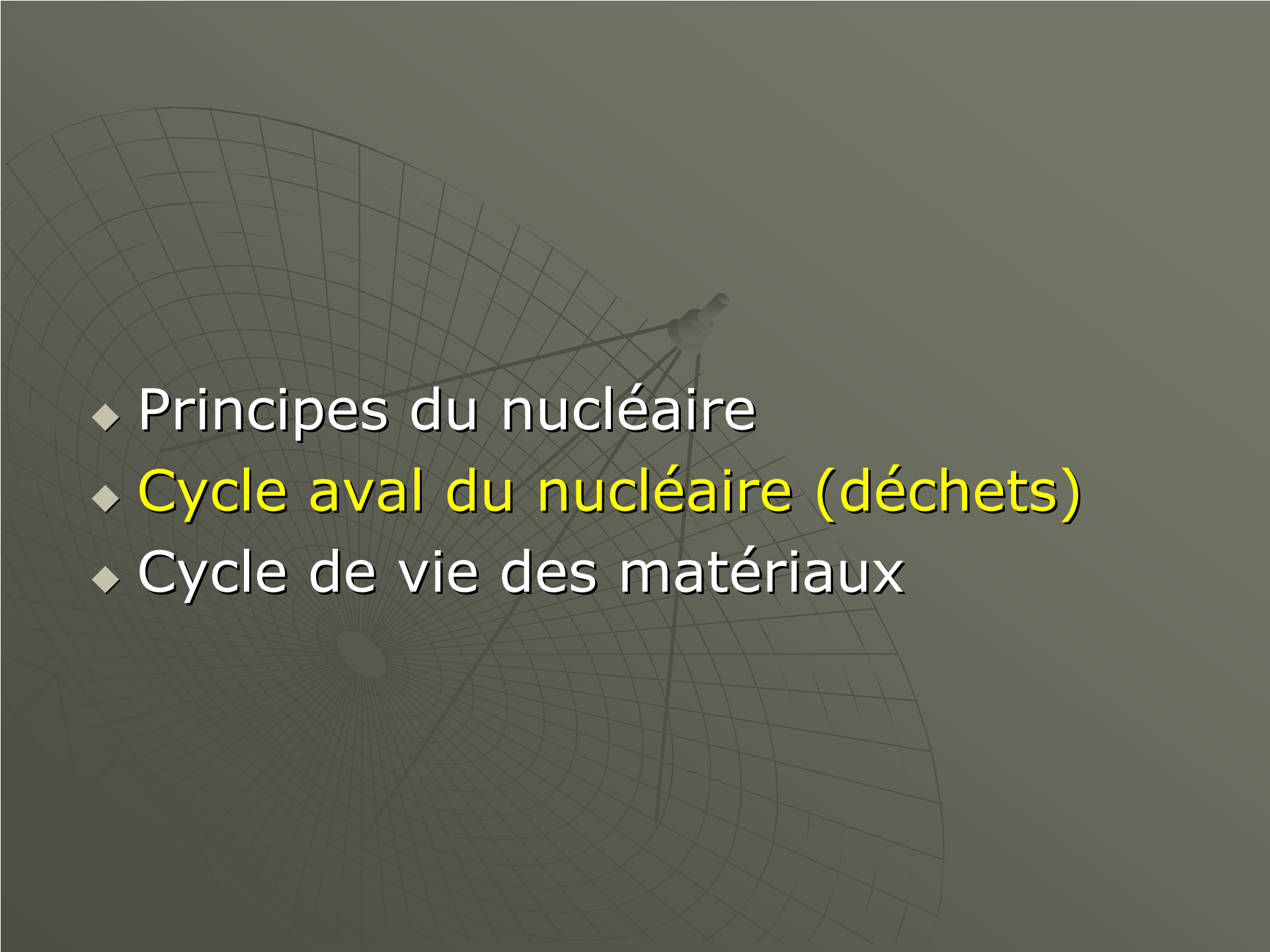


ASTRID
Advanced Sodium
Technological Reactor
for Industrial
Demonstration

Le cycle fermé du combustible dans le futur (réacteurs de 4^{ème} génération)



vitrification des produits
de fission seuls
(plus d'actinides mineurs)

- 
- ◆ Principes du nucléaire
 - ◆ Cycle aval du nucléaire (déchets)
 - ◆ Cycle de vie des matériaux

Ethique des déchets

Not in my backyard !

acceptabilité sociale

Protection de la santé humaine

Protection de l'environnement

Dans l'espace

Respect international

Dans le temps

Protection des générations futures

laisser un futur propre

élément	Durée de vie	Activité Bq/g
^{137}Cs	30 ans	$3.2 \cdot 10^{12}$ Bq/g
^{131}I	8 j	$4.6 \cdot 10^{17}$ Bq/g
^{129}I	$1,6 \cdot 10^7$ ans	$7.2 \cdot 10^6$ Bq/g
^{90}Sr	30 ans	
...	...	
^{237}Np	$2 \cdot 10^6$ ans	
^{241}Am	241 ans	
^{243}Am	7380 ans	
^{239}Pu	24000 ans	$23 \cdot 10^9$ Bq/g
^{238}U	4.5 Milliards d'année	12300 Bq/g

Disparus en quelques années

Produits de fission nombreux

Actinides mineurs

réutilisés

confinement des déchets

loi Bataille (1991) objectif la prise en compte de l'environnement et les droits des générations futures. Cette loi a défini un programme de recherche sur quinze ans autour de trois axes

Axe 1 séparations et transmutations des éléments à vie longue

Axe 2 le stockage en formation géologique profonde

Axe 3 le conditionnement et l'entreposage en surface

ANDRA

Loi 2006

Laboratoire souterrain de Bure dans la Meuse

pour le second axe, relatif aux possibilités de stockage des déchets en couche géologique profonde, la demande d'autorisation de stockage sera instruite en 2015 et la mise en exploitation du centre de stockage interviendra en 2025 (naturellement dans le cas où l'instruction préalable serait favorable) ;

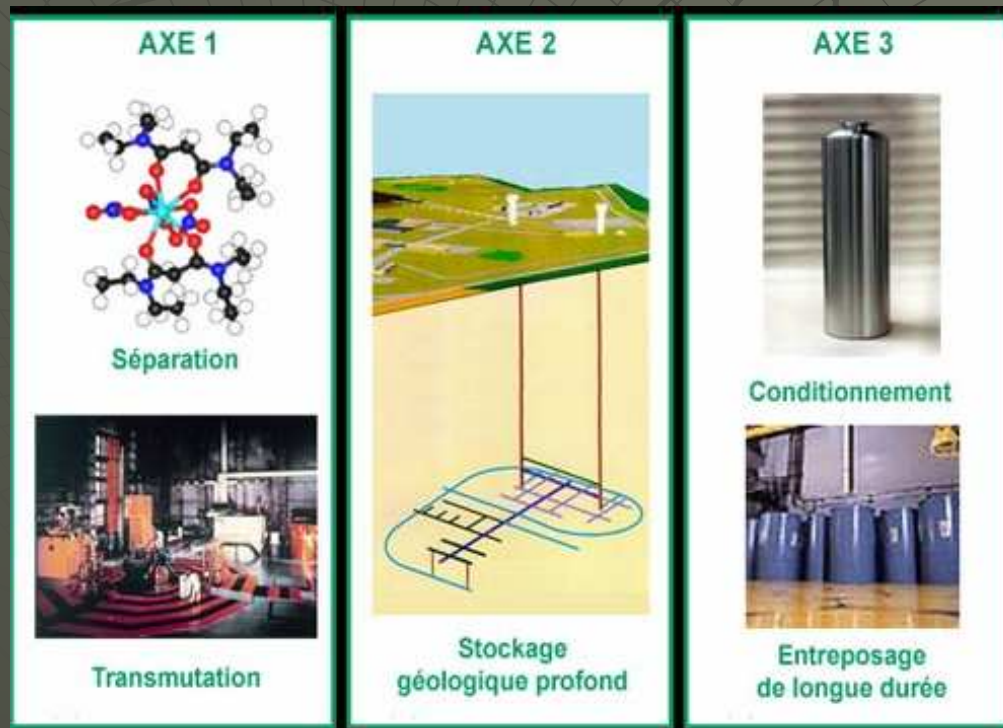
confinement des déchets

loi Bataille (1991) objectif la prise en compte de l'environnement et les droits des générations futures. Cette loi a défini un programme de recherche sur quinze ans autour de trois axes

Axe 1 séparations et transmutations des éléments à vie longue

Axe 2 le stockage en formation géologique profonde

Axe 3 le conditionnement et l'entreposage en surface



ANDRA / Laboratoire
souterrain
de Bure dans la
Meuse

Loi 2006 (préambule)

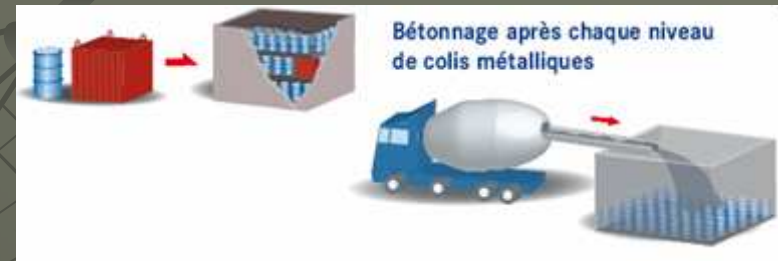
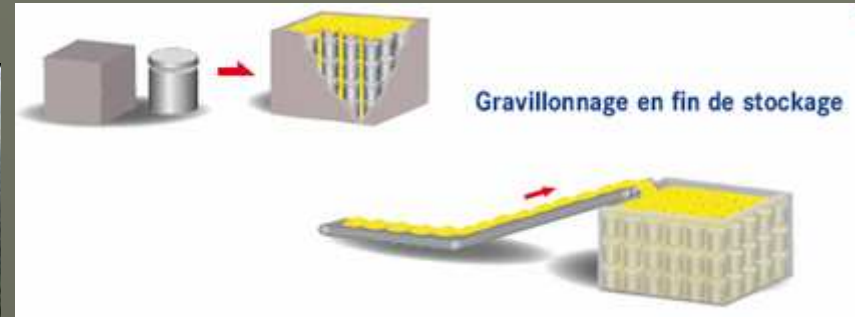
pour le premier axe, relatif à la séparation et la transmutation des éléments radioactifs à vie longue, un bilan sera dressé en 2012 entre les différentes filières de transmutation. En fonction des résultats qui seront obtenus dans le cadre de ce bilan, des prototypes d'installation pourraient être construits à partir de 2020 et une mise en service industrielle envisagée à l'horizon 2040 ;

*pour le second axe, relatif aux possibilités de stockage des déchets en couche géologique profonde, **la demande d'autorisation de stockage sera instruite en 2015 et la mise en exploitation du centre de stockage interviendra en 2025** (naturellement dans le cas où l'instruction préalable serait favorable) ;*

pour le troisième axe, concernant l'étude de procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée en surface, la loi prévoit, au plus tard en 2015, la création de nouvelles installations ou la modification des installations existantes.

Déchets

	Vie courte Période < 30 ans pour les principaux éléments	Vie longue Période > 30 ans
Très faible activité (TFA)	Stockage dédié de Morvilliers (ouvert depuis 2003) Capacité : 650 000 m ³	
Faible activité (FA)	Centre de l'Aube (ouvert depuis 1992) Capacité : 1 million de m ³	Stockage dédié à l'étude pour les déchets radifères (volume : 100 000 m ³) et graphites (volume : 14 000 m ³)
Moyenne activité (MA)		Volume estimé MID : 78 000 m ³
Haute activité (HA)	Volume estimé MID : 7 400 m ³	



centre de stockage des déchets de faibles et moyenne activité de l'Aube
(Andra)



compactage

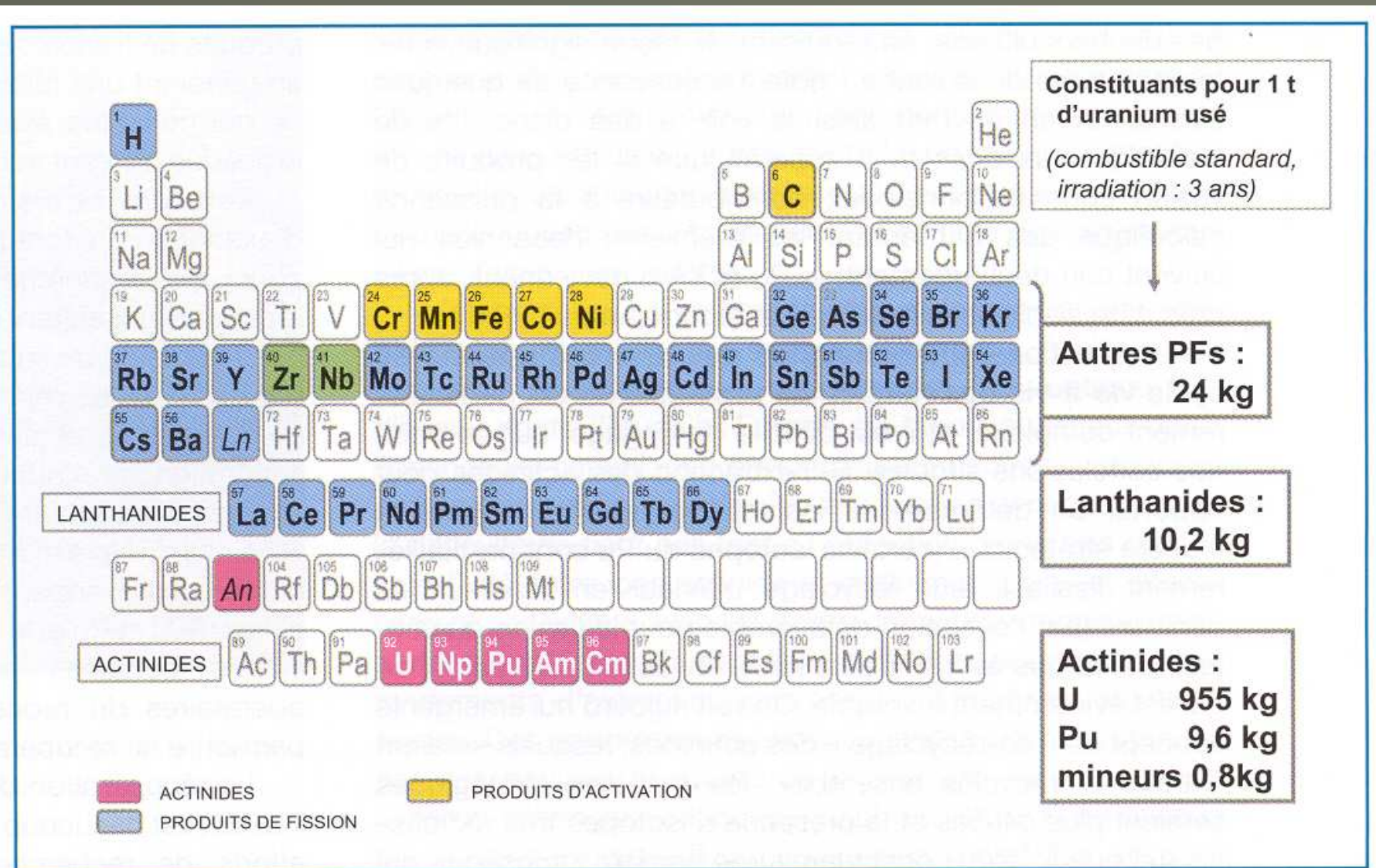


Figure 1 - Les principaux constituants du combustible nucléaire utilisé.

Confinement de déchets THA

PF quantité nette = 63 tonnes/an (1,0 g/an/habitant) ;
actinides mineurs: quantité nette = 1,85 tonne/an (0,035 g/an/habitant).

Un fois conditionnés dans du verre et emballés
PF = 340 tonnes/an (5,5 g/an/habitant) en vitrifié
AMin = 9,3 tonnes/an (0,15 g/an/habitant).

stocké à 12,5% en masse → 2,5 cm³ = 10 g

2.5 cm³/an/habitant 240 m³/France/an

forum des halles 200 000 m³ (50 000 m²)
Cathédrale d'Amiens 100 000 m³

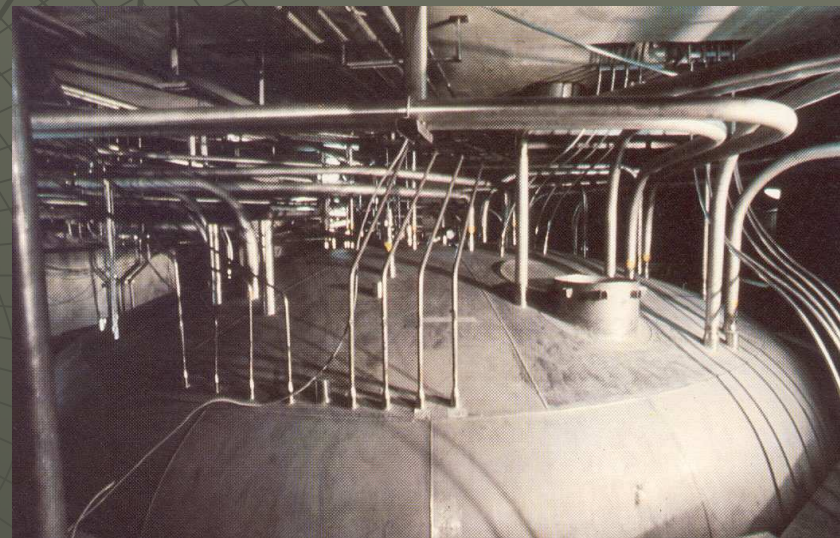
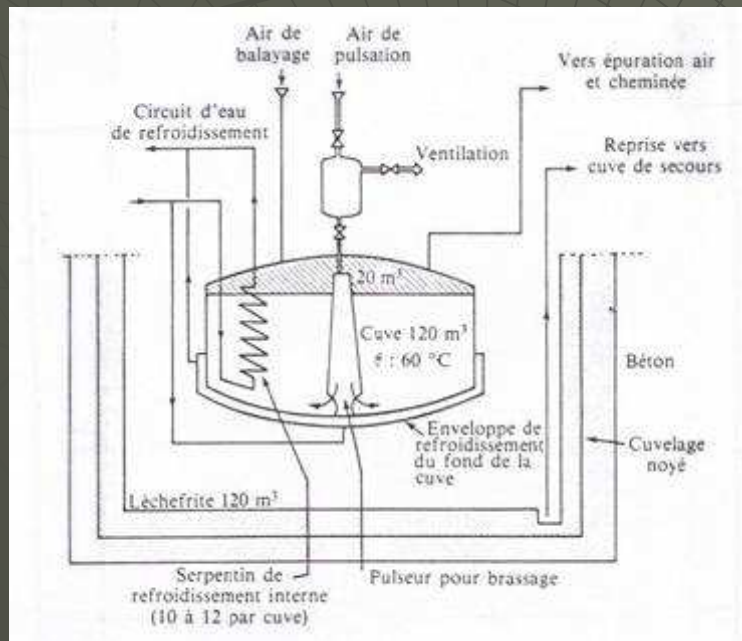


Nécessité de confiner les solutions de PF

Après extraction de U et Pu (procédé Purex):



Les solutions de PF (civiles ou militaires) sont entreposées pour une durée plus ou moins longue dans des cuves en acier (décroissance radioactive + dégagement thermique)



cuve de d'entreposage des solutions de PF (corrosives)



Aux USA, sur une période de près de 40 ans, les programmes de production de Pu militaire ont généré environ 380 000 m³ de déchets de très haute activité. La majorité de ces déchets (340 000 m³) est stockée sur les sites de Hanford (Washington) et de Savannah River (Caroline du sud).

Cuves de stockage de déchets issus de retraitement du combustible militaire sur le site de Hanford aux USA (état de Washington)

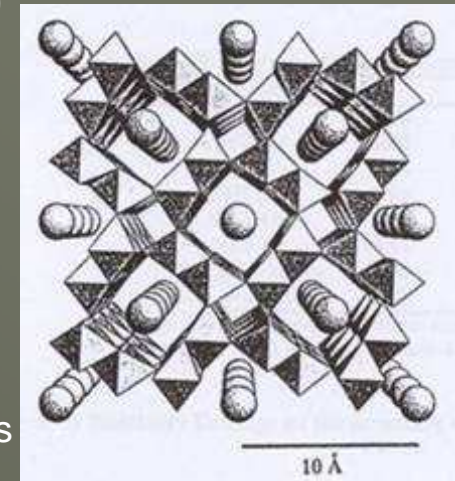
matrices

- Une grande stabilité chimique
- Une mise en œuvre faisable dans les conditions du nucléaire.
- Une forte résistance à l'autoirradiation.
- Une bonne tenue mécanique pour éviter les fracturations (T, He)
- Une durabilité chimique élevée
(redox, eau, radiolyse)

exemples de matrices



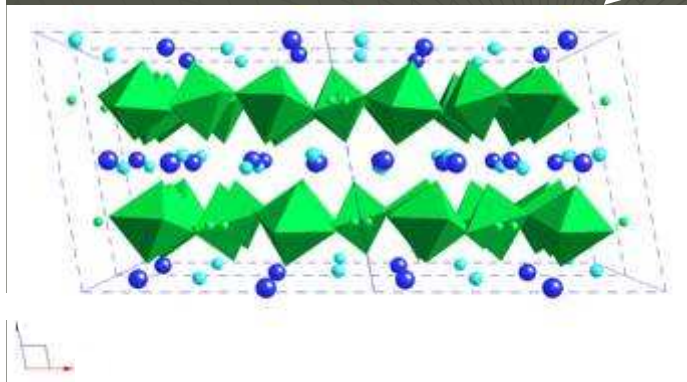
CERAMIQUES (généralement monophasées)



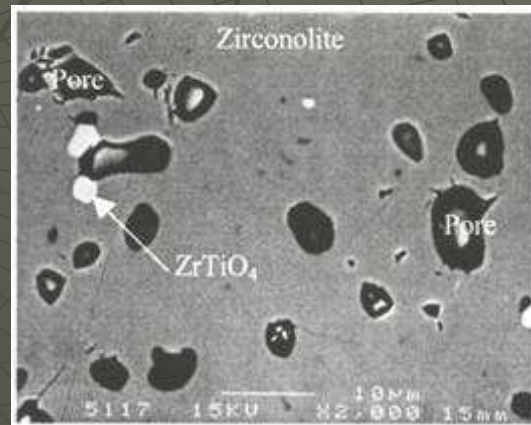
Cs

actinides mineurs, Pu

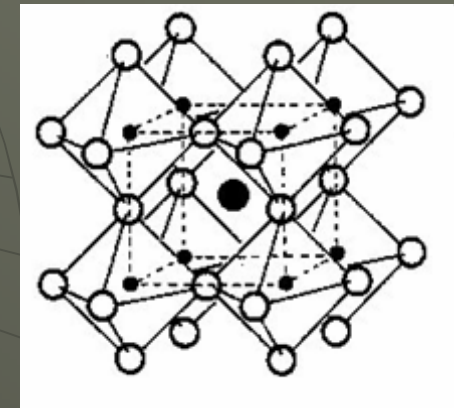
structure hollandite
 $BaAl_2Ti_6O_{16}$



structure zirconolite
 $CaZrTi_2O_7$



céramique zirconolite



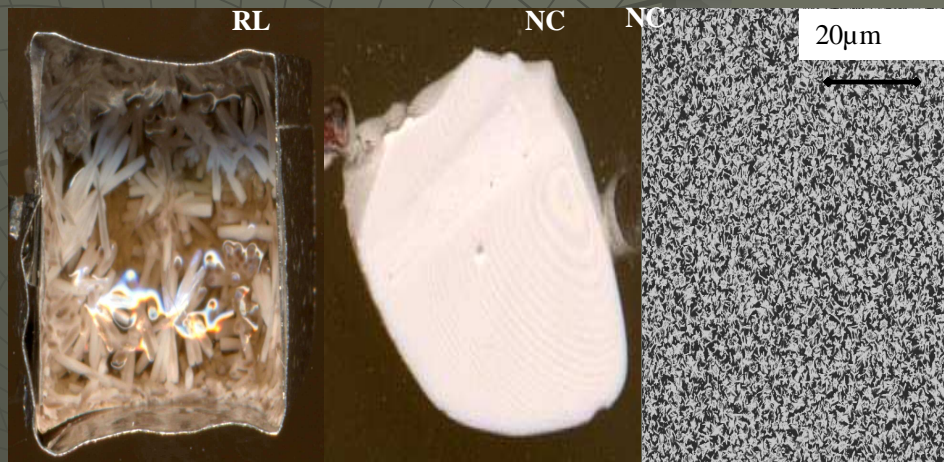
perovskites

les apatites $A_{10}(BO_4)_6X_2$

Matrices spécifiques

Britholite $Ca_9Nd(PO_4)_5(SiO_4)F_2$ neodyme \rightarrow Am^{3+} ou Cm^{3+}

Vanadate $Pb_{10}(VO_4)_5PO_4I_2$ confinement de ^{129}I



Vitrocéramiques

cristallisation de phase apatite ($Ca_2Nd_8(SiO_4)_6O_2$)

refroidissement lent (RL)

nucleation + croissance (NC)

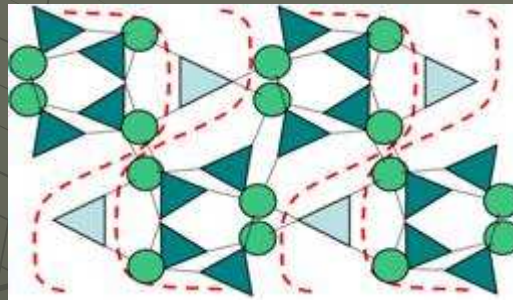
Analogues naturels



Guarapari Brésil

Phosphates de terres rares

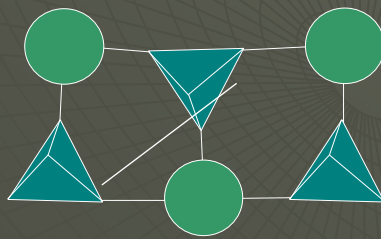
Phosphates de terres rares



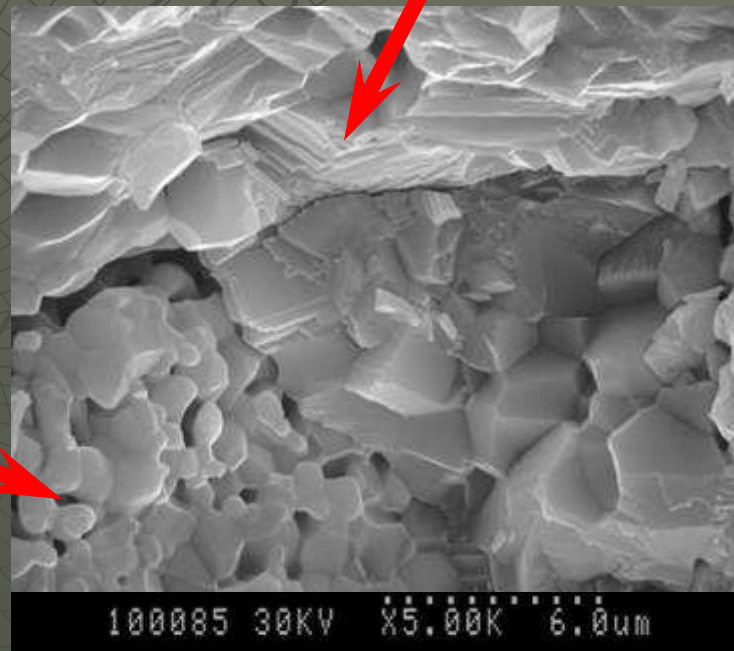
TPD ($\text{ThPO}_4(\text{P}_2\text{O}_7)_{1/4}$)

Th^{IV} ← $\text{U}^{\text{IV}}, \text{Pu}^{\text{IV}}, \text{Np}^{\text{IV}}$

Monazite LaPO_4



$\text{Pu}^{\text{III}}, \text{Am}^{\text{III}}, \text{Cm}^{\text{III}}$



G. Wallez, M. Quarton *et al.*, J. Solid State Chem. 2006

autres analogues naturels



Seychelles

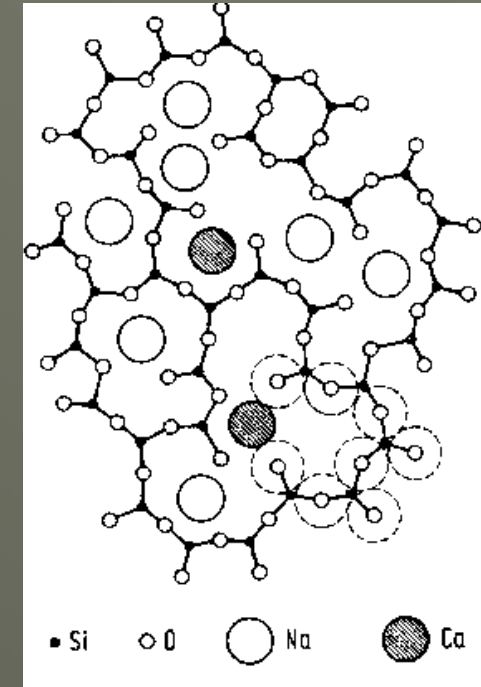
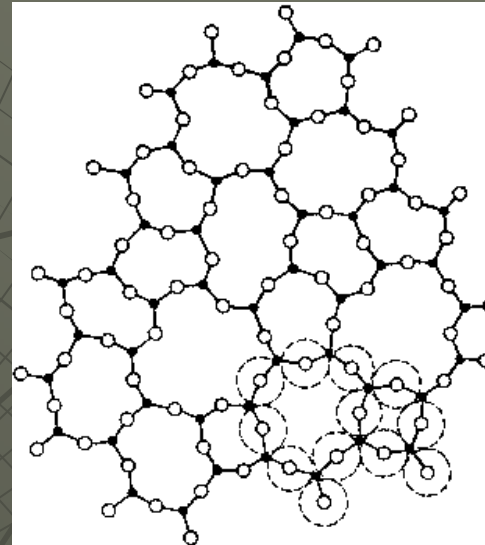
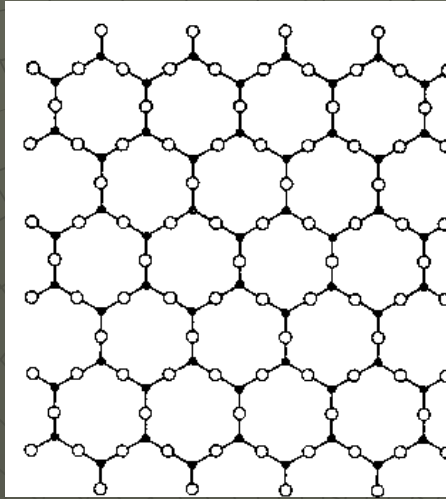
Fontainebleau

SiO_2



Verre

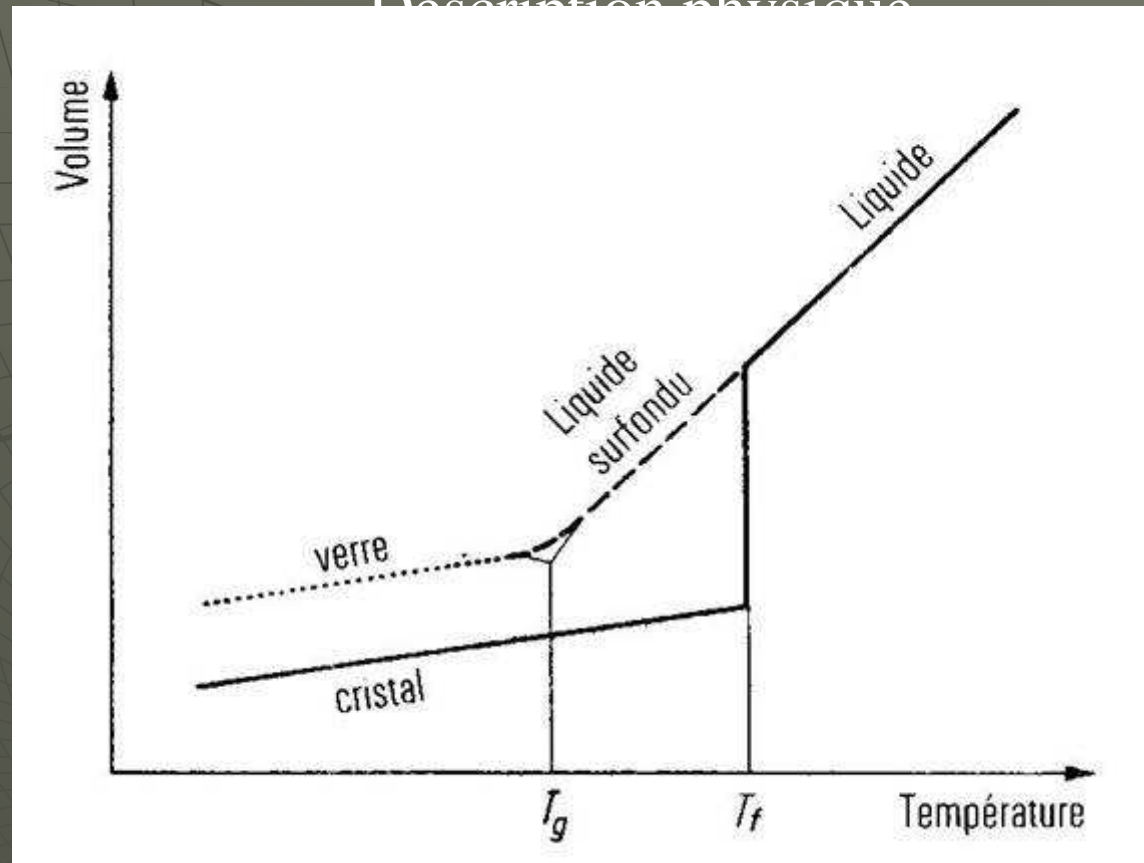
Le verre



Règles de Zachariasen (1933)

- 1) La coordinence du cation est petite
- 2) un ion oxygène ne peut être lié à plus de deux cations
- 3) les polyèdres formés par les oxygènes ne peuvent avoir que des sommets en commun
- 4) trois sommets au moins de chaque polyèdre doivent être partagés avec d'autres polyèdres.

Description physique



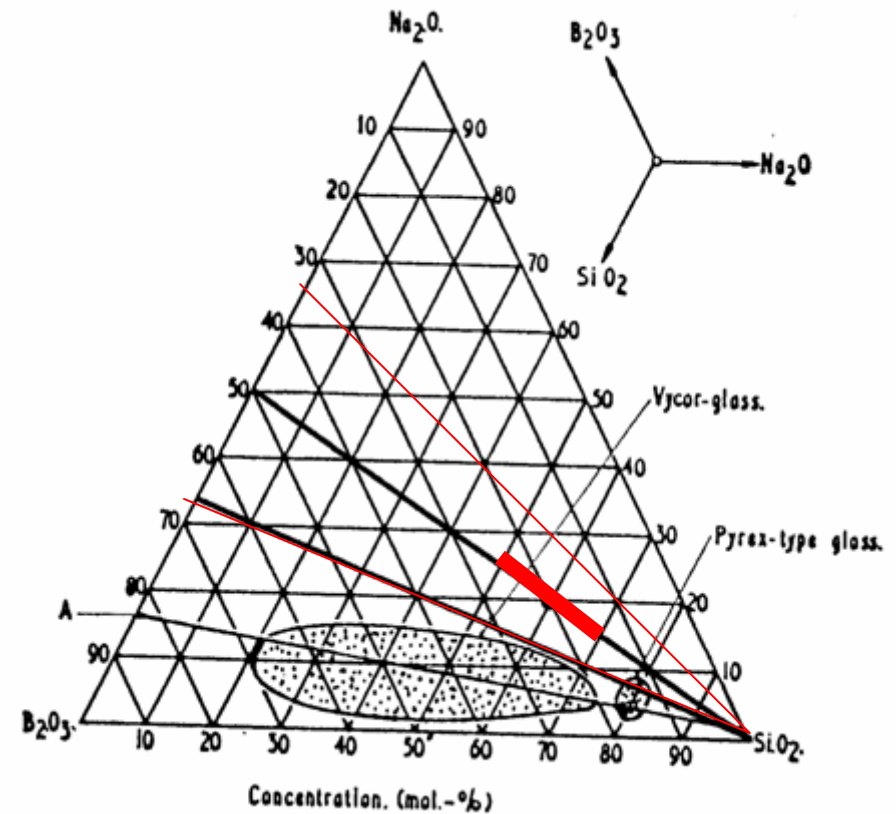
600°C 1200°C

“Matériaux solides et non cristallisés”
produit minéral se solidifiant sans cristalliser
liquide surfondu figé $T_g \implies \eta = 10^{13}$ dPas (=Poise)

Son 68-R7T7

Table 1
R7T7 nuclear glass composition (wt.%)

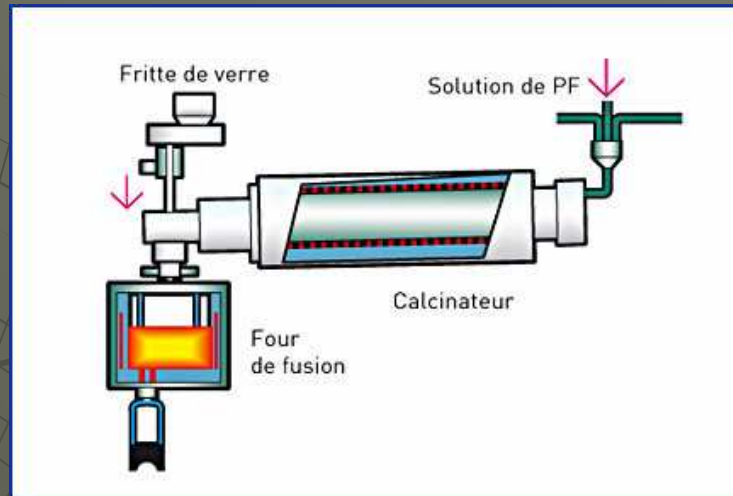
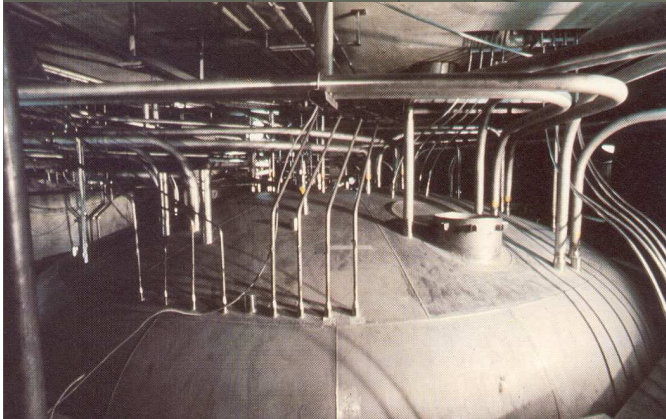
Oxide	Wt.%	Oxide	Wt.%
SiO ₂	45.48	MnO ₂	0.72
B ₂ O ₃	14.02	BaO	0.6
Na ₂ O	9.86	UO ₂	0.52
Al ₂ O ₃	4.91	Cr ₂ O ₃	0.51
CaO	4.04	Pr ₂ O ₃	0.44
Fe ₂ O ₃	2.91	ThO ₂	0.33
ZrO ₂	2.65	SrO	0.33
ZnO	2.5	P ₂ O ₅	0.28
Li ₂ O	1.98	TcO	0.23
MnO ₃	1.7	Y ₂ O ₃	0.2
Nd ₂ O ₃	1.59	CoO	0.12
Cs ₂ O	1.42	CdO	0.03
Ce ₂ O ₃	0.93	Ag ₂ O	0.03
La ₂ O ₃	0.9	SnO ₂	0.02
NiO	0.74	Sb ₂ O ₃	0.01



en moles 60 SiO₂ 20 Na₂O 20 B₂O₃

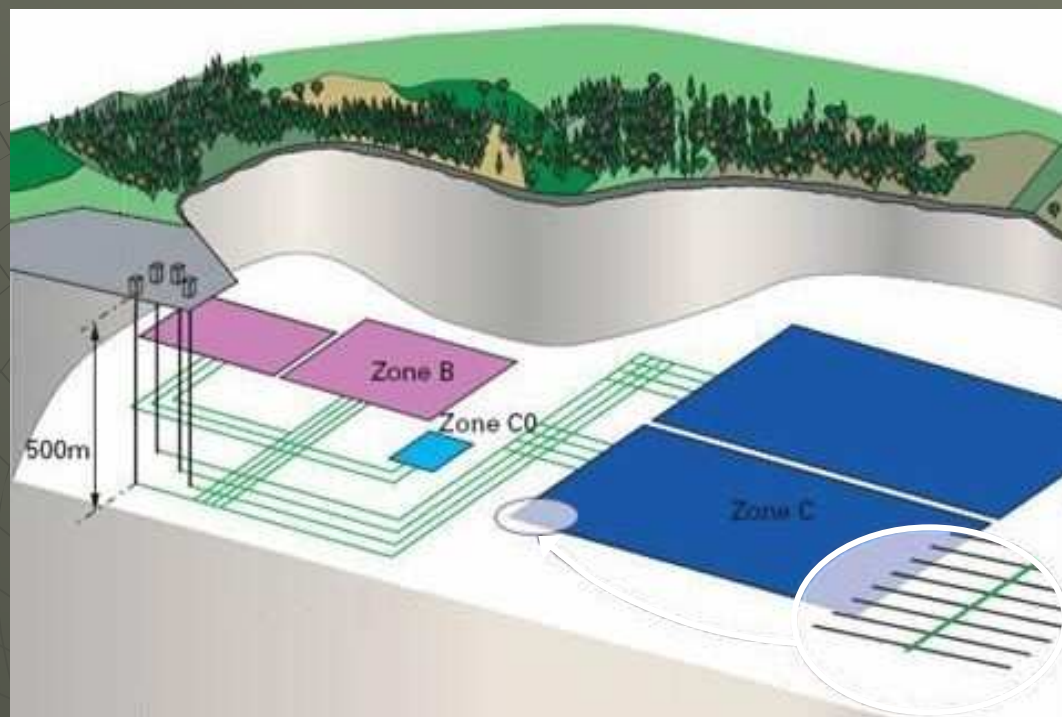
Ateliers R7 et T7 de la Hague

Vitrification des solutions de produits de fission

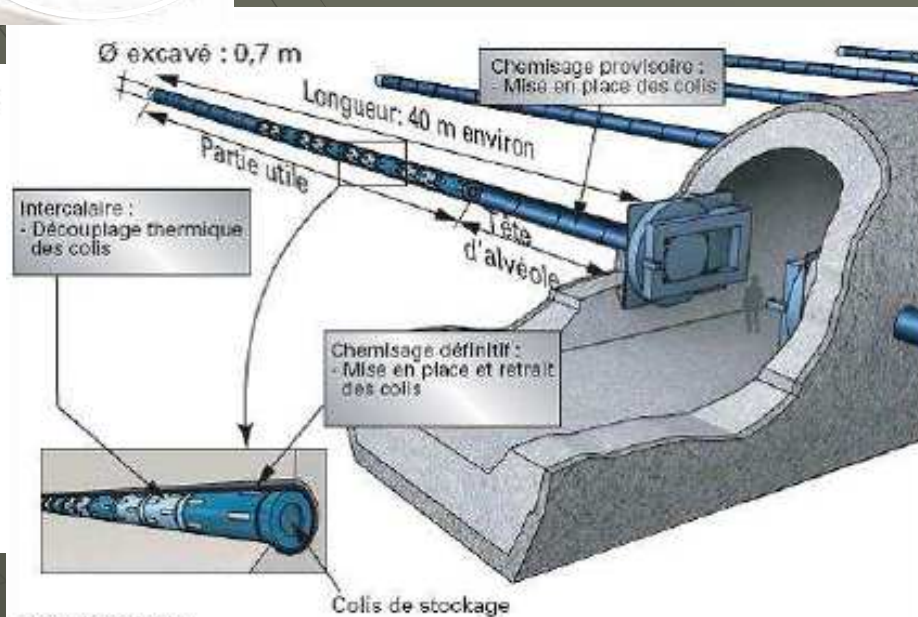
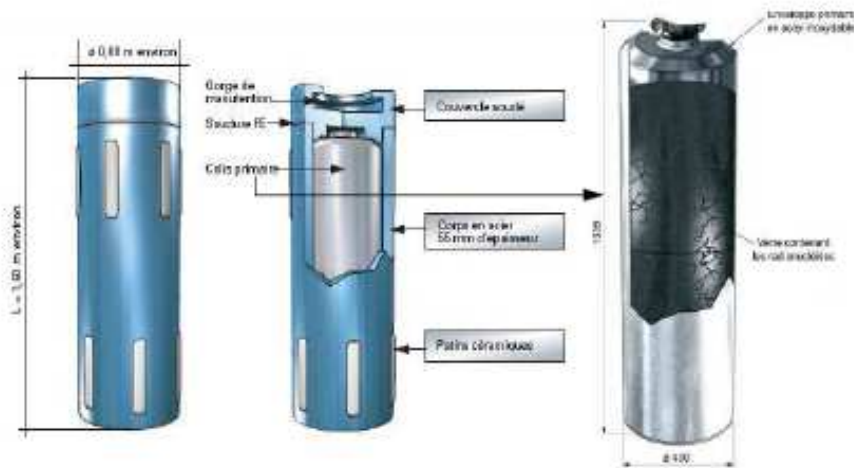


ex: verre R7T7 (La Hague) pour les solutions de PF issues du retraitement des combustibles des REP (UOX)

STOCKAGE GEOLOGIQUE



Gestion à long terme
des déchets nucléaires :
→ Loi Bataille (1991)
axe 2 : stockage profond (ANDRA)
- loi stockage 2006



Concept de barrières multiples

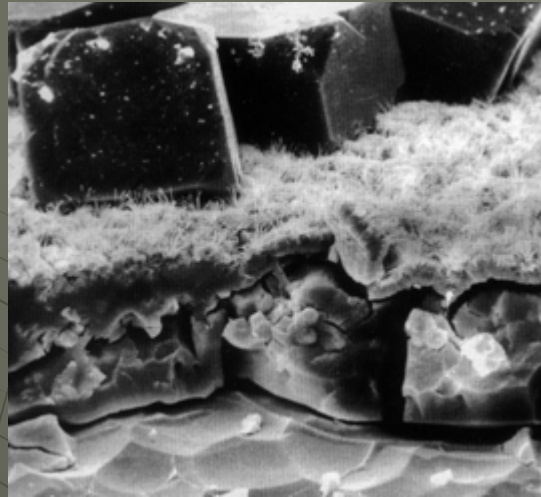
- **La matrice de confinement** (verre, céramique, béton bitumes).
- On peut ajouter un conteneur en acier dans le cas de déchets de haute activité.
- **La barrière ouvragée** qui est en général constituée de ciments et d'argiles associés dans la construction du site de stockage
- **Le milieu géologique** qui assurerait un dernier obstacle à la dissémination et qui doit empêcher l'arrivée des agents de corrosion notamment l'eau.

Le verre s'altère





Verre basaltique 1 Ma



Verre de confinement 10 000 a

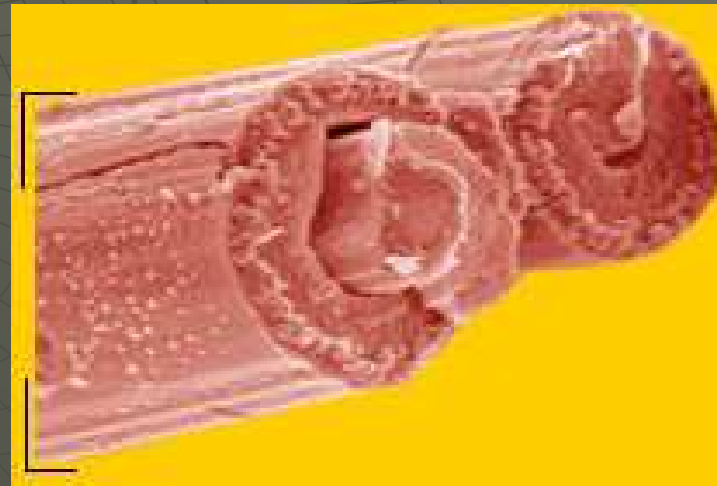


Église de Les Noés (10) :
vitrail (XVIe siècle) - LRMH

G. Libourel et al, *La Recherche*, 1994



Verre des îles Embiez
(Var), 300 ans ap. J.-C.
(Collab. CNRS-CEA)

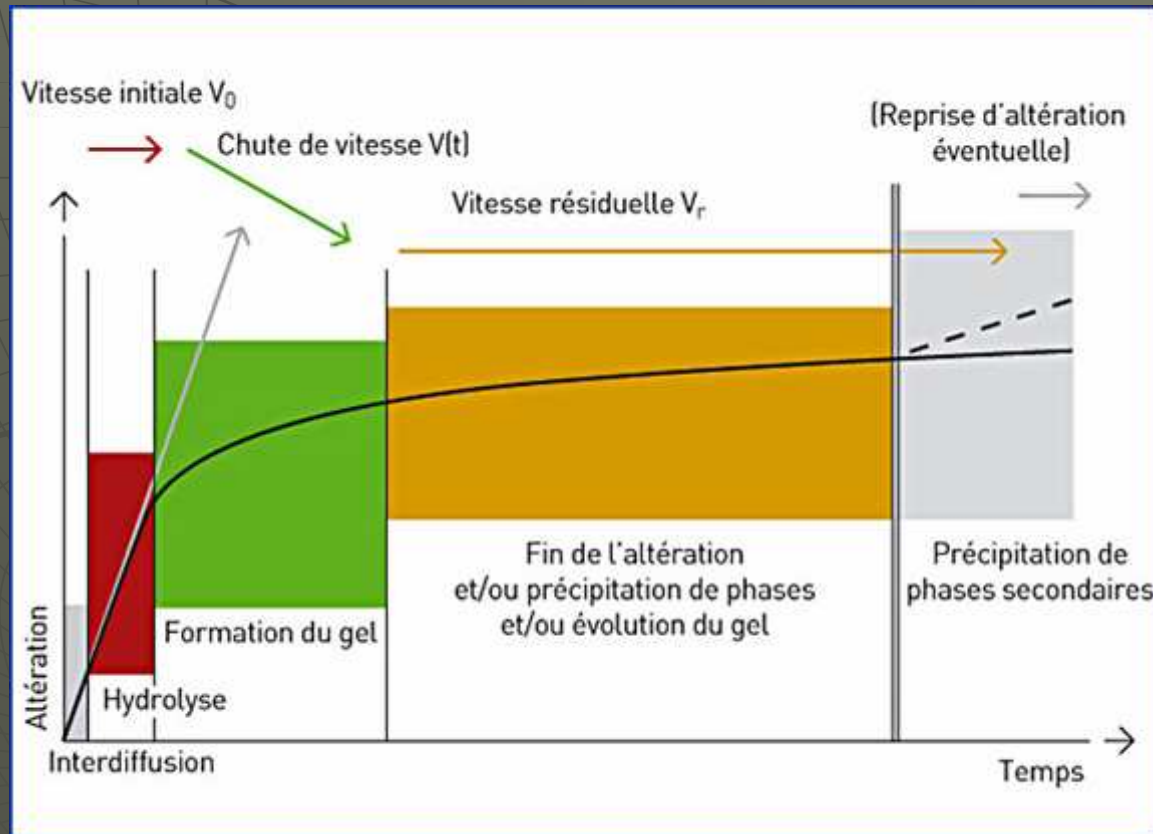


Fibres de verre
(< 40 j)

P. Lehuédé
(Saint-Gobain
Recherche)

ALTERATION DU VERRE EN EAU PURE

Altération du verre : mécanismes connus dans les grandes lignes



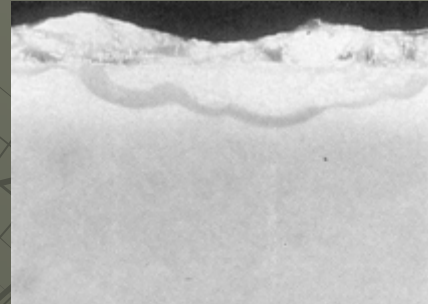
Influence de la chimie sur la cinétique de dissolution du verre ?
Quelle importance de la diffusion dans le gel ?
Rôle de la précipitation des phases secondaires ?

verres historiques

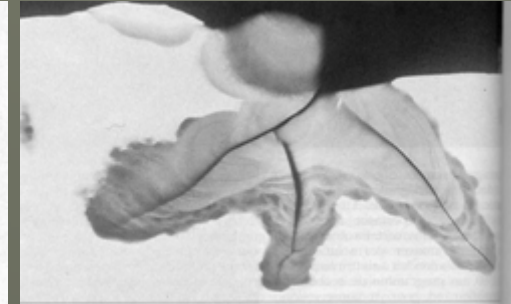


<http://www.lrmh.culture.fr>

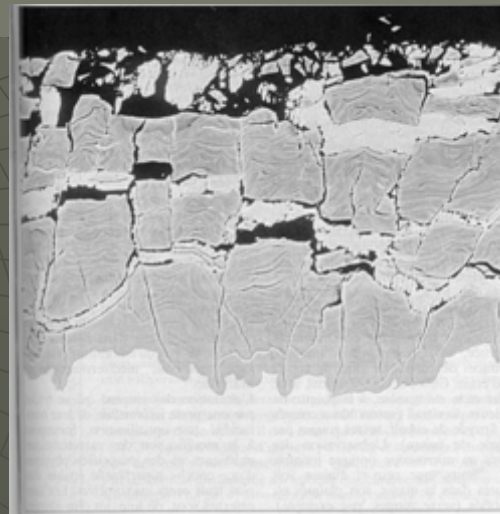
Jean-Marie BETTEMBOURG, et Jean-Jacques BURCK,



Stade I



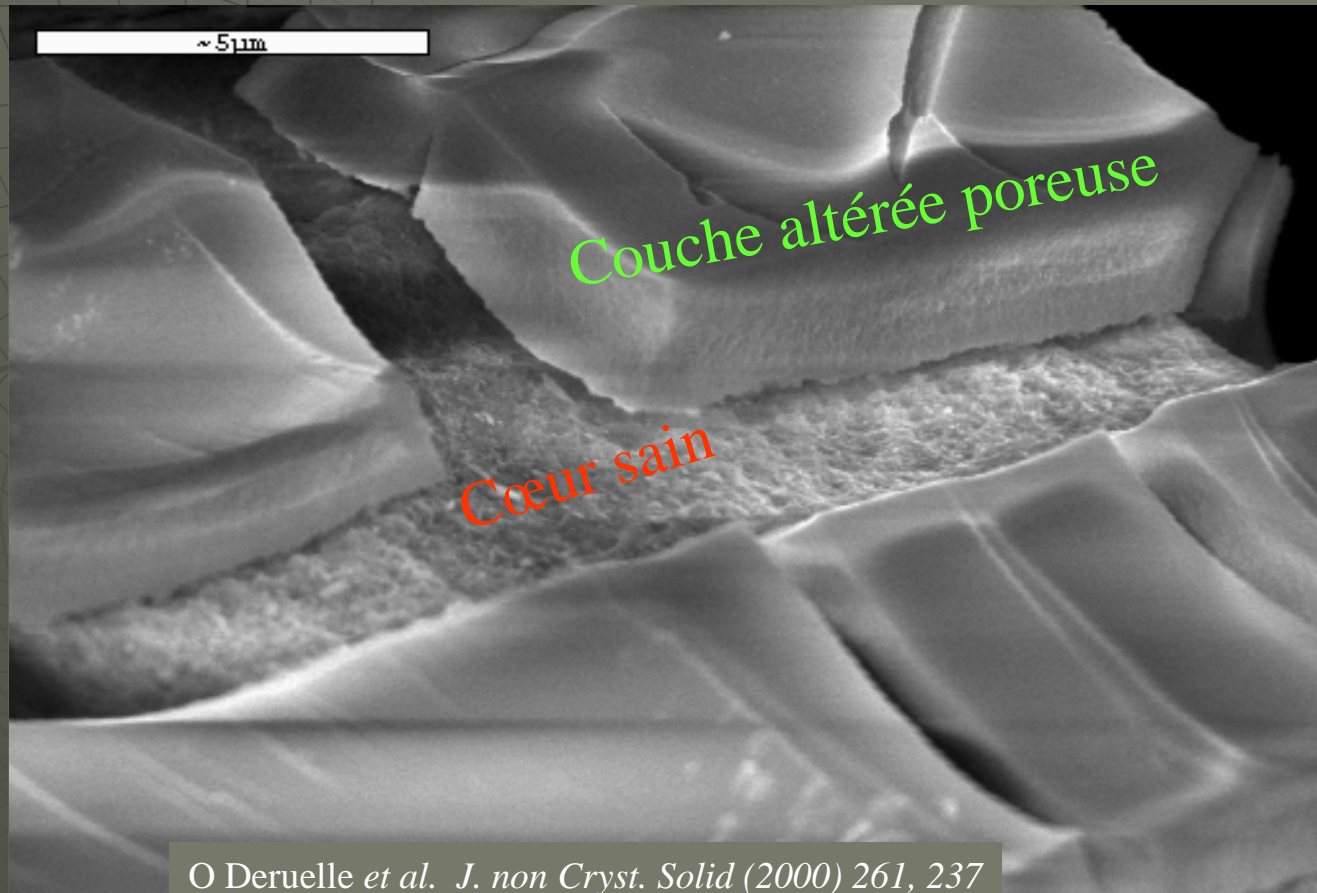
Stade II



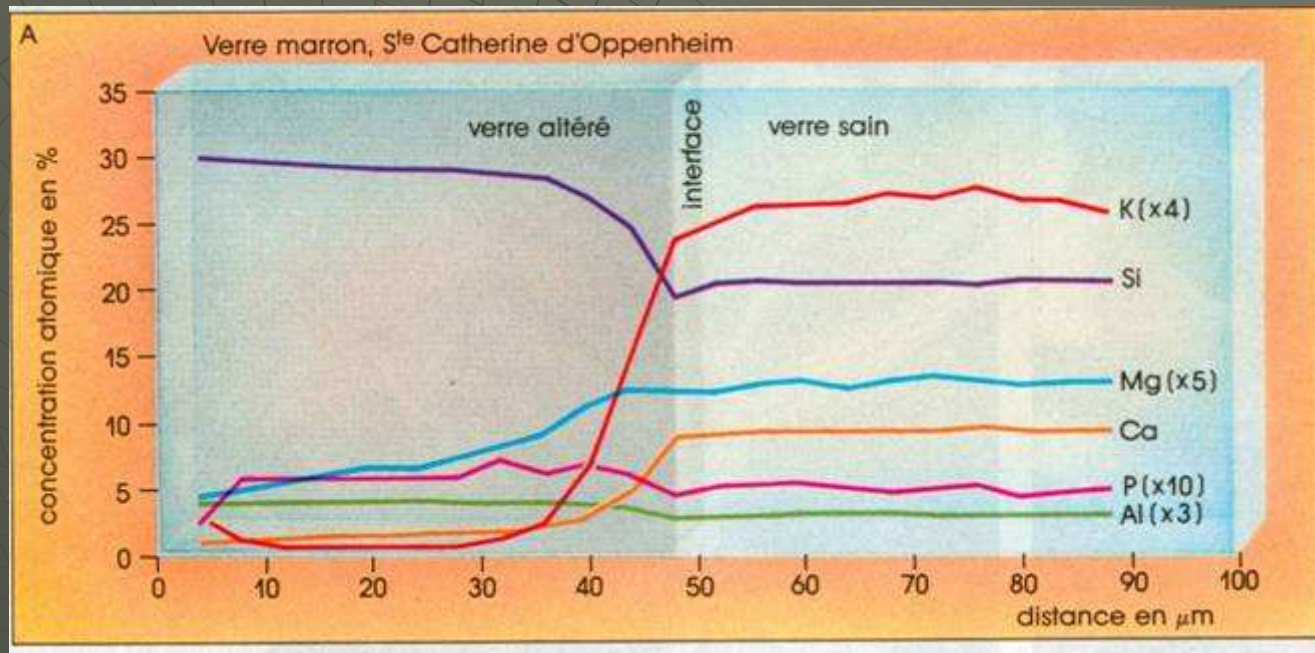
Stade III

Guy Libourel
La Recherche
Fev. 94

Altération 90°C sur poudre fine



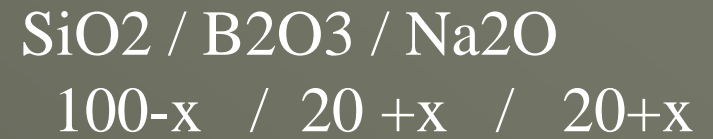
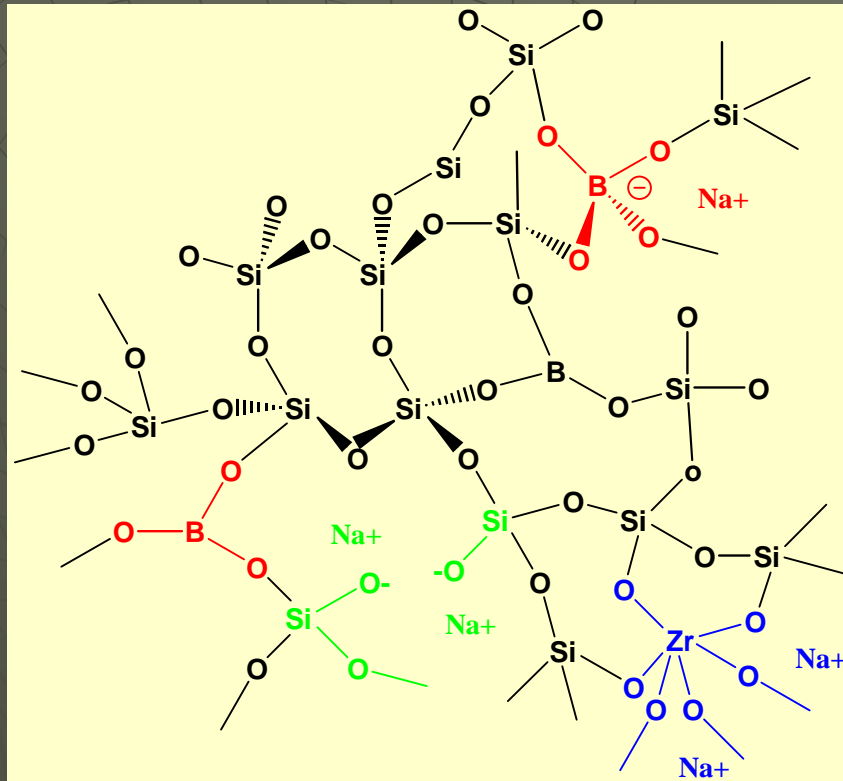
lixiviation



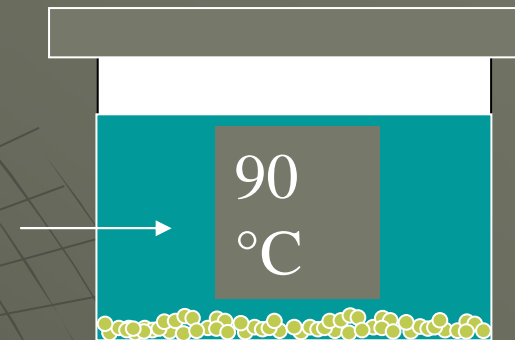
Perte des éléments solubles
pas de gradient de diffusion

Guy Libourel
La Recherche
Fev. 94

borosilicates



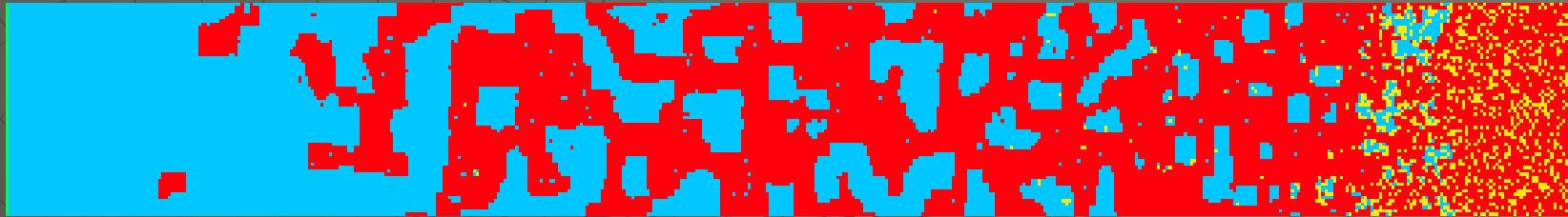
1 l



50-80 microns

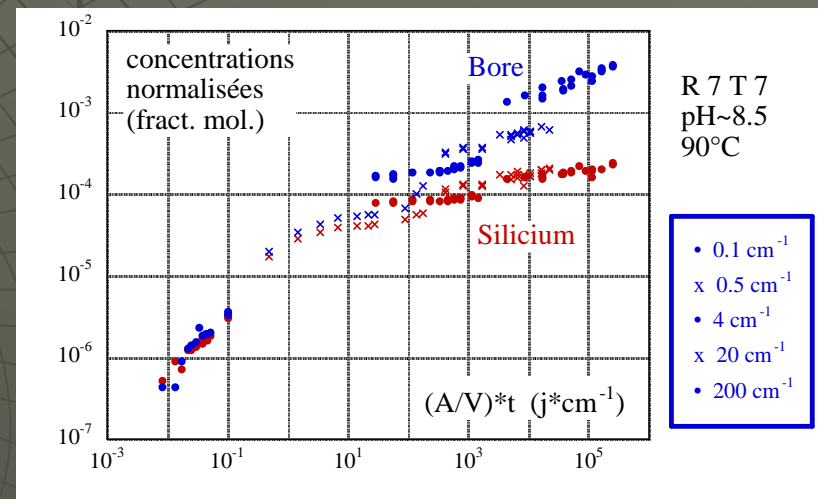
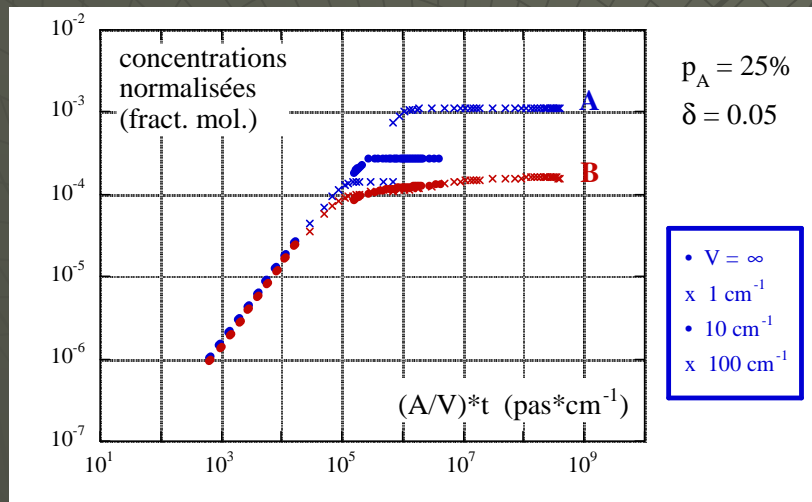
Formateur (Si, B) modificateurs (Na,Ca) durcisseurs Zr, Al
solubles (B, Na), partiellement (Si, Al) et non solubles (Zr)

modèles microscopiques



modèles

Experiences (R7T7, SON68)



F. Devreux et alii. J. non cryst. Solids (2004)

CONTEXTE GENERAL : LE STOCKAGE GEOLOGIQUE

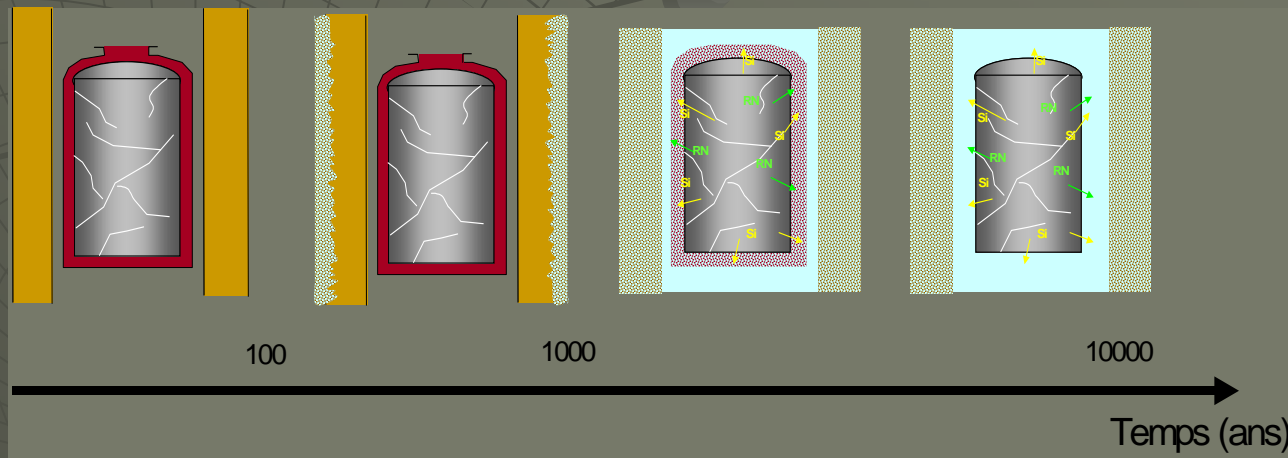
Scenario normal d'évolution :

0 fermeture du site

0-1000 ans disparition oxygène (FeS)/ Resaturation argile

0-- 4000 ans : processus de corrosion (acier faiblement allié et inox) dans l'argile

4000 – 100000? ans : altération de la matrice vitreuse et relachement des radionucléides



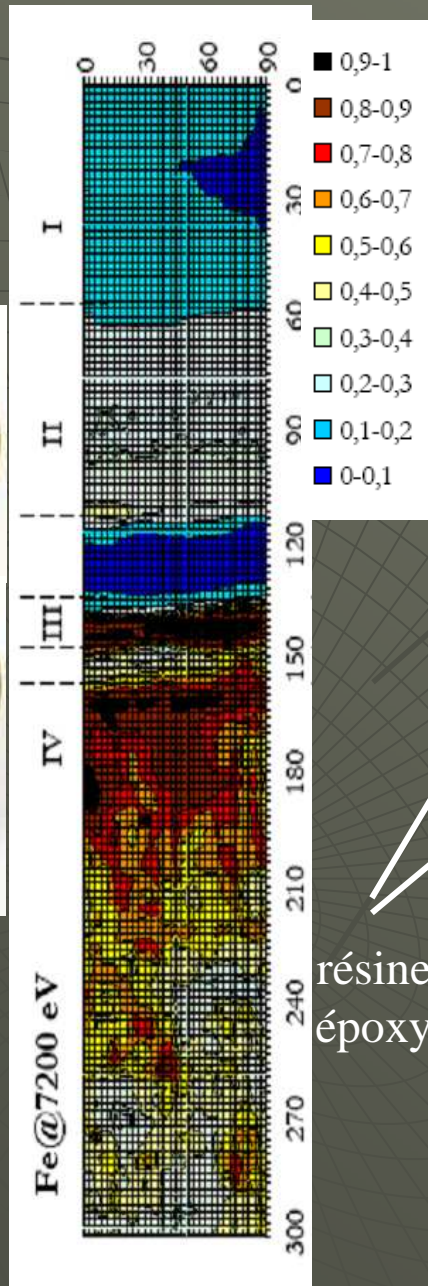
Évolution du champ proche pendant la corrosion ?

- interactions fer-argilite : nature des produits de corrosion
étendue de la zone transformée

Cinétique d'altération du verre dans ces conditions ?

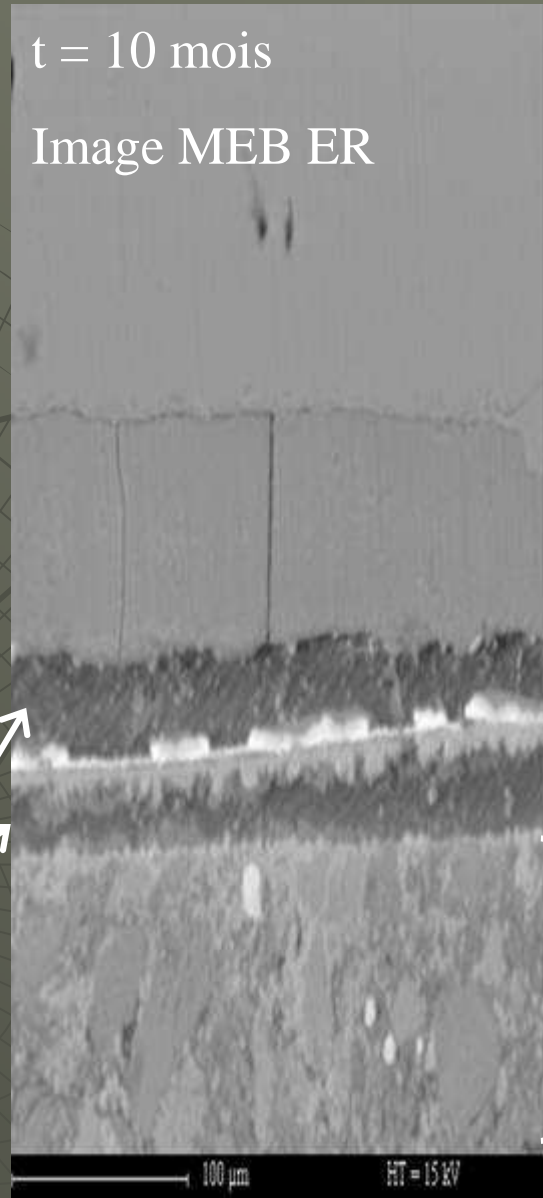
- interactions verre-fer-argilite : physico-chimie locale
interactions verre-environnement favorables ?
durabilité (matrice) et diffusion (RN)

MORPHOLOGIE DU PROFIL : SECTION POLIE



t = 10 mois

Image MEB ER



← verre sain

← couche de gel amorphe

← phases secondaires cristallisées

← couche dense de produits de corrosion

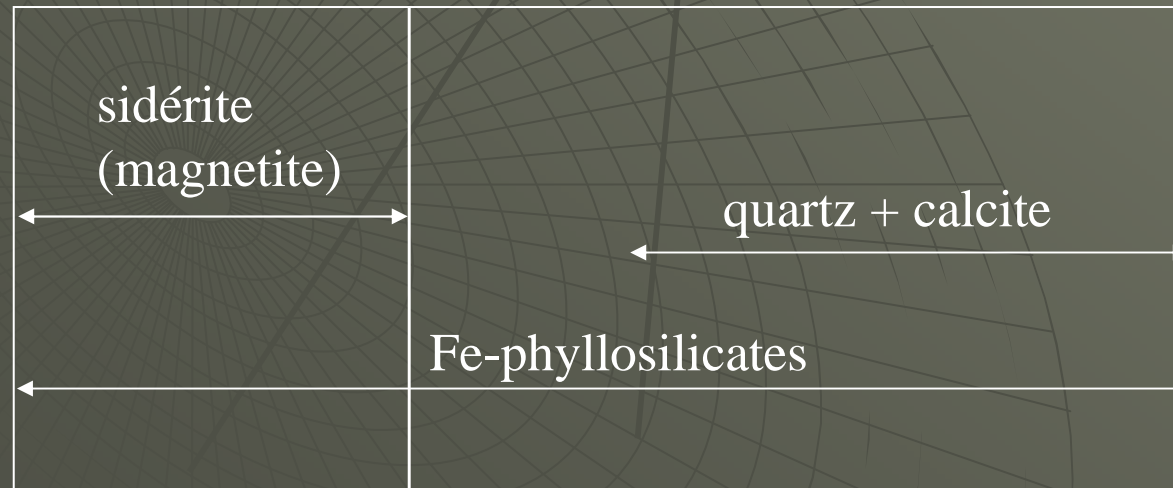
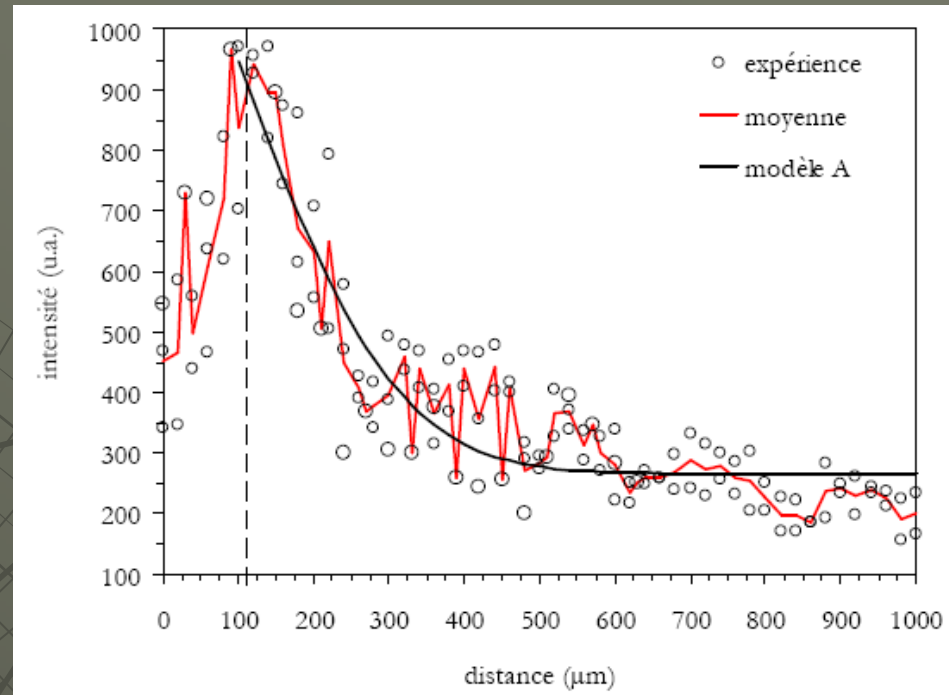
← argilite transformée interface fer-argilite

résine époxy


CONCLUSIONS : IDENTIFICATION DES ZONES

Corrosion du fer

$D_{app}(Fe) = 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$
10 000 ans \approx réaction sur 1 m

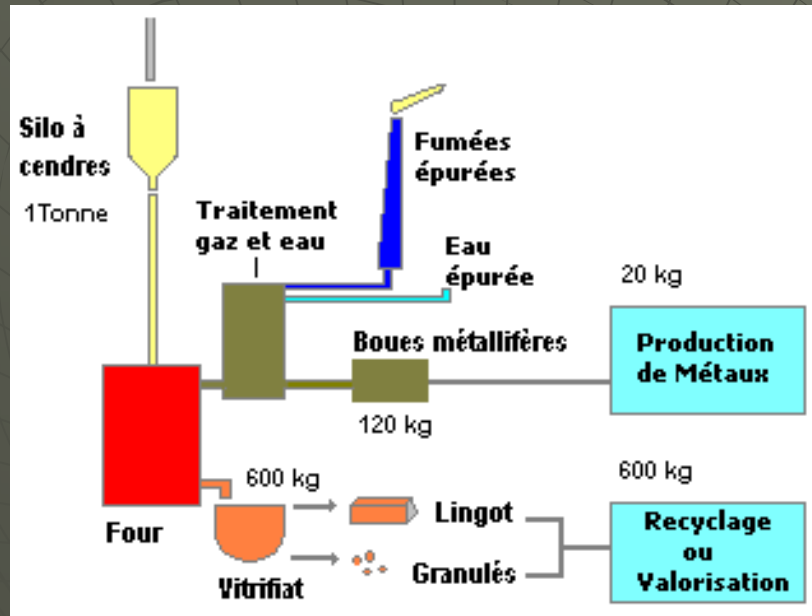


produits de corrosion argilite transformée

- 
- ◆ Principes du nucléaire
 - ◆ Cycle aval du nucléaire (déchets)
 - ◆ Cycle de vie des matériaux

REFIOM

Résidus d'Épuration des Fumées d'Incinération des Ordures Ménagères).



Métaux lourds etc



Source : **Le SYCTOM, l'Agence métropolitaine des déchets ménagers**

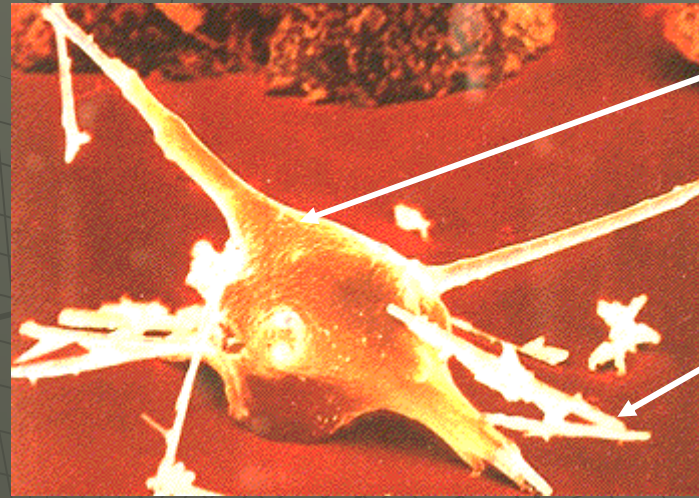
Surface du verre poreux



attaque bicarbonate de soude

A. Lyberis stage Saint Gobain Desjonquères

verres biosolubles



macrophage

fibre



intra-alvéoles: pH 7

intra-macrophage: 4.5

d'après Lehuédé et al. Saint Gobain Recherche

Effet du pH

Al

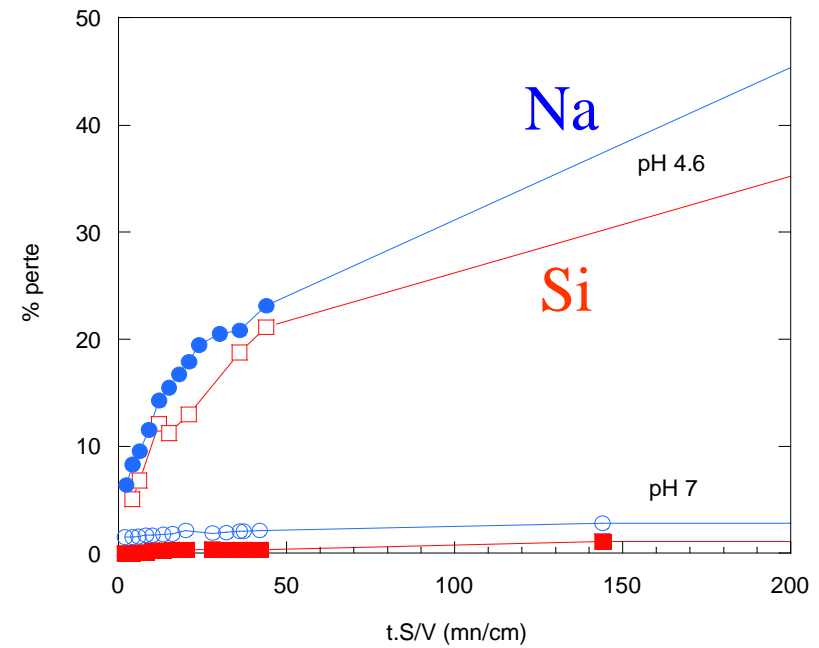
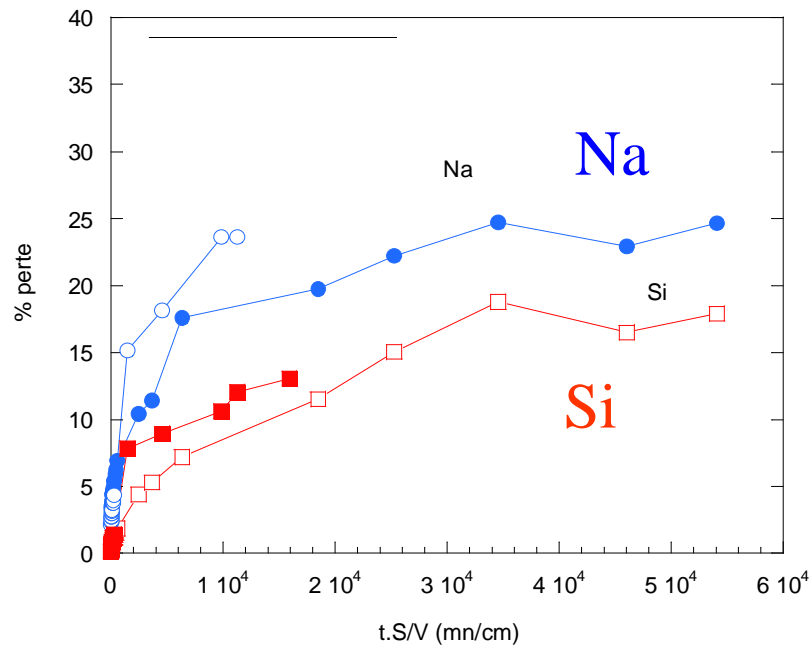
soluble à pH < 5
insoluble à pH 7

verre sans Al

verre riche en Al

TEL effet du pH

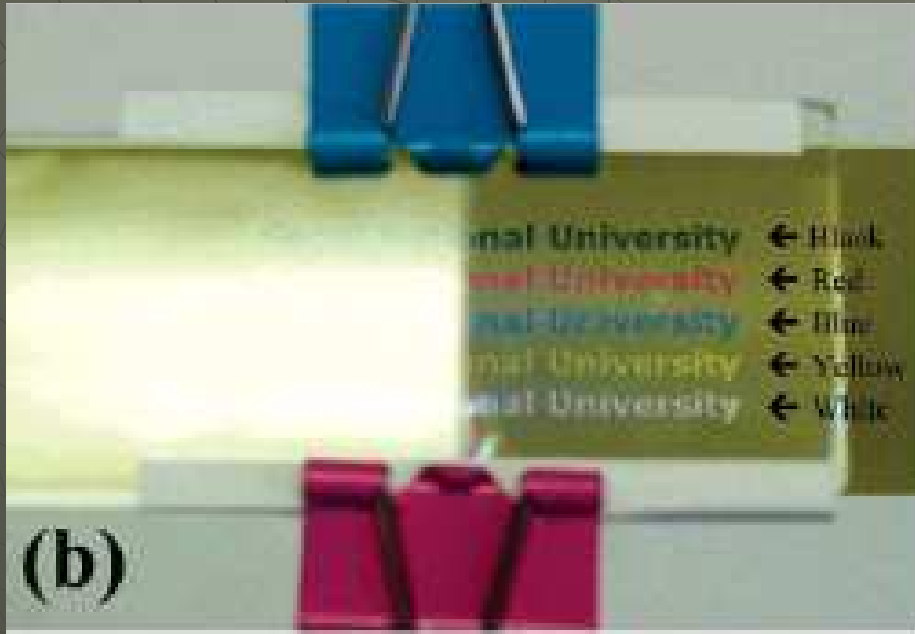
THA effet du pH



TEL

THA

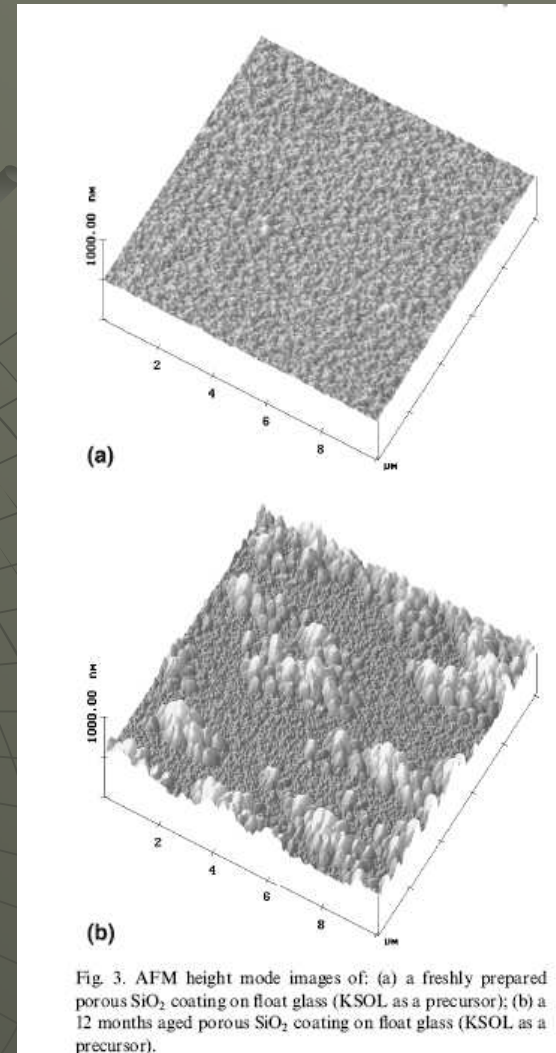
antireflection



Kim et al. Langmuir 2007

Photovoltaïque +8% rendement relatif

G. Hensch, / J.I of Non-Cryst. Solids 265 (2000) 193



neuf

vieilli

conclusion

Monde Durable: souci des générations futures

travail pluridisciplinaires CEA/ANDRA/équipes universitaires
prévoir sur une échelle de 100 000 ans de sûreté

Le coût du stockage des déchets est inventorié

Science du vieillissement multiéchelles/multi-interfaces

S. Gin *Les déchets Nucléaires, Quel avenir*, Dunod, Paris 2006

Le nucléaire expliqué par les physiciens, EDP Sciences, 2002

travail sur verre:

O. Spalla/L. Sicard CEA Saclay

A. Ledieu F. Devreux Polytechnique

G. De Combarieu/S. Gin/N. Godon CEA Marcoule

D. Caurant, O. Majerus ENSCP

Verre Fer Argile

M. Schlegel CEA Saclay

D. Vantelon Lucia -Soleil

transparents merci à
D. Caurant (ENSCP)
Documents CEA