

IRSNINSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Restitution des travaux du groupe de réflexion « Défense en profondeur tritium »

Sources de production et gestion du tritium produit par les installations nucléaires

RAPPORT DSU n°217

DIRECTION DE LA SURETE DES USINES, DES
LABORATOIRES, DES TRANSPORTS ET DES DECHETS

RESUME

Ce rapport synthétise les connaissances actuelles concernant le tritium, ses sources de production et son comportement dans les réacteurs et les installations nucléaires. Les rejets tritiés sous forme liquide et gazeuse ainsi que les procédés de séparation et de piégeage envisageables y sont abordés. Ce rapport apporte aussi des éléments de réflexion sur la gestion du tritium produit aujourd'hui par ces installations, tant en France qu'à l'étranger. Il présente un éclairage sur la pertinence des modes de gestion actuels des effluents et des déchets solides tritiés ainsi que des moyens associés pour réduire les rejets de tritium dans l'environnement.

ABSTRACT

This report synthesizes current knowledge of tritium, its sources of tritium and its behavior in reactors and nuclear facilities. In addition, liquid and gaseous tritiated releases and the processes of separation and possible trapping of this radionuclide are displayed. This report also provides elements of reflection on the management of tritium produced today by these facilities, both in France and abroad. It presents insights on the relevance of current management modes of tritiated liquid and solid waste and also on the associated measures to reduce releases of tritium into the environment.

MOTS-CLES

Tritium, déchets tritiés, installations nucléaires, sources, production, gestion, séparation, piégeage, conditionnement, stockage

TABLE DES MATIÈRES

1 INTRODUCTION	7
2 ORIGINES	7
2.1 LE TRITIUM D'ORIGINE NATUREL	7
2.2 LE TRITIUM D'ORIGINE ARTIFICIELLE	8
2.2.1 Les essais nucléaires atmosphériques	8
2.2.2 L'industrie nucléaire	8
2.2.2.1 Les réacteurs nucléaires de puissance	8
2.2.2.2 Les usines de traitement de combustibles usés	25
2.2.2.3 Réacteurs dédiés à la production de tritium et autres installations nucléaires	30
2.2.2.4 Sources industrielles et petits utilisateurs	33
2.2.2.5 Futures sources de production de tritium (ITER)	33
2.2.2.6 Inventaire des déchets tritiés	34
3 EVALUATION DES DIFFÉRENTES STRATÉGIES ET TECHNIQUES POSSIBLES DE GESTION DU TRITIUM	37
3.1 EVALUATION DES PROCÉDÉS DE SÉPARATION ET DE RÉCUPÉRATION DU TRITIUM	38
3.2 EVALUATION DES PROCÉDÉS D'IMMOBILISATION ET DE CONDITIONNEMENT	45
4 CONCLUSION GÉNÉRALE	47
RÉFÉRENCES	49

1 INTRODUCTION

Le tritium est présent en permanence à l'état naturel dans l'environnement ; les quantités observées ont toutefois fortement augmenté en raison des essais d'armes thermonucléaires dans l'atmosphère et du développement de l'énergie nucléaire. Aujourd'hui, c'est l'un des principaux radionucléides rejetés dans l'environnement par les installations nucléaires (principalement les réacteurs nucléaires et les usines de traitement de combustibles usés) en fonctionnement normal. En effet, contrairement à la plupart des autres radionucléides produits par ces installations, dont les activités rejetées ont fortement diminué durant les 20 dernières années, et compte tenu des difficultés, dans l'état actuel des technologies disponibles, pour séparer et piéger le tritium, celui-ci est généralement rejeté en totalité. Toutefois, malgré la dominance de ce radionucléide dans les effluents rejetés par ces installations, les doses qui lui sont imputables sont en général très faibles, compte tenu de son comportement particulier dans l'environnement (forte mobilité sous forme d'eau tritiée et dilution en relation avec le cycle de l'eau, absence de bioaccumulation par la voie alimentaire) et de son faible coefficient de dose efficace en rapport avec son émission bêta de faible énergie et sa biocinétique (faible radiotoxicité).

Certaines publications récentes (rapports RIFE, AGIR 2007...) vont dans le sens d'une remise en cause de l'appréciation du caractère faiblement radiotoxique du tritium et de sa non-propension à s'accumuler dans les composés environnementaux et les organismes. En outre, des demandes de renouvellement d'autorisation de rejets et de prélèvements d'eau pour les CNPE d'EDF, intégrant une augmentation des limites de rejets en tritium liée à l'évolution des gestions de combustibles, sont formulées depuis quelques années et de nouvelles installations (ITER) seront amenées à produire du tritium en grande quantité dans les prochaines années. Dans ce contexte, il est apparu utile de réaliser un état des lieux des connaissances relatives :

- aux sources de production de tritium et à son comportement dans les installations nucléaires actuelles et les installations futures ;
- aux rejets de ce radionucléide sous forme liquide et gazeuse et à l'impact dosimétrique associé ;
- aux modes de gestion mis en œuvre actuellement ou envisageables pour ce radionucléide, tenant compte des possibilités de traitement et de réduction à la source.

Cet article a pour objectif de synthétiser ces connaissances, tout en ne recherchant pas l'exhaustivité, et d'apporter quelques éléments de réflexion sur la gestion du tritium produit aujourd'hui par les installations nucléaires, tant en France qu'à l'étranger. Il apporte en particulier un éclairage sur la pertinence des modes de gestion actuels des effluents et déchets solides tritiés et, corrélativement, sur l'intérêt et les moyens de réduire les rejets de ce radionucléide dans l'environnement.

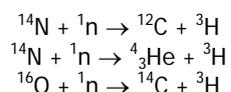
2 ORIGINES

En préambule, on rappellera que les quantités de tritium sont exprimées, soit en activité (Becquerel et multiples allant jusqu'au PetaBecquerel (10^{15} Bq) et ExaBecquerel (10^{18} Bq)), soit en grammes. Un gramme de tritium équivaut à une activité de $3,58 \cdot 10^{14}$ Bq (0,358 PBq).

Le tritium a deux origines, naturelle et anthropique, c'est-à-dire produit par les activités humaines.

2.1 LE TRITIUM D'ORIGINE NATUREL

Bien que sa période radioactive soit courte (12,3 ans), le tritium est présent en permanence à l'état naturel dans l'environnement. Celui-ci est produit naturellement principalement par l'action des neutrons émis par le rayonnement cosmique sur l'azote et l'oxygène de l'air :



La production tellurique, par activation neutronique sur le lithium 6, est extrêmement faible devant la production atmosphérique.

Environ 99 % du tritium est transformé en eau tritiée et suit le cycle normal de l'eau, de la haute atmosphère jusqu'à la mer. L'UNSCEAR [1] évalue l'inventaire global du tritium naturel à environ 1 300 PBq (soit 3,5 kg), ce qui correspond à une production annuelle comprise entre 50 et 70 PBq (soit entre 0,15 et 0,2 kg), en supposant que la production équilibre la décroissance radioactive.

2.2 LE TRITIUM D'ORIGINE ARTIFICIELLE

Le tritium d'origine artificielle provient principalement des essais nucléaires aériens, de l'industrie nucléaire (réacteurs nucléaires et usines de traitement de combustibles usés) et, pour une moindre part, d'autres activités industrielles (peintures luminescentes, recherches en biologie et pharmacie...).

2.2.1 LES ESSAIS NUCLÉAIRES ATMOSPHÉRIQUES

La part prédominante du tritium dans l'environnement résulte des essais nucléaires atmosphériques réalisés principalement entre 1945 et 1963. L'énergie libérée par l'ensemble des 520 tests réalisés durant cette période est de l'ordre de 520 Mt (dont 217 et 328 Mt pour les engins respectivement à fission et fusion thermonucléaire). Ces essais ont libéré au total environ 240 EBq de tritium (soit plus de 650 kg) répartis pour les trois quarts dans l'hémisphère Nord et pour le quart restant dans l'hémisphère Sud, les taux de production de tritium rapportés à l'unité d'énergie étant de l'ordre de 0,026 et 740 PBq.Mt⁻¹, respectivement pour la fission et la fusion [2]. Les quantités de tritium rejetées dans l'atmosphère liées aux essais souterrains sont négligeables devant celles issues des essais atmosphériques. Du fait de l'arrêt des tirs aériens et de la décroissance radioactive du tritium, il reste actuellement de l'ordre de 30 kg répartis pour la plus grande partie dans les océans, ainsi que dans les eaux continentales et l'atmosphère, sous forme d'eau tritiée.

Avant les essais atmosphériques, les activités volumiques dans les eaux de pluie, les fleuves et les océans étaient respectivement de 0,6 Bq.L⁻¹, 0,3-0,8 Bq.L⁻¹ et inférieur à 0,1 Bq.L⁻¹. L'activité de l'eau de pluie a atteint 150 Bq.L⁻¹ en 1963 dans l'hémisphère Nord et a décliné considérablement depuis (de l'ordre du Bq.L⁻¹ actuellement).

2.2.2 L'INDUSTRIE NUCLÉAIRE

Les réacteurs nucléaires et les usines de traitement de combustibles usés (principalement les sites de La Hague, Sellafield, Tokai-Mura et Rokkasho-Mura) constituent les principales sources d'émissions de tritium dans l'environnement. La plupart de ces installations étant situées en bord de mer, de fleuve ou de rivière, ces rejets s'effectuent essentiellement par voie liquide. Les quantités de tritium rejetées dépendent toutefois du type de réacteur nucléaire et de la quantité d'énergie fournie, ainsi que des procédés mis en œuvre pour les autres types d'installations nucléaires.

En fonction des informations disponibles, seront abordés successivement, pour chaque type d'installation, les sources de production de tritium (directes et indirectes) et les paramètres influant sur cette production, le comportement spécifique de ce radionucléide, les stratégies de gestion adoptées, les niveaux des rejets de tritium par voies liquide et gazeuse et l'impact dosimétrique associé. Les aspects réglementaires seront également succinctement abordés.

2.2.2.1 Les réacteurs nucléaires de puissance

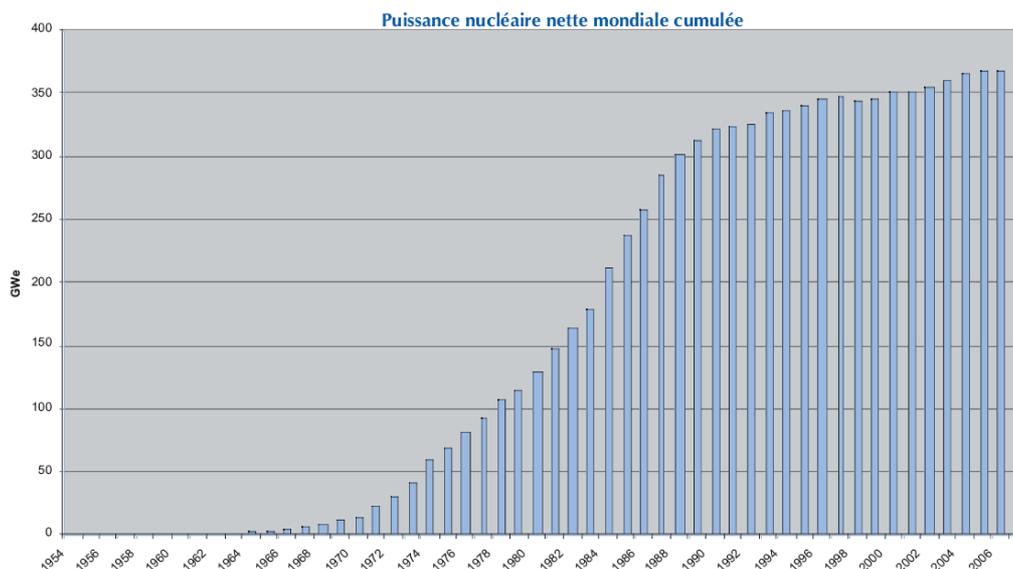
Les caractéristiques principales des filières électronucléaires sont rappelées dans le tableau ci-dessous.

Caractéristiques principales des filières électronucléaires
Main characteristics of reactor types

FILIÈRES REGROUPÉES reactor type groups	FILIÈRE type	CALOPORTEUR coolant	MODÉRATEUR moderator	COMBUSTIBLE fuel	
GRAPHITE-GAZ gas-graphite	AGR	CO ₂	ADVANCED GAS COOLED	UO ₂ ENRICH enriched UO ₂ U NATUREL natural U UO ₂ , UC ₂ , ThO ₂ ...	
	MGUNGG	CO ₂	MAGNOX GAS COOLED		
	HTR (GT-MHR, PBMR)	He	HIGH TEMPERATURE		
EAU LOURDE heavy water	PHWR	EAU LOURDE heavy water	SOUS PRESSION pressurized	EAU LOURDE heavy water	UO ₂ NATUREL OU ENRICH natural or enriched UO ₂
EAU ORDINAIRE light water	BWR (ABWR)	EAU ORDINAIRE light water	BOUILLANTE boiling	EAU ORDINAIRE light water	UO ₂ ENRICH enriched UO ₂ OU UO ₂ ENRICH ET MOX or enriched UO ₂ and MOX
	PWR (APWR, WWER)	EAU ORDINAIRE light water	SOUS PRESSION pressurized		
NEUTRONS RAPIDES fast reactor	SURGENERATEUR breeder	SODIUM sodium			UO ₂ ENRICH-PuO ₂ enriched UO ₂ -PuO ₂
EAU-GRAPHITE water-graphite	RBMK (LWGR)	EAU ORDINAIRE light water	BOUILLANTE boiling	GRAPHITE	UO ₂ ENRICH enriched UO ₂
EAU ORDINAIRE-EAU LOURDE light water-heavy water	HWLWR (ATR)	EAU ORDINAIRE light water	BOUILLANTE boiling	EAU LOURDE heavy water	UO ₂ ENRICH-PuO ₂ enriched UO ₂ -PuO ₂

ABWR, APWR, GT-MHR, PBMR : MODELES AVANCES DE REACTEUR (Advanced reactor type).

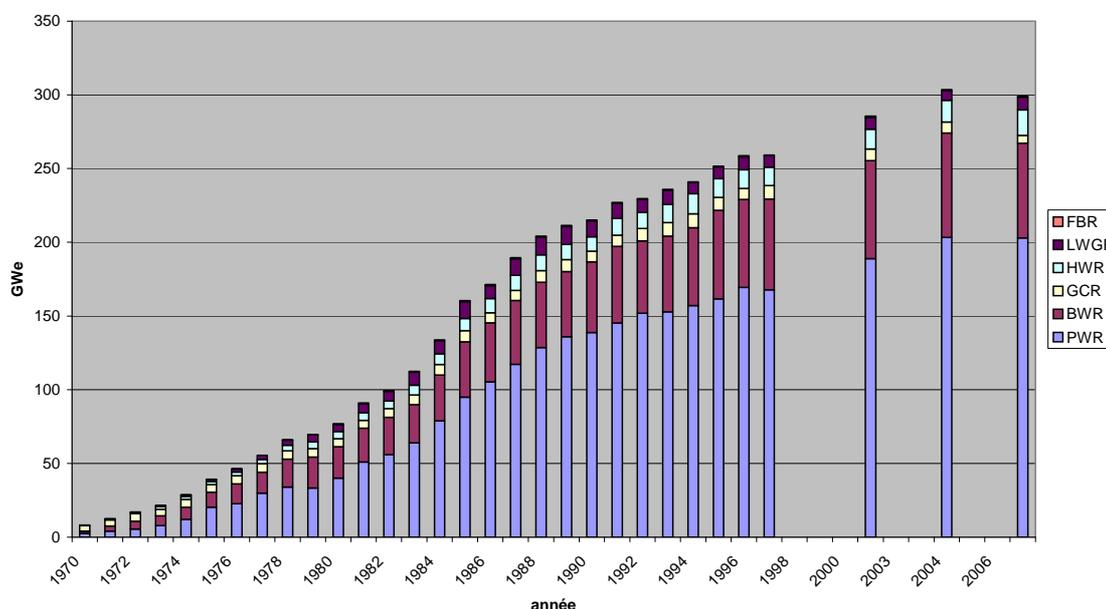
L'évolution de la production nette mondiale d'électricité nucléaire de 1954 à 2007 est présentée sur le graphe ci-dessous. En 2007, la puissance nette totale des 439 réacteurs connectés au réseau s'élevait à environ 372 GWe. Elle s'est accrue de 0,9% par rapport à 2006, à comparer à une croissance annuelle mondiale moyenne du parc sur les dix dernières années de 0,7% par an.



L'évolution mondiale annuelle de la puissance nucléaire nette mondiale produite par type de réacteur est représentée sur le graphe ci-dessous [3].

Sur les dernières années, les réacteurs des filières PWR, BWR, LWGR, HWR, GCR et FBR ont contribué en moyenne respectivement à environ 65, 20, 10, 5, 3 et 1 % de la production nette mondiale d'électricité nucléaire.

Evolution annuelle de la puissance nucléaire nette mondiale produite par type de réacteur



Pour tous les types de réacteurs de puissance, à l'exception des réacteurs à eau lourde, le mécanisme prédominant de production de tritium est la fission ternaire des isotopes fissiles de l'uranium et du plutonium dans le combustible¹. Les taux de production par fission sont similaires pour tous les types de réacteurs à neutrons

¹ Les fissions des noyaux d'uranium et de plutonium conduisent généralement à la formation de deux noyaux de produits de fission, de neutrons entretenant la réaction en chaîne et d'un dégagement d'énergie (de l'ordre de 200 MeV). Toutefois, dans un cas sur 10 000 environ, la fission conduit à la formation de trois noyaux, dont un noyau léger parmi lesquels le tritium (fission ternaire directe) et l'hélium-6 (noyau alpha) qui, par capture neutronique suivie d'une désintégration, conduit à la formation de

thermiques et sont de l'ordre de $520 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$. Le taux de production dans les réacteurs à neutrons rapides est par contre un peu plus important, de l'ordre de $740 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$, compte tenu des rendements de fission ternaire différents pour les isotopes de l'U et du Pu en spectre de neutrons rapides [4][5][6]. Selon le type de réacteur et le type de gainage, une partie plus ou moins importante du tritium formé par fission dans le combustible peut diffuser dans le fluide primaire (eau, gaz ou sodium). Ainsi, contrairement aux réacteurs FBR fonctionnant au sodium, la contribution du combustible à la contamination en tritium du circuit primaire demeure très faible pour les réacteurs à eau légère et les réacteurs à eau lourde (cf. ci-après).

Les autres sources importantes de production de tritium dans les réacteurs nucléaires sont les réactions neutroniques avec certains isotopes du lithium et du bore présents en solution dans le fluide caloporteur primaire des réacteurs à eau ordinaire, avec le deutérium présent en concentration naturelle dans le fluide primaire de ces mêmes réacteurs ou contenu dans l'eau lourde des circuits modérateur et caloporteur des réacteurs à eau lourde ou encore avec le lithium présent en tant qu'impuretés dans le graphite modérateur des réacteurs graphite-gaz.

Ainsi, tout ou partie du tritium produit dans le circuit primaire des réacteurs nucléaires (source directe) ou diffusant dans ce circuit (source indirecte) se retrouve dans les effluents produits et est, selon le mode de gestion retenu, soit récupéré pour valorisation (cas des réacteurs à eau lourde), soit intégralement rejeté sous forme d'effluents liquides (cas des réacteurs PWR).

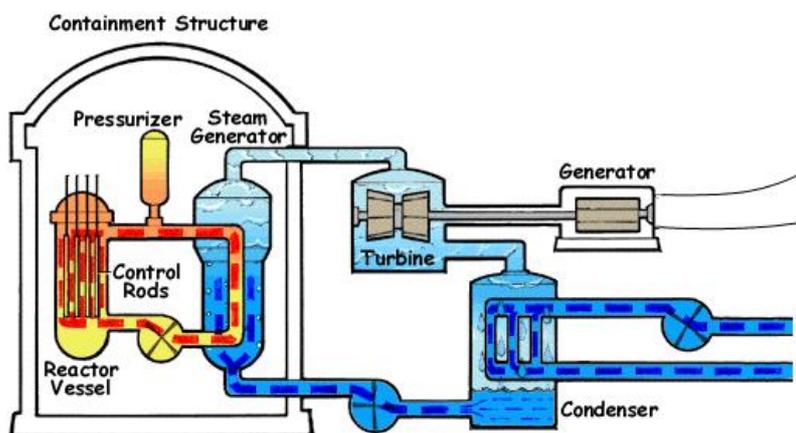
Les taux de production, les mécanismes d'émission et les rejets normalisés en tritium sont abordés ci-après de manière plus détaillée par type de réacteur.

Les réacteurs à eau sous pression (PWR)

A la fin 2007, 265 réacteurs PWR de capacité nette totale de 243,5 GWe étaient connectés au réseau à travers le monde [3].

Dans un réacteur nucléaire à eau sous pression (PWR), l'eau joue à la fois le rôle de caloporteur et de modérateur. Le circuit primaire (300 °C, 150 bar) est séparé du circuit secondaire, ce dernier alimentant la turbine en vapeur.

Schéma simplifié d'un réacteur PWR



Les données chiffrées et les modes de gestion du tritium décrits ci-après correspondent aux différents paliers des centres nucléaires de production d'électricité (CNPE) d'EDF [7][8].

Dans ce type de réacteur, les sources de production de tritium ont deux origines :

- les sources « directes » pour lesquelles le tritium est produit directement dans le fluide caloporteur par les réactions nucléaires sur les produits chimiques de conditionnement du circuit primaire (bore et lithium²), ainsi que sur le deutérium et les impuretés contenues dans l'eau du circuit primaire.

tritium (fission ternaire indirecte). L'occurrence de la formation d'un noyau de tritium lors d'une fission ternaire est exprimée par un rendement de fission ternaire γ_T . Ce rendement est différent pour chaque noyau fissile.

² Le bore est introduit dans le circuit primaire sous forme d'acide borique pour le contrôle de la réactivité du réacteur. Le lithium est introduit dans le fluide primaire sous forme de lithine pour contrôler le pH et minimiser les risques de corrosion des structures internes du réacteur et les risques de dépôts de produits de corrosion sur le combustible (« crud »).

Les réactions d'activation neutronique sur le bore ^{10}B , et dans une moindre mesure sur le lithium ^6Li , constituent la source principale de production de tritium dans l'eau du circuit primaire. Le taux de production de tritium est ainsi de l'ordre de $37 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ [4][9], le bore ^{10}B et le lithium ^6Li contribuant respectivement pour environ 85 et 15 % du tritium produit dans le fluide primaire (le lithium ^7Li et le deutérium contribuent pour moins de 1 %). Il faut noter que, selon la puissance du réacteur et le mode de gestion du combustible, la production de tritium, par cette voie, peut atteindre une valeur proche de $50 \text{ TBq.an}^{-1}.\text{tranche}^{-1}$ (cf. ci-après) ;

- les sources « indirectes » pour lesquelles il existe des barrières physiques isolant le tritium du fluide caloporteur.

Elles ont pour origine les réactions de fission tertiaire se produisant au sein du combustible et les réactions d'activation neutronique sur le bore ^{10}B présent dans les barres de contrôle, sur l'hélium de mise en pression des crayons combustibles et sur le béryllium des grappes sources secondaires. Par exemple, dans le cas particulier des barres de commande, la production de tritium est fonction de la durée d'irradiation (de l'ordre de $1\,700 \text{ GBq.GWe}^{-1}$ pour les paliers 1300 MWe et 1450 MWe d'EDF et pour une durée de vie des barres équivalente à 15 cycles d'irradiation), mais sa diffusion dans le circuit primaire reste très faible.

Les réactions de fission dans le combustible constituent la principale source de production de tritium (environ $520 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ - cf. ci-avant), mais celui-ci reste confiné dans le combustible grâce aux gainages en alliage de zirconium (zircaloy-4, M5) des crayons combustibles, le tritium ayant une très forte affinité pour le zirconium et diffusant très faiblement à travers l'oxyde formé en surface de la gaine⁵ (taux de sortie d'environ 10^{-2} TBq par cycle, ce qui représente moins de 0,01 % du tritium rejeté par voie liquide par les centrales nucléaires). Ainsi, près de 50 % du tritium formé dans le combustible reste occlus dans les gaines, le reste restant piégé dans l'oxyde irradié. Toutefois, des études récentes semblent montrer que ce taux est vraisemblablement fonction des conditions d'irradiation du combustible en réacteur (cf. ci-après).

Le tritium peut néanmoins être relâché dans le fluide primaire avec du combustible en cas de ruptures de gaine (principalement liées à des défauts de fabrication, des phénomènes de fatigue vibratoire ou à la présence de corps étrangers). Selon EDF, cette contribution ne dépasse pas quelques TBq par an et par tranche (celle-ci est fonction du nombre de crayons défectueux et de leur taux de combustion), ce qui correspond à moins de 1 % de la quantité de tritium formée dans le combustible.

Par ailleurs, pour ce qui concerne le parc EDF, les réacteurs des paliers 1300 MWe et 1450 MWe comportent des grappes sources secondaires⁶ qui sont à l'origine d'une production supplémentaire de tritium dans le circuit primaire variant de 4 à 12 TBq par an et par tranche (soit environ $10 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$), correspondant à une production supplémentaire de 20 à 40 %, selon la durée d'irradiation des grappes.

Ainsi, c'est principalement le tritium produit dans l'eau du circuit primaire et essentiellement lié au conditionnement chimique de ce circuit qui se retrouve dans les effluents liquides et gazeux⁷, la quantité de tritium produite étant directement fonction de la quantité d'énergie fournie par le réacteur. Comme évoqué précédemment, celui-ci est rejeté dans l'environnement compte tenu de son faible impact radiologique et en l'absence de procédé industriel permettant de récupérer le tritium présent dans les effluents radioactifs liquides des centrales⁸, compte tenu notamment de leur très faible activité volumique et de leur volume très important (respectivement de l'ordre de 10^6 Bq.L^{-1} et de $10\,000$ à $12\,000 \text{ m}^3.\text{tranche}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en moyenne pour l'ensemble du parc).

³ Réaction de capture $^{10}\text{B}(n, 2\alpha) \rightarrow ^3\text{H}$

⁴ Réaction de capture $^6\text{Li}(n, \alpha) \rightarrow ^3\text{H}$

⁵ Dans les conditions de pression et de température régnant dans le circuit primaire, une fraction du tritium formé dans le combustible diffuse dans la gaine, la couche d'oxyde interne (ZrO_2), formée à l'interface pastille-gaine, limitant son transfert dans l'épaisseur de la gaine et la couche d'oxyde externe limitant son relâchement dans le circuit primaire. Lors du déchargement du combustible du réacteur et de son entreposage en piscine de désactivation, le tritium piégé dans la gaine sous forme de gaz dissous en limite de solubilité précipite sous forme d'hydrure (ZrH_2).

⁶ Les grappes sources secondaires, constituées d'un mélange antimoine-béryllium fritté particulièrement tritigène sous flux neutronique, sont gainées par de l'acier inoxydable, cet acier étant très perméable au tritium dans les gammes de températures de fonctionnement normal du réacteur. Elles sont utilisées pour la surveillance de la réactivité du cœur en phase de rechargement du combustible et en phase sous-critique et servent à obtenir un taux de comptage minimal des « chaînes sources » de protection nucléaire du réacteur permettant de garantir en permanence leur disponibilité.

⁷ En production, le fluide primaire déchargé en cours de cycle pour ajuster ses caractéristiques chimiques ainsi que la puissance du réacteur lors des variations de charge est transféré du circuit primaire vers l'unité de traitement des effluents primaires (TEP) pour y subir un traitement par évaporation, les distillats obtenus contenant le tritium étant ensuite rejetés via les réservoirs recueillant les effluents radioactifs de l'îlot nucléaire (KER).

⁸ Les effluents tritiés rejetés des CNPE correspondent au contenu des réservoirs KER recueillant les distillats tritiés des unités de traitement des effluents primaires et des effluents usés.

L'impact radiologique des rejets de tritium étant en général plus important par voie gazeuse que par voie liquide, les exploitants de centrales nucléaires font le plus souvent le choix de minimiser les rejets de tritium par voie gazeuse et, par voie de conséquence, de privilégier les rejets de tritium par voie liquide. Pour les centrales implantées en bord de mer ou en bord de fleuves à grand débit, le rapport des doses normées ($\mu\text{Sv.TBq}^{-1}$) peut être très important (facteur 100 voire plus) compte tenu des facteurs de dilution élevés liés aux courants marins ou aux débits fluviaux. Pour les centrales implantées en bord de rivières à faible débit, ce rapport calculé à partir des données disponibles est nettement plus réduit, mais ces chiffres sont à considérer avec prudence. En effet, les calculs effectués pour les rejets liquides adoptent parfois des hypothèses largement conservatives ; ainsi, le groupe de référence défini pour les rejets liquides est largement hypothétique car cumulant des habitudes de vie particulièrement défavorables (eau de rivière puisée à une distance très proche des exutoires de la centrale dans une zone de mauvais mélange, prise en compte d'un régime d'autarcie pour l'eau de boisson, l'arrosage des légumes et des fruits, l'abreuvement des animaux d'élevage...). En tout état de cause, l'impact dosimétrique annuel du tritium pour les groupes de référence des CNPE du parc d'EDF restent de l'ordre ou inférieur à $0,1 \mu\text{Sv}$ et ne représente qu'environ 10 % de l'impact dû à l'ensemble des radionucléides rejetés.

Ainsi, EDF a établi des règles de gestion du tritium communes à tous ses sites reposant essentiellement sur les deux principes suivants : d'une part privilégier les rejets de tritium sous forme liquide plutôt que sous forme gazeuse en regard de son impact dosimétrique, d'autre part rejeter le maximum et si possible tout le tritium produit dans l'année dans le circuit primaire, quelle qu'en soit l'origine, tout en s'assurant du respect des exigences des arrêtés de rejets⁹, et ne recycler des effluents primaires tritiés qu'en cas de difficultés liées aux conditions de rejet en période d'étiage ou de crue. Il est à noter que, si la production annuelle de tritium du CNPE est supérieure à la valeur limite autorisée de rejet de tritium dans les effluents liquides, l'exploitant est obligé d'entreposer momentanément des effluents tritiés, de la même façon que lors d'une période d'étiage. L'année suivante, il procède au rejet dans le respect des exigences réglementaires. Cette gestion du tritium s'appuie par conséquent sur un suivi rigoureux de la production et des rejets de tritium et sur une utilisation maximale des possibilités de rejets offertes par le cours d'eau. A cet égard, l'utilisation optimale des fenêtres de rejet est essentielle pour les centrales situées au bord de cours d'eau à faible débit.

Il faut souligner qu'outre la stratégie de gestion consistant à favoriser au maximum les rejets de tritium par voie liquide, les possibilités de réduire ces rejets et par conséquent leur impact se limitent essentiellement, compte tenu de l'absence actuelle de procédé de traitement viable sur un plan technico-économique, à examiner les possibilités de limiter les sources de production de tritium dans le circuit primaire. Différents moyens tels que l'utilisation de bore sur-enrichi en bore 10 (qui permettrait de réduire la concentration en acide borique et en lithine dans le circuit primaire) ou de lithine sur-enrichie en lithium 7 (cet isotope contribuant beaucoup moins à la production de tritium que le lithium 6) peuvent être envisagés, mais le gain sur la production de tritium resterait néanmoins très faible (ces options ont été envisagées pour le réacteur EPR). Quant à la possibilité de supprimer le bore, celle-ci n'est pas envisageable de par la conception du cœur du réacteur¹⁰. Sa substitution par un autre produit neutrophage semble également très difficile de par le nombre de critères à respecter (neutronique, chimique, radiotoxicité...). Enfin, la suppression des grappes sources secondaires sur certains paliers et l'augmentation de la charge en gadolinium du combustible, représentée par le rapport entre le nombre d'assemblages neufs gadoliniés sur le nombre total d'assemblages neufs par recharge, pourraient également contribuer à réduire la production de tritium, mais ces différentes pistes doivent être encore explorées et quantifiées.

Les rejets moyens de tritium par tranche sont variables suivant le palier de puissance du réacteur, la production de tritium étant, comme indiqué précédemment, liée à la quantité d'énergie produite, mais également à la durée des cycles de fonctionnement (de 12 à 18 mois selon les tranches) et au taux d'enrichissement en ^{235}U du combustible utilisé. En particulier, l'allongement des campagnes nécessitant d'augmenter le taux d'enrichissement du combustible (de 3,4 % à 5 % en ^{235}U au maximum suivant les gestions du combustible), ainsi que le nombre d'assemblages neufs lors des rechargements¹¹, conduit à augmenter la concentration en bore

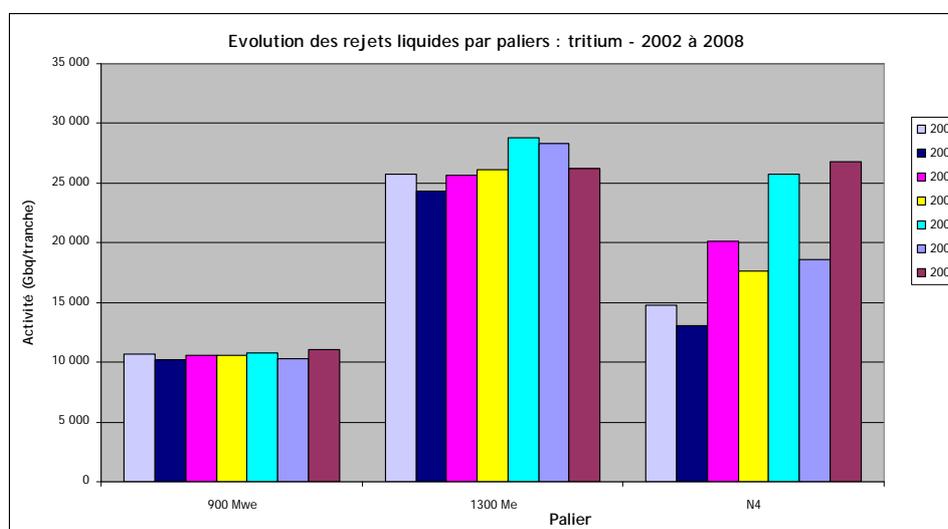
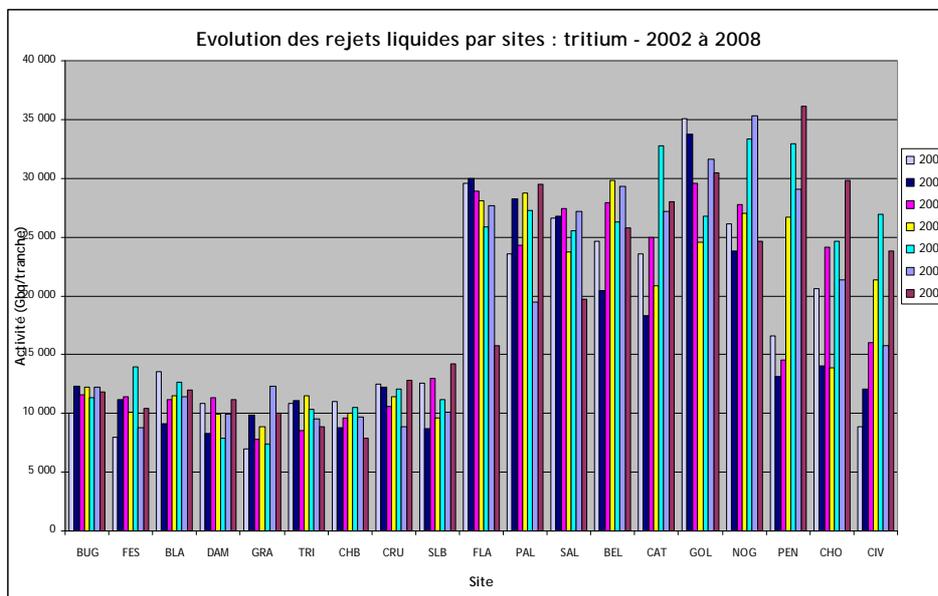
⁹ Les arrêtés ministériels de prélèvement d'eau et de rejets spécifiques à chaque CNPE fixent des limites annuelles d'activité en tritium à respecter dans les rejets liquides et gazeux (respectivement entre 20 et $50 \text{TBq.an}^{-1} \cdot \text{tranche}^{-1}$ et entre 2 et $4 \text{TBq.an}^{-1} \cdot \text{tranche}^{-1}$ selon le type de gestion de combustible). Ces arrêtés fixent également, pour les rejets liquides et gazeux, des limites en tritium à respecter dans certains réservoirs de stockage avant rejet et dans le milieu récepteur après dispersion des effluents. Par ailleurs, les spécifications radiochimiques établissent des valeurs attendues et des limites de l'activité en tritium dans les différents circuits (circuit primaire, réservoirs de stockage intermédiaire et distillats...).

¹⁰ Les trois moyens principaux permettant de contrôler la réactivité du cœur (grappes de contrôle, poisons consommables et bore soluble) ne peuvent pas être utilisés séparément. La solution retenue consiste à introduire, dans le cœur, une partie de l'anti-réactivité nécessaire en début de cycle sous forme de poisons consommables (crayons combustibles gadoliniés), de manière à limiter la concentration en bore initiale pour éviter les risques de cristallisation du bore et d'obtention d'un coefficient modérateur positif, les grappes de contrôle et le bore soluble étant ensuite utilisés tout au long du cycle pour maintenir le réacteur critique, notamment lors des variations de charge. De plus, dans certaines situations accidentelles, l'augmentation de la concentration en bore permet d'apporter un surplus d'anti-réactivité et l'injection de solution borique permet de maintenir l'inventaire en eau du circuit primaire.

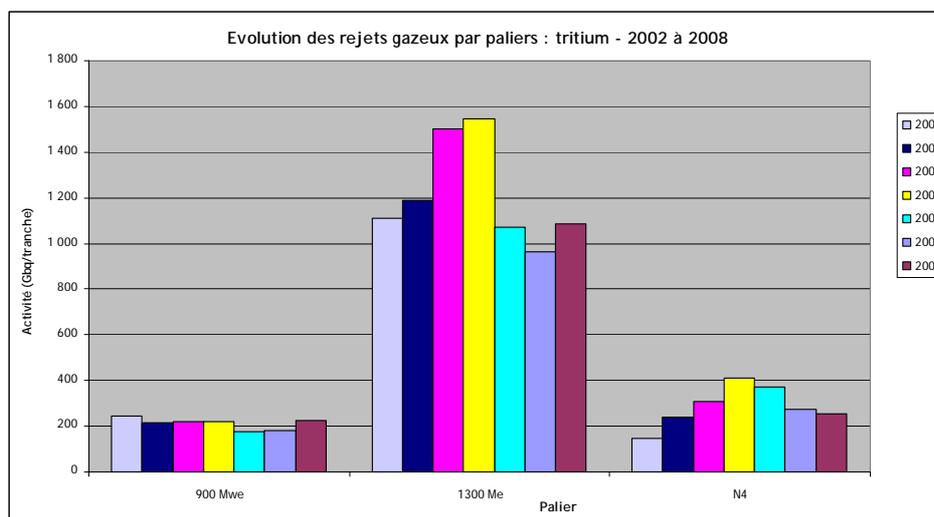
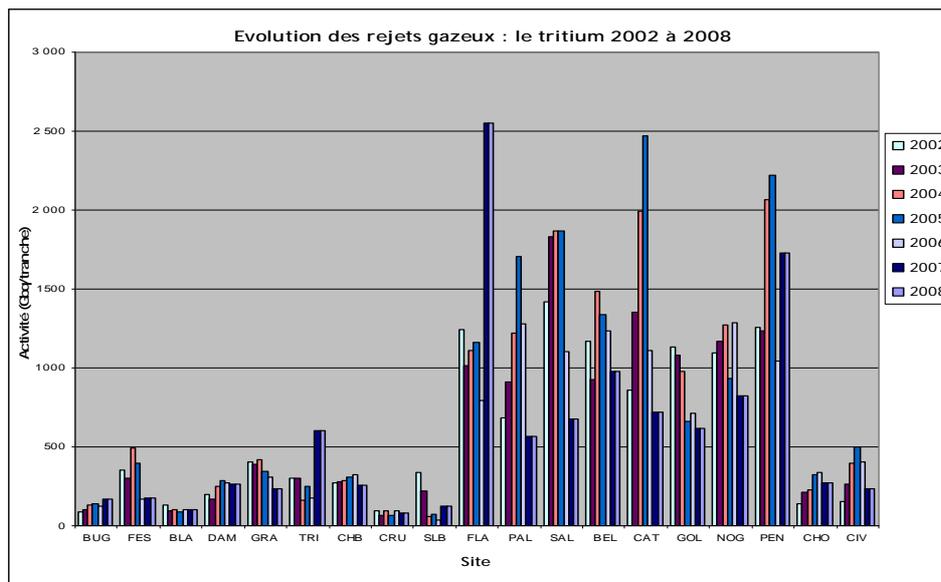
¹¹ Le passage à une gestion de combustibles à haut taux de combustion nécessite, dans certains cas, de passer d'un renouvellement par quart de cœur à un renouvellement par tiers de cœur, ce qui conduit à augmenter le nombre d'assemblages

soluble dans le circuit primaire, afin de compenser l'excès de réactivité initiale, et à ajuster la teneur en lithium en début de cycle. Ces évolutions ont pour conséquence une augmentation notable de la production de tritium et ce, malgré l'utilisation de combustibles au gadolinium (poisons consommables).

Les évolutions des rejets liquides et gazeux de tritium par tranche pour l'ensemble des sites du parc EDF puis par palier sont reportées sur les quatre graphes ci-après pour la période 2002-2008 (cf. rapports nucléaire et environnement d'EDF).



combustibles neufs par recharge. Mais une fois le cycle à l'équilibre, le nombre d'assemblages introduits dans le cœur est inchangé.



En moyenne par réacteur, les rejets liquides annuels de tritium sont d'environ 10 TBq pour le palier 900 MWe avec un maximum de 15 TBq (les gestions MOX actuelles du palier 900 MWe n'ont que peu d'influence sur la production de tritium compte tenu du fait que la concentration en bore et le mode d'exploitation d'un cœur UO₂ et d'un cœur MOX sont sensiblement identiques). Pour le palier 1300 MWe, ces rejets liquides ont sensiblement augmenté depuis la mise en œuvre, en 1996-1997, de la gestion de combustible *GEMMES* utilisant des combustibles plus enrichis (4 % ²³⁵U au lieu de 3,1 % initialement) et produisant donc plus de tritium (augmentation de la teneur en bore dans le circuit primaire). Ces rejets sont passés en moyenne par réacteur de 15 TBq.an⁻¹ en 1996 à 25 TBq.an⁻¹ ces dernières années (équilibre atteint en 2001). Pour le palier 1450 MWe, les rejets de tritium atteignent leur état d'équilibre avec une moyenne d'environ 20 TBq.an⁻¹.

L'activité rejetée par voie gazeuse est d'environ de 0,3 TBq par tranche pour les paliers 900 MWe et 1450 MWe et de 1,2 TBq par tranche pour le palier 1300 MWe, ces effluents provenant principalement de l'évaporation des piscines BK et des piscines BR lors des arrêts pour rechargement, ainsi que des événements des bâches intermédiaires TEP d'effluents tritiés. Ces rejets pourraient toutefois être réduits sur le palier 1300 MWe en limitant les débits de ventilation des bâches intermédiaires. Ainsi, le retour d'expérience montre que près de 98 % du tritium produit en 2007 sur l'ensemble du parc EDF ont été rejetés sous forme liquide.

Par ailleurs, il convient de souligner que l'augmentation des rejets liquides de tritium émis par les réacteurs de 1300 MWe ne peut être imputée à la seule modification de la gestion du combustible puisque cette augmentation est également liée au fait que l'exploitant privilégie dorénavant les rejets de tritium sous forme liquide plutôt que sous forme gazeuse, cette politique ayant été initiée plus rapidement pour le palier 1300 MWe que pour les autres

paliers. De façon générale, la stratégie de gestion des effluents primaires est propre à chaque CNPE du fait :

- de la diversité des contraintes environnementales pouvant être rencontrées (étiage, crue, plage de débit autorisant les rejets) ;
- de l'impact des stratégies de gestion précédentes (historique), celles-ci ayant pu conduire à une augmentation progressive de l'activité du tritium dans le circuit primaire et les circuits connexes jusqu'à des valeurs proches des limites spécifiées, obligeant à déconcentrer le tritium dans ces circuits, à le déstocker et finalement à augmenter les rejets liquides de tritium ;
- de l'existence de problématiques spécifiques propres à chaque CNPE ;
- des disparités quant aux limites fixées pour le paramètre tritium dans les arrêtés d'autorisation de rejets.

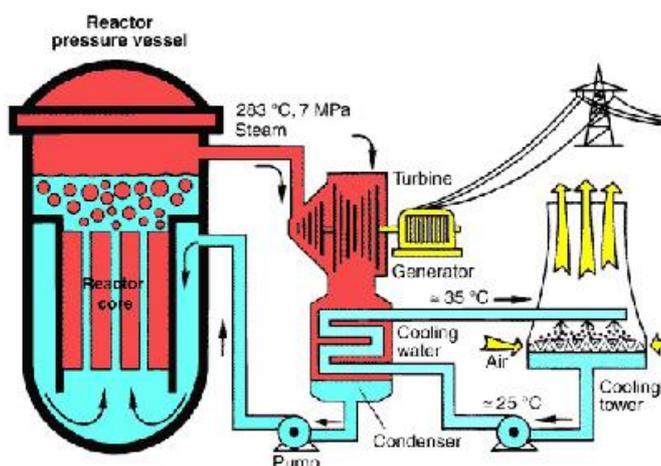
Enfin, pour l'ensemble des 58 tranches du parc d'EDF, les rejets normalisés de tritium par voies liquide et gazeuse en 2007 sont respectivement de 20 et 0,6 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ en moyenne et recourent les valeurs fournies par l'UNSCEAR pour la période 1975-1997 [1][2][10][11], pour l'ensemble des réacteurs PWR en exploitation dans le monde. A cet égard, il faut rappeler que, pour ce qui concerne le parc EDF, les méthodes de comptabilisation des rejets radioactifs, et notamment des rejets de tritium, ont évolué depuis 2002, ce qui rend délicate toute comparaison avec les années antérieures.

Sur la période 1975-1997, les valeurs de rejet fournies par l'UNSCEAR ont diminué de manière constante, respectivement de 38 à 19 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ et de 7,8 à 2,3 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ respectivement pour les voies liquide et gazeuse, cette évolution étant liée principalement à une meilleure gestion de l'exploitation et de la maintenance réalisée en arrêt de tranche, mais également à une évolution des méthodes de comptabilisation et des performances de la métrologie.

Les réacteurs à eau bouillante (BWR)

A la fin 2007, 94 réacteurs BWR de puissance unitaire variant de 150 à 1350 MWe et de capacité nette totale de 85,3 GWe, étaient connectés au réseau à travers le monde [3].

Schéma simplifié d'un réacteur BWR



Les principales caractéristiques d'un réacteur BWR et les principales différences par rapport à un réacteur PWR sont rappelées ci-après :

- présence d'un seul circuit, l'eau légère étant portée à l'ébullition dans le cœur et la vapeur produite allant directement dans la turbine (280 °C, 70 bar) ;

- nécessité d'augmenter le volume du cœur, de puissance spécifique plus faible, la densité de l'eau, en partie sous forme vapeur, étant notablement plus faible¹² ;
- nécessité de séparer mécaniquement l'eau et la vapeur (un séparateur est implanté en haut de la cuve) et de renvoyer directement la phase liquide séparée reprise par des pompes dans le cœur du réacteur (le taux de vide est nul au bas du cœur et atteint environ 70 % au haut de ce dernier) ;
- nécessité d'enfermer les assemblages combustibles dans des boîtiers destinés à canaliser l'eau de refroidissement, maintenir une circulation axiale assurant la stabilité du cœur et faciliter leur manutention, les barres de contrôle cruciformes étant insérées entre ces boîtiers ;
- existence d'un fort couplage entre thermohydraulique et neutronique ayant pour conséquence une grande stabilité radiale de flux, mais un fort déséquilibre axial de puissance (usure plus rapide du combustible dans la partie basse du cœur) ; les solutions successivement adoptées pour limiter la bosse de puissance en partie basse, réduire le déséquilibre axial et assurer une partie de la compensation à long terme ont été les suivantes :
 - ✓ insertion de barres de commande par le bas de la cuve où l'absence de bulles de vapeur crée un excès de réactivité (utilisation de gadolinium puis de bore et de hafnium) ;
 - ✓ introduction de l'étagement axial du poison consommable (Gd) dans les crayons combustibles et enrichissement axial des crayons combustibles plus important en partie haute du cœur¹³.

Il faut noter que l'utilisation de poison soluble (acide borique) en tant que modérateur n'est pas envisageable dans les réacteurs BWR. Celui-ci, restant dans la phase liquide, donnerait lieu à des dépôts dans la partie supérieure du cœur et pourrait entraîner des problèmes de stabilité du fait de l'écoulement diphasique dans les canaux du cœur. A titre d'exemple, dans l'éventualité d'une augmentation de puissance, l'ébullition accrue se traduirait par une diminution de la quantité de poison présente dans le cœur et une augmentation de sa réactivité. Ainsi, la solution consistant à éliminer progressivement le bore soluble dans l'eau du circuit primaire pour compenser l'usure à long terme du combustible n'étant pas applicable dans le cas des réacteurs BWR, la solution retenue a consisté à augmenter considérablement l'antiréactivité totale des barres de commande par rapport à un réacteur PWR (de l'ordre de 150 barres pour 600 assemblages). Le bore est cependant utilisé dans certains systèmes de secours des réacteurs BWR, notamment en cas d'accident de perte de réfrigérant primaire. Enfin, la présence de bore dans l'eau du circuit caloporteur conduirait à la production de tritium qu'il conviendrait de prendre en compte, notamment en cas de fuite de la turbine, qui se traduirait par un relâchement d'effluents gazeux radioactifs en salle des machines¹⁴.

Dans les réacteurs BWR, les sources de production de tritium sont les suivantes [4][5][6] :

- la fission ternaire de l'U et du Pu dans le combustible (de l'ordre de 520 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹). De manière identique aux réacteurs PWR, une partie du tritium produit dans le combustible diffuse dans les gaines (zircaloy-2), celui-ci étant arrêté par la couche d'oxyde externe (taux de sortie dans le circuit caloporteur extrêmement faible) ; à cet égard, les travaux de Kunz [12] et Kearns [13] ont montré que la nature des alliages de zirconium (zircaloy-2 et zircaloy-4) n'avait pas d'influence significative sur la mobilité du tritium et le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans les gaines ;
- les défauts de gainage (moins de 1 % de la quantité de tritium formée dans le combustible) ;
- l'activation neutronique du deutérium présent naturellement dans l'eau du circuit primaire (production très faible) ;
- la production de tritium dans les barres de commande cruciformes borées et gainées en acier inoxydable, plus importante que dans les autres types de réacteurs, celui-ci diffusant très faiblement dans le circuit primaire. De l'ordre de 1 850 TBq.GWe⁻¹ sont présents dans ces barres en fin de vie.

¹² La cause en est la neutronique : au même volume de combustible et, approximativement, au même nombre de crayons et à la même puissance que pour un réacteur PWR, il faut associer un volume d'eau plus important puisque celle-ci est, en moyenne, moins dense du fait de la présence de bulles de vapeur, ce qui diminue ses qualités modératrices.

¹³ Lorsque les éléments absorbants sont retirés, une lame d'eau relativement importante apparaît entre les assemblages. Cette eau, qui n'est pas en contact direct avec le combustible, n'est pas vaporisée et va donc induire une remontée de réactivité qui pourrait conduire à un pic de puissance au niveau des crayons voisins. C'est pour cette raison qu'un zonage d'enrichissement est mis en place et que les emplacements des crayons consommables sont optimisés.

¹⁴ L'eau du circuit primaire, traversant le cœur, est déjà légèrement radioactive à cause de la présence de quelques produits de corrosion susceptibles de s'activer sous flux neutronique et, surtout, de la formation d'azote 16, émetteur gamma dur, par réaction (n, p) sur l'oxygène de l'eau.

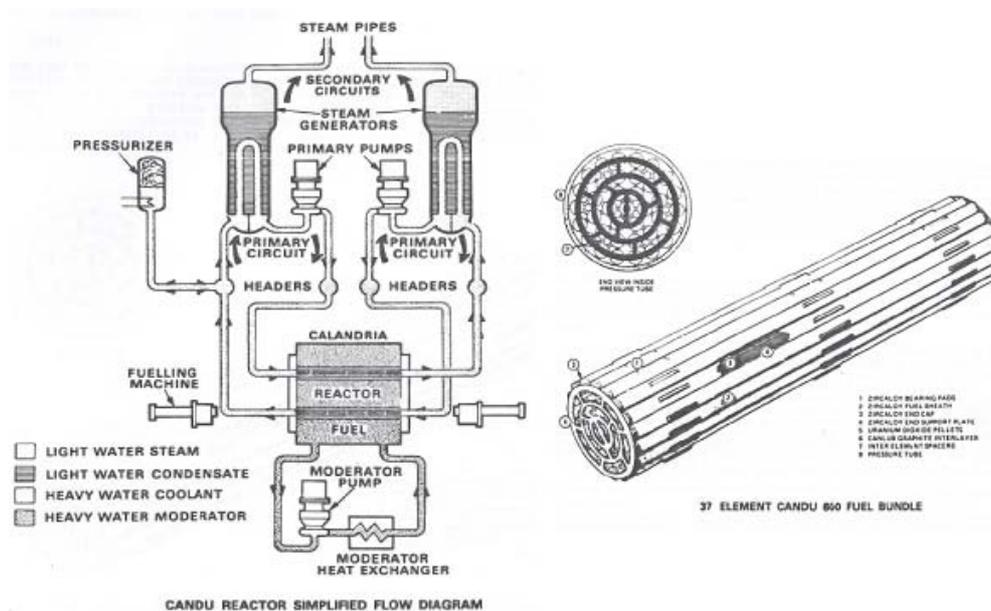
Pour l'ensemble des réacteurs BWR dans le monde, les valeurs de rejet de tritium par voies liquide et gazeuse, fournies par l'UNSCEAR pour la période 1975-1997 [1][2][10][11], varient respectivement de 2,1 à 0,9 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ et de 3,4 à 0,9 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹, ces valeurs diminuant depuis 1975 pour atteindre un palier à partir de 1990. A l'heure actuelle, il peut être retenue, en tant qu'ordre de grandeur, une valeur de rejet de tritium de l'ordre de 1 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ à la fois pour la voie liquide et la voie gazeuse.

Il faut souligner que, compte tenu de l'absence d'acide borique dans le circuit caloporteur, l'activité en tritium rejetée sous forme d'effluents liquides par les réacteurs BWR est environ 20 fois moins importante que celle correspondant aux réacteurs PWR.

Les réacteurs à eau lourde sous pression (PHWR)

A la fin 2007, 44 réacteurs de type PHWR (puissance unitaire variant de 90 à 880 MWe), de capacité nette totale de 22,4 GWe et dont plus de la moitié est fournie par le Canada, étaient connectés au réseau à travers le monde [3].

Schémas simplifiés d'un réacteur et d'un assemblage combustible de type CANDU



Les principales caractéristiques d'un réacteur à eau lourde de type CANDU (*CAN*adian *D*eutérium *n*atural *U*ranium *r*eactors) sont rappelées ci-après :

- l'eau lourde est utilisée à la fois comme caloporteur et modérateur, mais dans des conditions physiques et thermodynamiques différentes ;
- le caloporteur (circuit primaire) et le modérateur sont séparés physiquement, contrairement aux réacteurs PWR et BWR ;
- l'eau lourde de refroidissement primaire sous pression (11 bar, 300 °C) circule dans des tubes de force horizontaux¹⁵ en alliage zirconium-niobium, ou canaux, contenant les assemblages combustibles, puis passent dans des générateurs de vapeur analogues à ceux des réacteurs PWR, le circuit secondaire étant également analogue à celui des PWR ;
- le circuit modérateur est maintenu à moins de 100 °C et n'est pas sous pression ; compte tenu du rapport de modération élevé, le volume de modérateur est beaucoup plus important que dans un réacteur PWR ;
- le combustible est à base d'oxyde d'uranium naturel non enrichi, le matériau de gainage étant le zircaloy ; les taux de combustion atteints sont de l'ordre de 7 500 MWj.t⁻¹ en moyenne ; un léger enrichissement permet d'augmenter les durées de vie des éléments combustibles ;

¹⁵ Les tubes de force sont des tubes susceptibles de résister à une température et une pression élevées. Plusieurs centaines de tubes traversent la cuve (dite calandria) contenant l'eau lourde modératrice.

- le renouvellement du combustible est effectué en marche pour éviter d'arrêter trop fréquemment le réacteur ;
- la pénétration des barres de commande dans le cœur s'effectue par le haut, perpendiculairement aux canaux.

Dans les réacteurs de type PHWR, les sources de production de tritium sont les suivantes [4][6][9] :

- la fission ternaire de l'U et du Pu dans le combustible (de l'ordre de $520 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$). Une partie du tritium diffuse dans les gaines en zircaloy, le taux d'inclusion étant a priori inférieur à celui des réacteurs LWR et le taux de sortie dans le circuit caloporteur restant extrêmement faible ;
- des défauts de gainage (moins de 1 % de la quantité de tritium formée dans le combustible diffusant dans le caloporteur) ;
- l'activation neutronique du deutérium de l'eau lourde présent dans le caloporteur du circuit primaire (de l'ordre de $1850 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$) et dans le modérateur (de l'ordre de $51\,800 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$), ces quantités de tritium produites étant directement proportionnelles au flux neutronique et à la durée d'irradiation.
La teneur en eau lourde et le flux de neutrons thermiques étant plus faibles dans les canaux de refroidissement que dans le circuit du modérateur, le taux de production de tritium est par conséquent moins élevé dans le fluide caloporteur (facteur de l'ordre de 40 entre les activités volumiques en tritium dans le caloporteur et le modérateur au bout de 40 ans de fonctionnement) ;
- la formation par activation neutronique du bore (0,25 ppm) et du lithium présent dans le caloporteur du circuit primaire, la quantité de tritium produite étant toutefois très faible (la teneur en bore de 0,25 ppm est à comparer avec les 1100 ppm présents dans le circuit primaire d'un PWR à pleine puissance en début de cycle).

La production totale de tritium dans le modérateur et le caloporteur des réacteurs PHWR, de l'ordre de $90\,000 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ au maximum, est par conséquent beaucoup plus importante (facteur supérieur à 2000) que la quantité formée dans le circuit primaire des réacteurs PWR ($37 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$), la quantité de tritium accumulée dans l'eau lourde en fin de vie du réacteur étant de l'ordre de $7,4 \cdot 10^5 \text{ TBq.GWe}^{-1}$.

Pour ce qui concerne le comportement du tritium dans un réacteur à eau lourde, il faut souligner que les fuites possibles d'eau lourde (maximum 1 à 2 % par an), au niveau des circuits du caloporteur et du modérateur et des équipements auxiliaires (vannes, brides...), nécessitent la mise en place, d'une part de systèmes de surveillance et de récupération de l'eau lourde en circuit fermé pour recyclage, d'autre part d'un confinement adéquat (sécheurs d'air, ventilation, cascades de dépression...), afin de minimiser les risques de contamination du bâtiment réacteur et les rejets de tritium sous forme liquide et gazeuse dans l'environnement.

Un moyen complémentaire permettant de limiter les rejets liquide et gazeux de tritium est la mise en place de systèmes de détritiation permettant de traiter une partie de l'eau lourde présente dans les circuits du caloporteur et du modérateur avant recyclage dans le réacteur, le tritium étant récupéré sous forme gazeuse comme sous-produit économiquement valorisable (exemple de Darlington). La mise en œuvre de ces procédés de séparation, facilitée par le fait que l'activité en tritium des flux à traiter est très importante (de l'ordre de 10^{11} à $10^{12} \text{ Bq.L}^{-1}$) et beaucoup plus élevée que dans le cas des réacteurs PWR (environ 10^6 Bq.L^{-1}), introduit toutefois des risques supplémentaires de fuites de tritium en exploitation qu'il convient de gérer.

Par ailleurs, il faut noter que, bien que la quantité de tritium produite dans le caloporteur représente moins de 3 % de celle produite dans le modérateur, les conséquences, en termes d'impact dosimétrique sur les travailleurs, des rejets en tritium issus du circuit primaire, compte tenu des conditions de température et de pression régnant dans ce circuit (11 bar, $300 \text{ }^\circ\text{C}$), sont à peu près du même niveau que les conséquences des rejets issus des circuits contenant le modérateur. Pour cette raison, le maintien de l'intégrité de la séparation physique entre ces deux circuits s'avère essentiel pour éviter les transferts de contamination et maintenir en particulier l'activité massique en tritium du caloporteur à une valeur inférieure à 37 GBq.kg^{-1} , celle du modérateur avoisinant les $1\,500 \text{ GBq.kg}^{-1}$ (le double en absence de système de détritiation ou de renouvellement d'une partie de l'eau lourde tritiée).

Pour l'ensemble des réacteurs PHWR dans le monde, les valeurs de rejet de tritium par voies liquide et gazeuse, fournies par l'UNSCEAR [1][2][10][11] pour la période 1975-1997, varient respectivement de 290 à $490 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et de 690 à $330 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en moyenne, les rejets atmosphériques diminuant depuis les années 1980 (mise en place progressive de systèmes de confinement et de détritiation complémentaires) et les rejets liquides augmentant progressivement en fonction de la puissance totale nette installée. Des données récentes [14] indiquent que les rejets de tritium par voies liquide et gazeuse durant l'année 2006, pour l'ensemble des réacteurs CANDU exploités au Canada, sont respectivement de l'ordre de 1 600 et $2\,100 \text{ TBq.an}^{-1}$ pour une production nette

d'électricité nucléaire de l'ordre de 10 GWe.an, soit des rejets de l'ordre de 160 et 210 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ en moyenne.

Pour toutes les raisons évoquées ci-avant et principalement l'utilisation d'eau lourde en grandes quantités dans le caloporteur et le modérateur, les rejets en tritium des réacteurs PHWR sont donc beaucoup plus importants que ceux issus des réacteurs à eau légère (PWR et BWR).

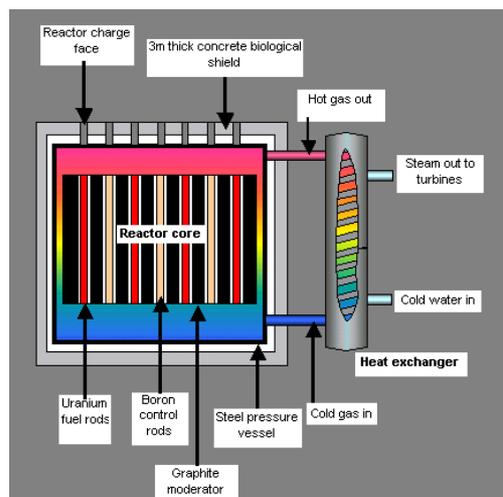
Les réacteurs graphite-gaz (GCR)

A la fin 2007, 18 réacteurs de la filière graphite-gaz de types AGR et MAGNOX (puissance unitaire variant de 217 à 625 MWe), de capacité nette totale de 9 GWe, étaient connectés au réseau au Royaume-Uni [3].

Les réacteurs de type MAGNOX à modérateur graphite et caloporteur CO₂ constituent la première génération des réacteurs britanniques à caloporteur gaz (concept identique à celui des réacteurs graphite-gaz français du type UNGG). Seules deux unités étaient encore en fonctionnement en 2007. Leurs principales caractéristiques sont rappelées ci-après :

- utilisation de combustibles métalliques à base d'uranium naturel gainés en magnésium ;
- combustibles irradiés en moyenne à 6000 MWj/t ;
- températures de sortie de gaz (de l'ordre de 360-400 °C) et rendement du cœur limité ;
- échangeurs de chaleur implantés à l'extérieur de la cuve en acier.

Schéma simplifié d'un réacteur MAGNOX



Les réacteurs de type AGR (*Advanced Gas-cooled Reactor*) constituent la seconde génération des réacteurs britanniques à caloporteur gaz et a été développée à partir du concept du réacteur MAGNOX. Les principales caractéristiques sont rappelées ci-après :

- réacteurs à modérateur graphite et à caloporteur CO₂ ;
- crayons combustibles constitués d'oxyde d'uranium enrichi (2,5 à 3,5 % en ²³⁵U), gainés en acier inoxydable, disposés en grappes empilées et entourées de manchons en graphite ;
- combustible irradié jusqu'à 27 000 MWj.t⁻¹ ;
- rendement thermique (de l'ordre de 40 %) plus élevé que dans le cas des réacteurs MAGNOX ;
- chargement et déchargement du réacteur en ligne ;
- barres de commande (bore-acier) insérées dans la structure graphite par le haut du réacteur ;

- caloporteur sous pression à 650 °C en sortie de cœur améliorant le transfert de chaleur, mais nécessitant l'utilisation d'un caisson en pression en béton isolé thermiquement ;
- recirculation du CO₂ à l'intérieur du cœur afin de le maintenir à une température suffisamment basse pour éviter l'oxydation du graphite ;
- échangeurs de chaleur implantés dans la cuve en acier et non à l'extérieur comme dans le cas des réacteurs MAGNOX.

Enfin, la filière française des réacteurs de technologie UNGG (*Uranium Naturel-Graphite-Gaz*) a été développée conjointement par le CEA et EDF dans les années 1950 jusqu'à son abandon en 1969 au profit de la filière des réacteurs à eau sous pression (PWR). Neuf réacteurs électrogènes ont été construits et exploités sur les sites de Chinon, Saint-Laurent-des-Eaux, Bugey et Marcoule pendant cette période et sont aujourd'hui en partie démantelés. Leur conception était très proche de celle des réacteurs de type MAGNOX (modérateur graphite et caloporteur CO₂, combustible métallique à uranium naturel gainé en magnésium et logé dans des canaux aménagés dans l'empilement de graphite, échangeurs de chaleur intégrés ou non au caisson du réacteur, circulation du CO₂ assurée par des turbosoufflantes).

Dans les réacteurs de type graphite-gaz, les sources de production de tritium sont les suivantes [4][6] :

- la fission ternaire de l'U et du Pu dans le combustible (de l'ordre de 520 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹).
Dans le cas des réacteurs AGR, une partie du tritium produit dans le combustible diffuse dans le caloporteur CO₂ au travers de la gaine en acier inoxydable (taux inférieur à 30 %) ; le relâchement de tritium en cas de crayon combustible fuyard reste très faible car le rechargement du réacteur est réalisé en continu.
Dans le cas des réacteurs MAGNOX, très peu de tritium diffuse du combustible dans le caloporteur (combustible métallique gainé en magnésium) ;
- la formation par activation neutronique du lithium présent en tant qu'impureté dans le graphite modérateur (teneur fonction de la pureté du graphite et de la durée d'irradiation), le taux de production de tritium variant de 0 à 185 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ et la diffusion dans le caloporteur d'une faible partie du tritium produit, due à la corrosion du graphite par le CO₂ ; la quantité de tritium accumulée dans le graphite en fin de vie du réacteur est de l'ordre de 37 TBq.GWe⁻¹ ;
- l'activation neutronique du deutérium présent dans la vapeur d'eau du caloporteur (taux de production très faible) ; il faut noter que, dans le cas des réacteurs MAGNOX et à la différence des réacteurs AGR, le CO₂ est traité en continu dans des déshumidificateurs, le tritium se retrouvant dans les effluents liquides produits, sous forme d'eau tritiée.

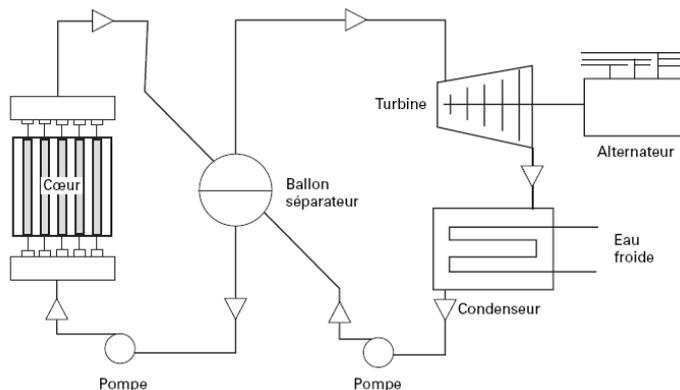
Pour l'ensemble des réacteurs de type graphite-gaz dans le monde, les valeurs de rejet de tritium par voies liquide et gazeuse, fournies par l'UNSCEAR pour la période 1975-1997 [1][2][10][11], varient respectivement de 25 à 280 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ et de 8,1 à 3,9 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ en moyenne, les rejets atmosphériques diminuant progressivement depuis les années 1980 (mise en place de déshumidificateurs pour récupérer l'eau tritiée présente dans le caloporteur gaz) et les rejets liquides augmentant progressivement en fonction du démarrage des réacteurs AGR (davantage de tritium diffusant du combustible gainé en acier inoxydable dans le caloporteur gaz). Ces rejets semblent avoir atteint un palier depuis les années 1995. Il faut enfin noter que les rejets normalisés de tritium sous forme liquide des réacteurs AGR sont actuellement assez proches de ceux émis par les réacteurs à eau lourde et, par conséquent, beaucoup plus importants que ceux émis par les réacteurs PWR.

Les réacteurs eau-graphite (LWGR)

A la fin 2007, 16 réacteurs de la filière eau-graphite (LWGR) du type RBMK (puissance unitaire variant de 11 à 925 MWe), principalement localisés en Russie, de capacité nette totale de 11,4 GWe, étaient connectés au réseau [3]. D'autres réacteurs RBMK ont été arrêtés à la suite de l'accident de Tchernobyl.

Les réacteurs RBMK sont des réacteurs à tubes de force refroidis à l'eau bouillante (70 bar) et modérés au graphite. L'eau et la vapeur sont séparées dans des ballons séparateurs extérieurs au réacteur et la vapeur est envoyée à la turbine. Ils utilisent un combustible constitué d'oxyde d'uranium faiblement enrichi (de l'ordre de 2 %) et sont dotés d'un système de renouvellement du combustible en marche. Les principaux défauts de conception concernent les risques d'augmentation immédiate de puissance en cas d'assèchement des tubes de force lié à la présence d'une trop grande quantité de modérateur (eau et graphite), la prise en compte insuffisante des risques de surpression à l'intérieur du bloc réacteur en cas de rupture multiple des tubes de force et l'absence d'enceinte de confinement autour du bloc réacteur capable de résister aux conditions accidentelles.

Schéma simplifié d'un réacteur de type RBMK



Pour ce qui concerne les sources de production et le comportement du tritium dans les réacteurs du type RBMK, peu d'informations sont disponibles. Le tritium se forme principalement par fission ternaire de l'U et du Pu dans le combustible, par activation du lithium présent en tant qu'impureté dans le graphite modérateur et par activation neutronique du deutérium présent dans le fluide caloporteur (eau).

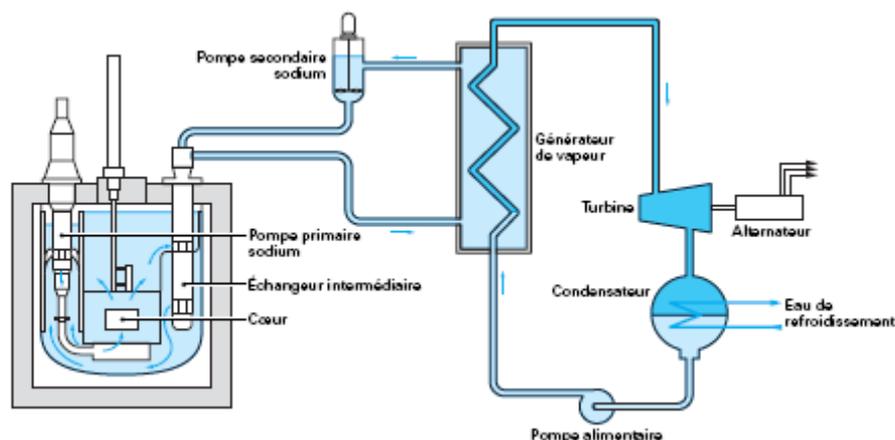
Pour l'ensemble des réacteurs de type LWGR dans le monde, les valeurs de rejet de tritium par voies liquide et gazeuse, fournies par l'UNSCEAR [1][2][10][11], sont respectivement de l'ordre $11 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et de $26 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en moyenne (valeurs calculées). Le niveau des rejets normalisés de tritium dans les effluents liquides est par conséquent relativement proche de ceux des réacteurs PWR.

Les réacteurs à neutrons rapides (FBR)

Cinq réacteurs de la filière à neutrons rapides (FBR) sont en exploitation à travers le monde (réacteurs BOR 60, BN 600, JOYO, MONJU et FBTR), leurs puissances unitaires variant de 15 MWe (FBTR) à 1 400 MWe (JOYO). Certains sont à l'arrêt suite à des incidents de fonctionnement. Le réacteur PHENIX est actuellement en cours d'arrêt définitif, le réacteur SUPERPHENIX de 1 200 MWe ayant été arrêté en 1997. En 2007, seuls les réacteurs PHENIX et BN 600, de puissances nettes respectivement égales à 130 et 560 MWe, étaient connectés au réseau [3].

Toutes ces installations utilisent le sodium comme fluide primaire, celui-ci cédant sa chaleur à un circuit intermédiaire utilisant également du sodium, lui-même cédant sa chaleur au circuit eau/vapeur. Deux variantes ont vu le jour, le circuit primaire pouvant être un circuit à boucle ou intégré (pompes et échangeurs du circuit primaire à l'extérieur ou à l'intérieur de la cuve). Un réacteur à neutrons rapides est caractérisé par une forte densité de puissance, une teneur en matière fissile élevée (combustible à base d'oxyde mixte de plutonium et d'uranium appauvri, la teneur en Pu pouvant varier de 10 à 25 %), un flux de neutrons de haute énergie (de l'ordre de 1 MeV en moyenne), l'absence de modérateur et finalement la possibilité de fonctionner dans différents modes : surgénération, iso-génération ou sous-génération.

Schéma de principe d'un réacteur FBR à chaudière à circuit primaire intégré (type Phénix)



Dans les réacteurs à neutrons rapides, les sources de production de tritium indirectes et directes sont les suivantes [4][6][15][16] :

- la fission ternaire de l'U et du Pu dans le combustible, le taux de production de tritium, de l'ordre de $740 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$, étant plus élevé que celui correspondant aux réacteurs de puissance à neutrons thermiques¹⁶.
Plus de 95 % du tritium produit dans le combustible diffuse par perméation dans le sodium primaire au travers de la gaine en acier inoxydable (contrairement au cas des alliages en zirconium), l'activité du tritium dans le caloporteur étant toutefois maintenue à un niveau faible, de l'ordre de quelques dizaines de milliers de Bq.g^{-1} , compte tenu de la présence de pièges froids mis en place pour épurer le sodium primaire des hydrures et des oxydes présents¹⁷ ;
- la production de tritium dans les barres de commande borées, celle-ci pouvant atteindre des taux voisins de $2\,220 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ ¹⁸ ; le tritium produit dans les barres pouvant former avec les carbures et le lithium du méthane tritié (CT_4) et des hydrures de lithium (LiT) très stables, seule une faible fraction de la quantité produite (moins de 10 %) diffuse dans les barres et passe dans le sodium primaire (ces barres ne sont pas totalement étanches pour éviter les phénomènes de montée en pression liés à la production d'hélium) ;
- l'activation de certaines impuretés, principalement le bore et lithium, présentes dans le sodium, le combustible et les matériaux de structure ; le taux de production de tritium dans le caloporteur sodium est évalué au maximum à $74 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$;
- la contamination directe du sodium primaire en cas de rupture de gaine.

Le tritium présent dans le sodium primaire peut ensuite diffuser par perméation dans le sodium secondaire, voire dans l'eau du circuit eau/vapeur, à travers les parois métalliques des composants principaux tels que l'échangeur intermédiaire et le générateur de vapeur. Le retour d'expérience d'exploitation du réacteur Superphénix (cf. rapport de sûreté de démantèlement) montre toutefois que l'activité en tritium du sodium secondaire reste inférieure d'un facteur 10 environ à celle du sodium primaire, la quantité de tritium présente dans le circuit eau-vapeur représentant moins de 1 % de la quantité présente dans le sodium primaire.

La quantité de tritium accumulée en fin de vie du réacteur dans les pièges froids est de l'ordre de $10\,000 \text{ TBq.GWe}^{-1}$. A titre indicatif, les activités en tritium dans les pièges froids des circuits primaires et secondaires des réacteurs Superphénix et Phénix sont respectivement de l'ordre de 660 et 250 TBq aux dates d'arrêt de production d'électricité de ces deux réacteurs (1997 et 2009 respectivement), ces derniers ayant produit de l'ordre de 0,9 et 3 GWe.an durant toute la durée de leur exploitation. Ainsi, près de 90 % du tritium produit est piégé dans les ensembles de purification du sodium primaire et du sodium secondaire.

A cet égard, il convient de souligner que, lors du démantèlement des réacteurs FBR, des quantités importantes de sodium (plusieurs milliers de tonnes) contenant une grande partie du tritium produit durant toute la phase d'exploitation du réacteur (plusieurs milliers de TBq) devront être éliminées. Le procédé actuellement envisagé pour traiter le sodium des réacteurs Phénix et Superphénix est un procédé basé sur la réaction sodium-eau avec formation de soude et dégagement d'hydrogène, le tritium contenu passant quasi-intégralement dans les effluents gazeux, celui-ci pouvant être, le cas échéant, recombéné sous forme d'eau tritiée avant rejet. Ainsi, dans le cadre de la conception de nouveaux réacteurs FBR fonctionnant au sodium (déploiement d'un parc de 4^{ème} génération...), il semblerait utile d'examiner les possibilités de récupérer, au moment du démantèlement, le tritium accumulé dans le caloporteur, soit pour le valoriser, soit pour le conditionner en vue d'un entreposage ou d'un stockage direct, cette analyse devant, en tout état de cause, résulter d'une démarche d'optimisation tenant compte de critères techniques et économiques, mais également des enjeux de sûreté et de radioprotection associés à chacune des options envisagées (récupération ou rejet).

Pour l'ensemble des réacteurs de type FBR dans le monde, les valeurs de rejet de tritium par voies liquide et gazeuse, fournies par l'UNSCEAR [1][2][10][11], varient respectivement de 0,4 à $1,8 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et de 44 à $49 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en moyenne, les activités rejetées provenant essentiellement des fuites collectées sur le circuit eau-vapeur et des opérations de rinçage réalisées sur les éléments combustibles lors de leur déchargement pour ce qui concerne les effluents liquides et des ciels de pile pour ce qui concerne les effluents gazeux. A titre indicatif, les rejets gazeux de la centrale Phénix étaient respectivement de 0,85 et $0,46 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en 2003 et 2007. Le

¹⁶ Des valeurs plus élevées de taux de production sont également citées si l'on prend en compte les fortes incertitudes sur les rendements de fission ternaire de certains isotopes en spectre « rapide ». A titre d'exemple, les données de l'installation Superphénix font état d'une production annuelle de tritium de $1\,110 \text{ TBq}$ dans le combustible.

¹⁷ Les données des installations Superphénix et Phénix, en cours de démantèlement, font état respectivement de 30 000 et $6\,000 \text{ Bq.g}^{-1}$ de tritium dans le sodium primaire aux dates d'arrêt de production d'électricité de ces deux réacteurs (1997 et 2009 respectivement).

¹⁸ Les données de l'installation Superphénix font état d'une production annuelle de 925 TBq de tritium par activation du bore des barres de commande.

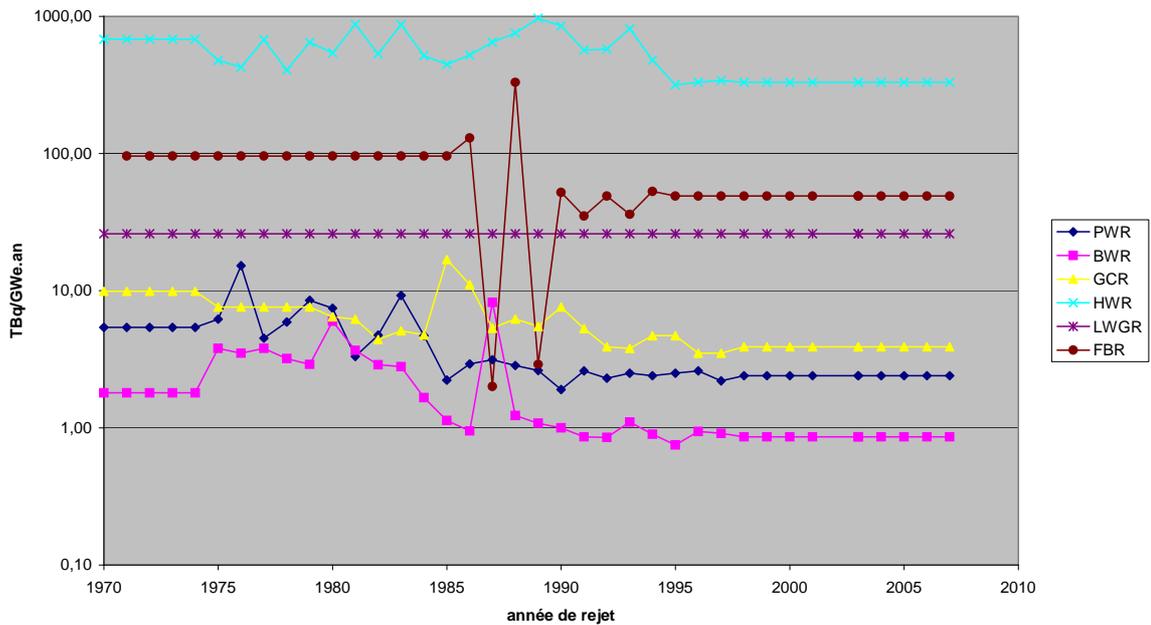
niveau de rejet normalisé pour le tritium gazeux est par conséquent relativement proche de ceux des réacteurs BWR.

Comparaison des rejets en tritium par filière de réacteur

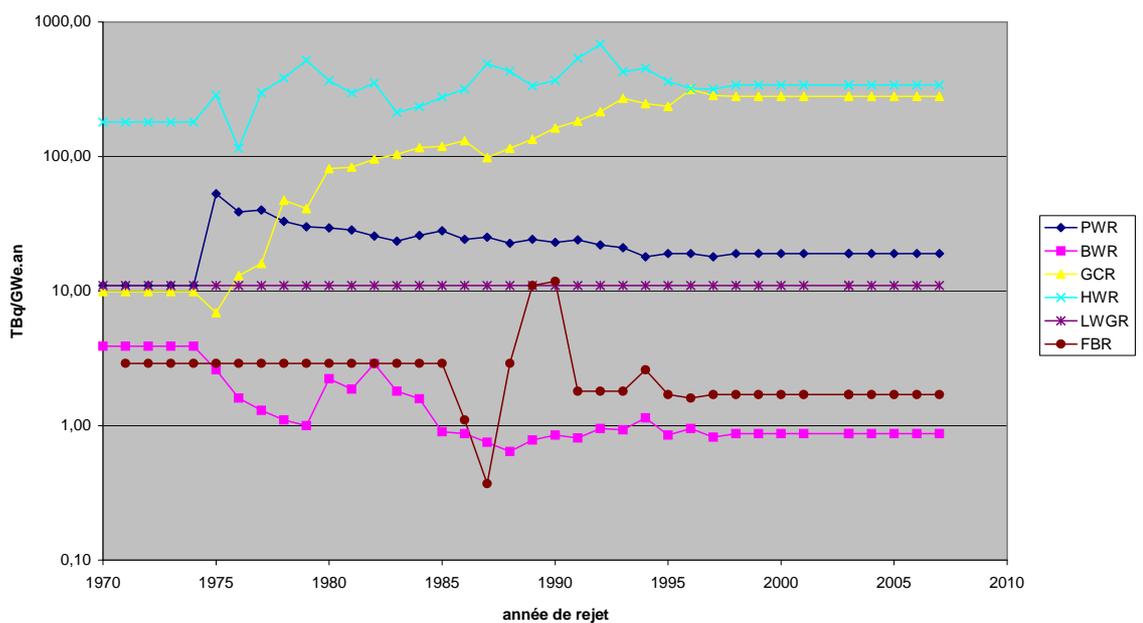
Les évolutions des rejets en tritium gazeux et liquide normalisés pour les différents types de réacteurs nucléaires, extraits des rapports de l'UNSCEAR [1][2][10][11], sont reportées sur les deux graphes ci-après pour les années 1970 à 2007.

Les variations constatées des taux de rejet normalisés de tritium pour deux années consécutives, principalement durant la période 1975-1985, résultent d'opérations d'exploitation ou de maintenance spécifiques, voire de données trop incomplètes concernant une même filière.

Rejets atmosphériques normalisés en tritium pour les réacteurs nucléaires (données UNSCEAR)

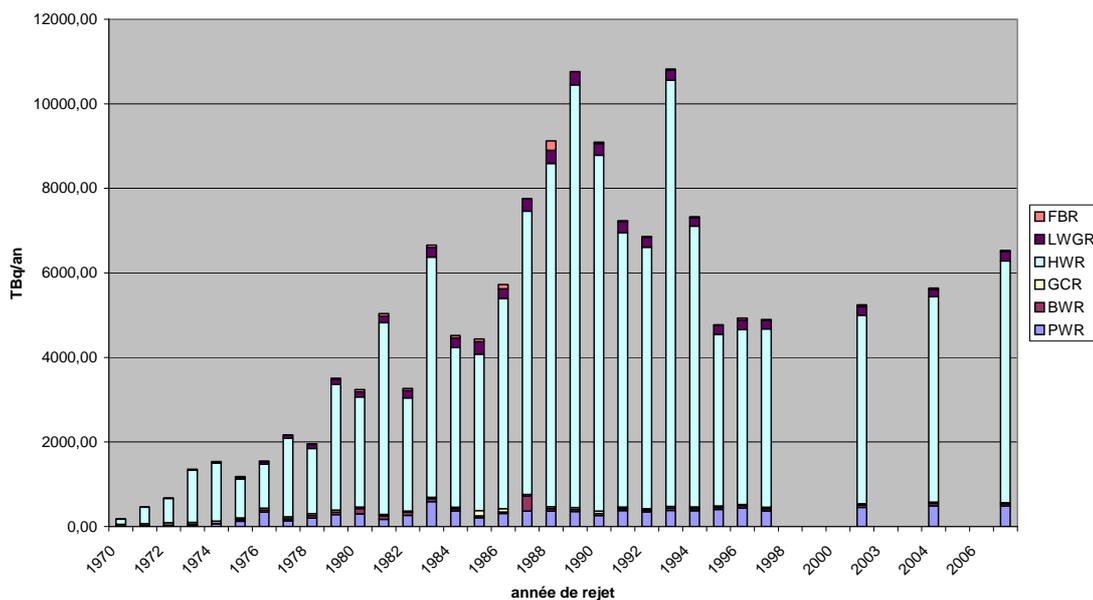


Rejets liquides en tritium normalisés pour les réacteurs nucléaires (données UNSCEAR)



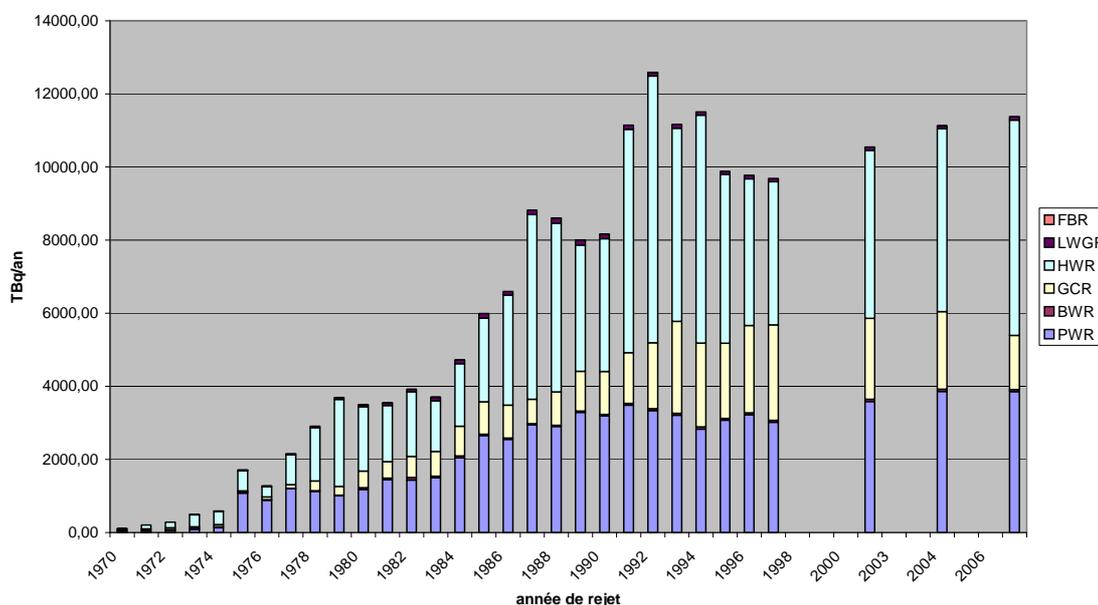
Les bilans des rejets de tritium, par voies gazeuse et liquide, des différents types de réacteurs nucléaires sont reportés sur les deux graphes ci-après pour la période 1970-2007. Ces bilans ont été établis en multipliant les taux de rejets normalisés par les énergies produites annuellement pour chaque type de réacteur.

Rejets atmosphériques annuels en tritium des réacteurs nucléaires (données UNSCEAR)



Comme évoqué ci-avant, les rejets atmosphériques en tritium à l'échelle mondiale (de l'ordre de 500 à 600 TBq.an⁻¹ pour les dix dernières années) sont très majoritairement dus aux réacteurs à eau lourde PHWR (85 à 90 %), alors qu'ils ne fournissent qu'environ 5 % de la production nette d'électricité nucléaire. A contrario, les réacteurs à eau légère (PWR et BWR) ne contribuent aux rejets en tritium gazeux qu'à hauteur d'un peu moins de 10 % alors que ces réacteurs fournissent près de 85 % de la production nette mondiale d'électricité.

Rejets liquides annuels en tritium des réacteurs nucléaires (données UNSCEAR)



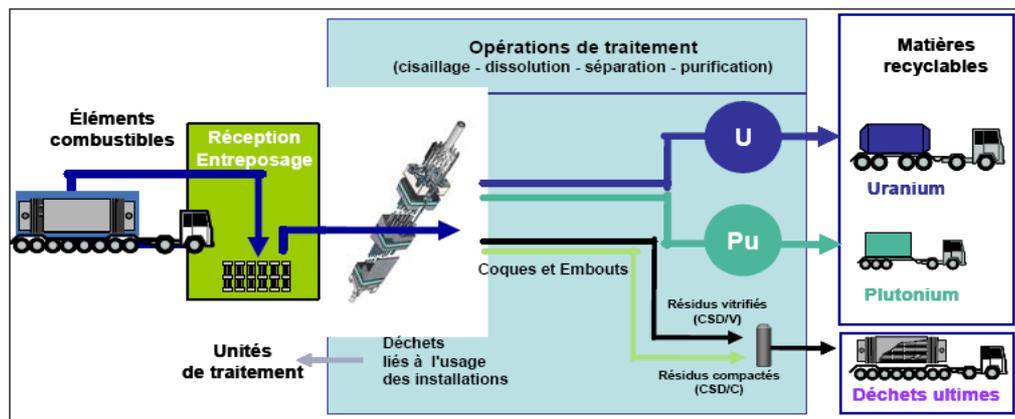
Les rejets liquides de tritium à l'échelle mondiale (de l'ordre de 10 000 à 12 000 TBq.an⁻¹ pour les dix dernières années) sont principalement dus aux réacteurs à eau lourde PHWR (45 à 50 %), aux réacteurs PWR (30 à 40 %) et aux réacteurs graphite-gaz GCR (10 à 20 %). Toutefois, comme évoqué ci-avant, les réacteurs PHWR et GCR ne fournissent respectivement qu'environ 5 et 1 % de la production nette mondiale d'électricité nucléaire, alors que la part des réacteurs PWR est proche de 65 %.

2.2.2.2 Les usines de traitement de combustibles usés

Les usines de traitement de combustibles usés sont les principales installations nucléaires amenées à rejeter du tritium principalement dans le milieu marin. Le tritium de fission est en effet libéré, pour sa plus grande part, lorsque le combustible irradié, déchargé des centrales nucléaires, est mis en solution pour être traité.

L'objectif industriel du traitement des combustibles usés, basé sur le procédé PUREX, consiste, d'une part à séparer, purifier et conditionner les matières nucléaires, uranium et plutonium, en vue de leur recyclage dans les réacteurs nucléaires de puissance, notamment sous forme de combustibles MOX, d'autre part à séparer et conditionner les déchets ultimes, produits lors de ces opérations, dans des matrices stables adaptées à leur contenu radioactif en vue de leur stockage définitif (par exemple les conteneurs de verre pour les produits de fission). L'établissement AREVA NC de La Hague est aujourd'hui le premier site de traitement industriel des combustibles usés au monde avec une capacité de traitement maximale autorisée de 1 700 tonnes par an.

Schéma simplifié du procédé PUREX



Les opérations réalisées dans ces usines consistent à cisailier les combustibles en tronçons de quelques centimètres, à les dissoudre dans l'acide nitrique à l'ébullition puis à clarifier les solutions obtenues par centrifugation afin de séparer les corps insolubles. L'uranium et le plutonium sont ensuite séparés des produits de fission et purifiés par un procédé d'extraction liquide-liquide utilisant un solvant sélectif, le tributyl-phosphate (TBP), mélangé à un diluant organique inerte. Les produits finis purifiés sont ensuite entreposés, sous forme de nitrate d'uranyle (ou d'oxyde d'uranium) et d'oxyde de plutonium, dans l'attente de leur recyclage.

Les quantités de tritium de fission introduites dans l'usine de traitement avec le combustible usé dépendent principalement du type de réacteur dans lequel ce dernier a été irradié et du type de matériau de gainage entourant le combustible. Comme évoqué précédemment, le tritium est formé dans le combustible par fission ternaire directe des isotopes de l'U et du Pu (à plus de 80 %), par fission ternaire indirecte et activation d'éléments légers (formation via l'⁶He puis l'⁶Li) et par capture électronique suivie d'une désintégration (formation via l'³He et l'¹⁶O). Les quantités de tritium présentes dans le combustible, évaluées à partir des programmes de calcul d'évolution (code CESAR 4) sont de l'ordre de 20 TBq.t_U⁻¹ pour un combustible EL-UOX irradié à 45 000 MWj.t_U⁻¹, enrichi à 3,7 % et refroidi 4 ans, ces caractéristiques étant proches de celles des combustibles actuellement traités sur le site de La Hague.

Comme indiqué précédemment, lors du séjour en réacteur, une fraction du tritium contenue dans le combustible diffuse dans la gaine du fait de son faible rayon atomique et du gradient thermique, ce phénomène étant limité par la formation, dans le cas des réacteurs à eau légère, de couches de zircone (ZrO₂) sur les parois interne et externe de la gaine. Le tritium reste ainsi piégé puis précipite sous forme d'hydrures lors du déchargement du combustible du réacteur et de son entreposage en piscine de désactivation. La répartition du tritium entre le combustible et la gaine dépend notamment du type de réacteur, du type de combustible, de son historique d'irradiation et de la vitesse de formation de la couche d'oxyde interne. L'évolution depuis quelques années des rejets annuels de tritium dans les effluents liquides de l'établissement de La Hague semble montrer que la fraction restant dans l'oxyde peut atteindre des valeurs de l'ordre de 80 % des quantités théoriques calculées, alors que le pourcentage présent dans les coques pris en compte lors de la conception de l'usine UP3 était plutôt de l'ordre de 60-70 % [17]. Cette évolution semble confirmer le fait qu'à partir d'une certaine gamme de taux de combustion, l'accroissement de la couche de zircone interne limite de plus en plus le transfert du tritium dans la gaine alors que celui-ci continue d'être produit par fission ternaire au sein de l'oxyde combustible (des investigations complémentaires sont actuellement menées par AREVA et le CEA pour confirmer ces différents points).

Après le cisailage des assemblages, la majeure partie du tritium contenue dans l'oxyde combustible, non piégée dans les gaines, est libérée lors de la dissolution de l'oxyde puis retrouve sous forme liquide en quasi-totalité (~ 99 %) dans les eaux dites « tritiées ». Dans ces conditions, seulement 1 à 2 % du tritium contenu dans le combustible s'échappe dans les gaz de dissolution (une partie refluant dans le dissolvant avec l'acide recombinaison), moins de 1 % étant finalement rejeté à l'atmosphère sous forme gazeuse par le biais de la ventilation « procédé ».

Les effluents tritiés sont ensuite rejetés en mer en intégralité compte tenu de la très forte dispersion apportées par les courants marins et de la dilution isotopique dans l'eau de mer. L'impact radiologique des rejets dans l'eau de mer est considérablement réduit car, outre la dispersion et la dilution, certaines voies d'atteinte ne sont pas concernées : pas de transfert aux chaînes alimentaire terrestres et surtout absence d'utilisation de l'eau de mer comme eau de boisson. Pour ce qui concerne le site de La Hague et compte tenu des modes de vie locaux, l'impact d'un TBq de tritium gazeux, de l'ordre de 10^{-3} μSv (groupe de référence terrestre), est environ 1 000 fois plus important que l'impact d'un TBq rejeté par voie liquide (groupe de référence marin). Ainsi, l'impact dosimétrique annuel des rejets liquides et gazeux de tritium sur les groupes de référence est actuellement inférieur à $0,1 \mu\text{Sv}\cdot\text{an}^{-1}$, soit moins de 1% de l'impact total pour chacun de ces groupes qui est de l'ordre de 10 à 20 μSv . A cet égard, il faut également rappeler qu'il n'existe pas, à l'heure actuelle, de procédé industriel « raisonnable », sur le plan notamment technico-économique, permettant de séparer et de concentrer le tritium, ni de conditionnement fiable permettant de le confiner sur le long terme ; des études récentes [4] ont en particulier conclu qu'aucun procédé de séparation et de récupération n'a été exploité à une échelle industrielle comparable à celle du traitement de plusieurs dizaines de milliers de m^3 par an d'eau tritiée fortement diluée.

Cette stratégie de gestion du tritium a été adoptée par les usines de traitement de combustibles usés localisées sur des sites côtiers (La Hague, Sellafield, Tokai-Mura et Rokkasho-Mura).

Dans l'éventualité d'installations nouvelles, dont la localisation n'autoriserait pas le rejet de tritium (par exemple usine à l'intérieur des terres, non située au bord de fleuves à débits importants et régulier), le procédé de traitement des combustibles devrait a priori être adapté pour limiter les volumes d'effluents tritiés produits et séparer puis concentrer le tritium afin de l'entreposer (pour décroissance) ou le conditionner de façon sûre en vue d'un stockage direct, tout en limitant les transferts de risques sur les travailleurs et l'environnement (exposition accrue des opérateurs lors de la mise en œuvre des procédés, augmentation des rejets gazeux...). En tout état de cause, les choix et dispositions qui permettraient d'optimiser les rejets devraient être définis dès la phase de conception de la future usine et du choix de son site. Les enjeux sur le plan technique et économique et sur le plan de la sûreté et de la radioprotection, associés à la mise en place d'un traitement du tritium et à la production concomitante de déchets tritiés, devraient être comparés à ceux induits par un rejet direct.

Les tronçons de gaine récupérés après dissolution (« coques ») sont ensuite rincés puis compactés, ce procédé ayant été adopté notamment pour les usines de La Hague et la nouvelle usine de Rokkasho-Mura (d'autres procédés de conditionnement tels que la cimentation ont également été mis en œuvre). Des essais menés en laboratoire ont permis de vérifier l'absence de relargage de tritium des coques lors de tests de lixiviation (stabilité des hydrures).

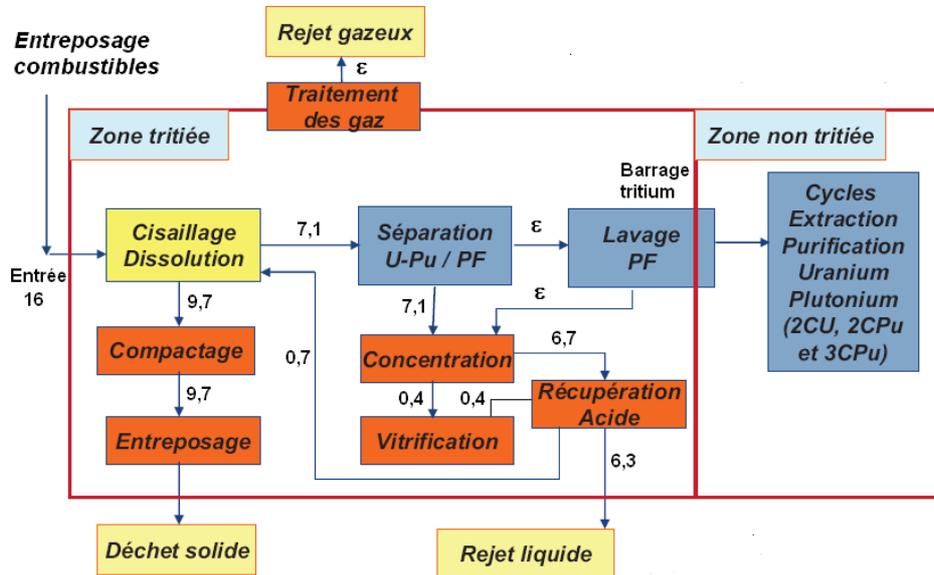
Les usines de La Hague ont été conçues de manière à confiner le tritium dans un volume d'eau aussi faible que possible dans les unités de tête d'usine (cisailage-dissolution) et dans les unités de concentration des solutions de produits de fission, dites « zone tritiée », les objectifs recherchés étant d'éviter la dilution du tritium dans le reste de l'usine (simplification de la manipulation d'acide nitrique dans la zone « non tritiée »), de limiter le risque de contamination des travailleurs, de réduire au maximum les rejets de tritium sous forme gazeuse et de favoriser son rejet sous forme liquide afin de bénéficier de la réduction importante de l'impact apportée par la dilution dans le milieu marin.

Lors des opérations d'extraction en phase solvant (1^{er} cycle UPu) suivant l'étape de dissolution du combustible, le tritium contenu dans la solution de dissolution reste principalement en phase aqueuse avec les produits de fission, une faible fraction pouvant néanmoins suivre le solvant. Le procédé utilisé dans les ateliers de La Hague consiste à limiter autant que possible l'ajout d'eau fraîche en tête d'usine pour éviter la dilution de l'eau tritiée et à établir un « barrage tritium » au niveau du 1^{er} cycle d'extraction en effectuant un lavage du solvant « chargé » par de l'acide nitrique dilué non tritié de façon à réextraire quantitativement dans les raffinats d'extraction le tritium fixé sur le solvant. Ces raffinats contenant les produits de fission sont ensuite concentrés dans des évaporateurs, le tritium restant préférentiellement en phase vapeur et se retrouvant dans les condensats d'évaporation. Ces derniers sont ensuite décontaminés et rectifiés dans l'unité de récupération de l'acide tritié pour produire de l'acide nitrique concentré en partie recyclé à la dissolution, les distillats produits contenant le tritium rejoignant finalement le flux des « effluents tritiés et iodés », très faiblement actifs, directement rejetés en mer après contrôle [17].

Il convient de noter que les principales usines de traitement « commerciales » en service dans le monde (usines THORP à Sellafield et Rokkasho-Mura au Japon) ont adopté un procédé similaire.

Un exemple de distribution du tritium dans une usine de traitement figure sur le schéma ci-après. Les données chiffrées sont issues du retour d'expérience d'exploitation de l'usine UP3 acquis quelques années après sa mise en service.

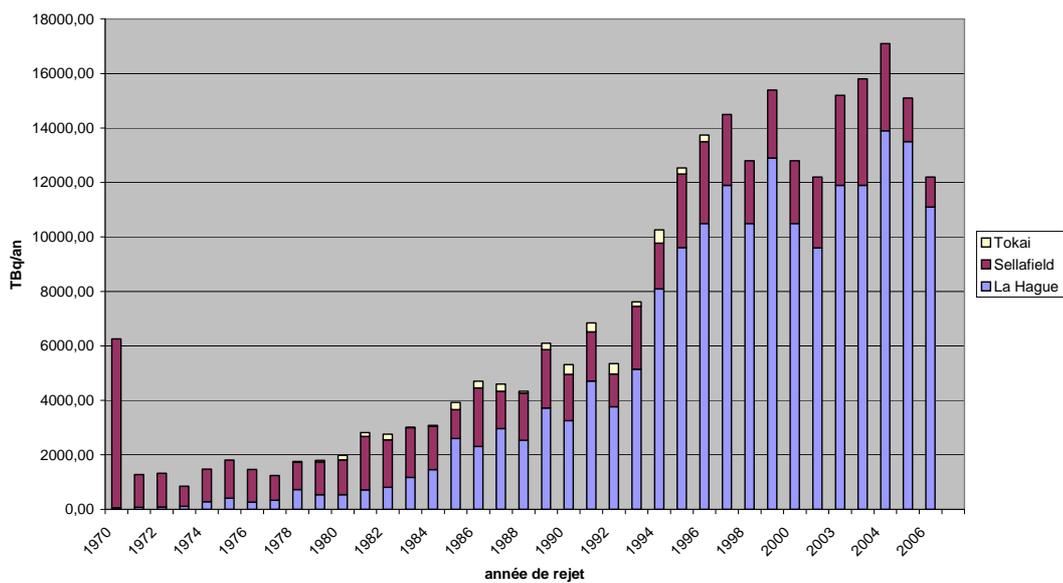
*Distribution du tritium dans les flux d'une usine de traitement (en TBq.t_{ui}⁻¹)
(cas d'un combustible irradié à 33 000 MWj.t⁻¹ et refroidi 3 ans)*



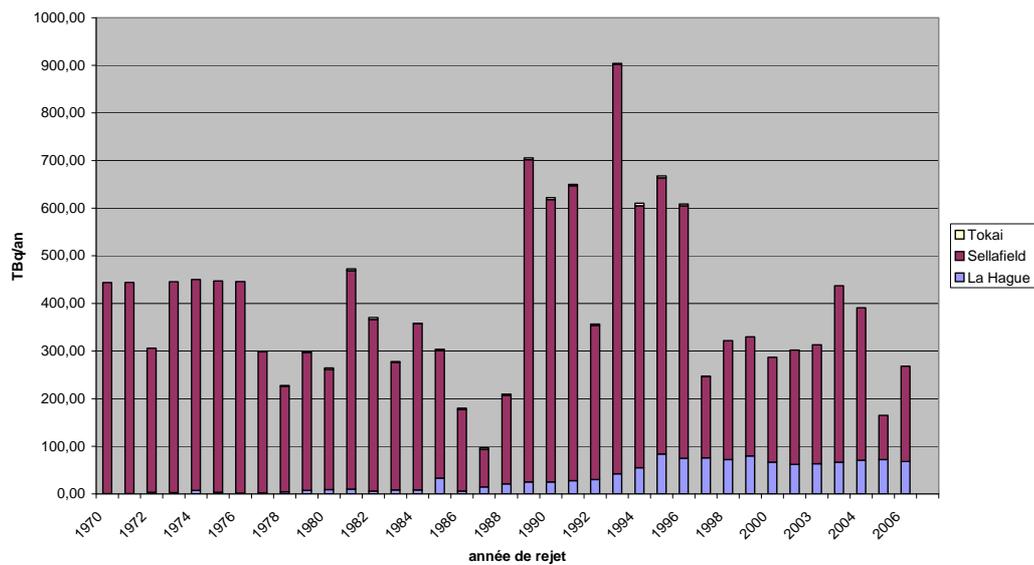
Les performances du procédé sont telles que le facteur de dilution du tritium contenu dans les effluents tritiés produits dans l'unité de récupération acide est de l'ordre de 1/160 000 000. En effet, pour 1000 t de combustible retraitées par an, de l'ordre de 12 000 TBq de tritium (soit 230 g d'eau tritiée) se retrouvent dilués dans 40 000 t d'eau (soit une activité volumique de l'ordre de 3.10⁸ Bq.L⁻¹), ces effluents étant ensuite mélangés, avant rejet, avec les effluents « iodés » provenant des ateliers de tête d'usine. Actuellement, 100 000 à 120 000 m³ d'effluents tritiés et iodés sont rejetés annuellement via la conduite de rejet du site de La Hague, le facteur de dilution dans le milieu marin étant de l'ordre de 0,76 Bq.m⁻³ par TBq.an⁻¹ rejeté, soit une dilution de près d'un facteur 10⁷ des effluents rejetés.

L'évolution des rejets de tritium dans les effluents liquides et gazeux des usines de La Hague, Sellafield et Tokai-Mura [1][18][19][20], ainsi que le bilan du traitement des combustibles usés dans les usines de La Hague [21] sont reportés sur les figures ci-après. La contribution des autres installations de traitement de combustibles à l'échelle pilote ou semi-industrielle (usine de Dounreay, pilote WAK (Karlsruhe)...) est négligeable devant celle de ces usines, les données concernant les installations militaires n'étant pas par ailleurs disponibles (usines de Krasnoyarsk, Tomsk-7 (Russie)...).

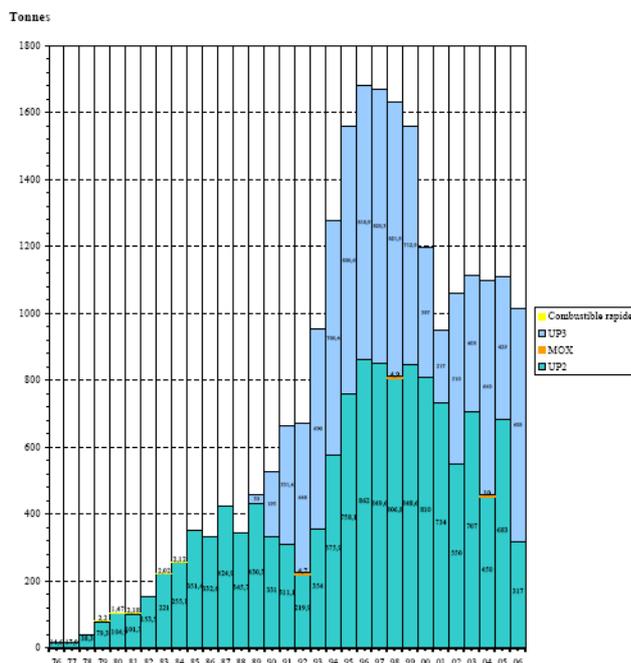
Rejets liquides annuels en tritium des usines de retraitement (données UNSCEAR)



Rejets atmosphériques annuels en tritium des usines de retraitement (données UNSCEAR)



**Traitement annuel combustibles oxydes UP2/UP3
Situation au 1^{er} janvier 2007**



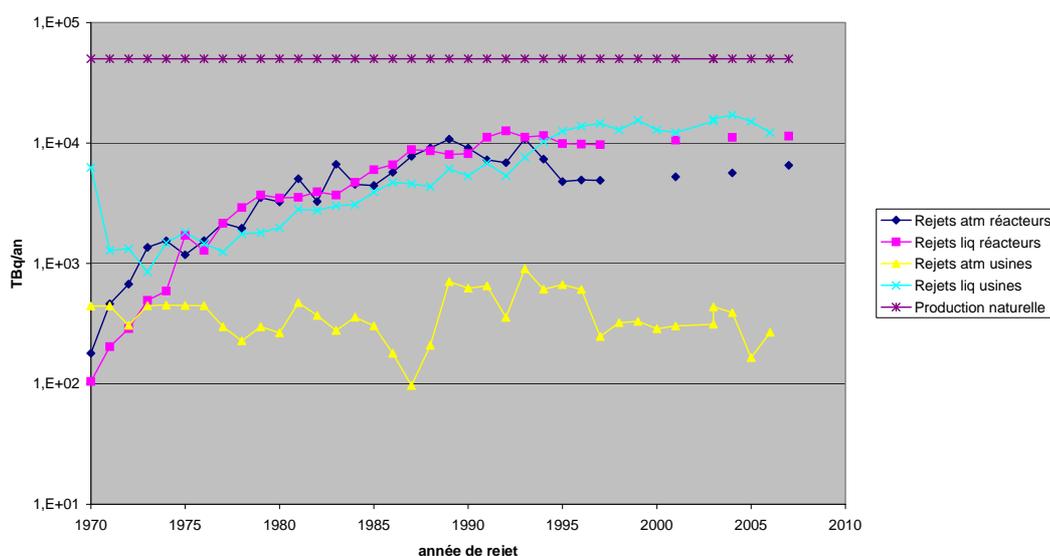
Les figures ci-dessus montrent que l'usine de La Hague est le principal contributeur en matière de rejets de tritium par voie liquide dans le milieu marin (environ 80 % du rejet total sur les dix dernières années), ceci pouvant notamment être expliqué par les difficultés de démarrage de l'usine THORP (5650 t ont été traitées sur la période 1994-2005 pour une capacité de traitement nominale de 850 t_{Uj}.an⁻¹). Les évolutions des rejets de tritium suivent en première approximation celle des quantités de combustibles traités et plus exactement celle de l'énergie équivalente produite (pour les usines de La Hague, les taux de combustion ont augmenté en moyenne de 30 000 à 43 000 MWj.t_{Uj}⁻¹ et les temps de refroidissement ont diminué en moyenne de 9 à 7 ans sur la période 1994-2007). Toutefois, il faut constater que les rejets moyens de tritium dans les effluents liquides pour la période 2001-2007 (de l'ordre de 12 000 TBq.an⁻¹) sont légèrement supérieurs à ceux de la période 1994-2000 (de l'ordre de 10 000 TBq.an⁻¹) alors que le tonnage traité a diminué significativement entre ces deux périodes (de 1 500 à 1 100 t_{Uj}.an⁻¹ environ). Ce constat est à associer à l'augmentation des taux de combustion des combustibles traités et à celle concomitante de la fraction de tritium restant occluse dans l'oxyde combustible et par conséquent rejetée en intégralité avec les effluents liquides (fraction pouvant atteindre plus de 80 % des quantités théoriques calculées, l'évolution de l'activité massique du tritium en fonction du taux de combustion n'étant par ailleurs pas linéaire).

Les rejets de tritium gazeux de l'usine THORP de Sellafield sur la période 1997-2006 (de l'ordre de 240 TBq.an⁻¹ en moyenne) sont environ trois fois supérieurs à ceux des usines de La Hague sur la même période (de l'ordre de 70 TBq.an⁻¹), alors que les quantités de combustibles traitées sont nettement inférieures (de l'ordre de 5 600 tonnes à comparer à 11 000 tonnes environ, les combustibles traités sur les deux sites ayant des caractéristiques comparables). L'exploitant du site de Sellafield a, depuis quelques années, mis en œuvre de nouvelles dispositions pour limiter ces rejets et orienter davantage le tritium vers les effluents liquides.

Pour ce qui concerne le site de La Hague, les valeurs actuelles de rejets liquides et gazeux restent assez éloignées des limites réglementaires fixées par l'arrêté d'autorisation de prélèvements d'eau et de rejets du 8 janvier 2007, respectivement égales à 18 500 et 150 TBq.an⁻¹ (de l'ordre de 70 et 50 % de ces limites). Il faut toutefois souligner que la limite de rejet de tritium par voie liquide pourrait être atteinte en cas d'augmentation des quantités de combustibles traitées dans les usines UP3 et UP2-800 (tonnage maximal autorisé de 1 700 t.an⁻¹), compte tenu également de l'évolution attendue des caractéristiques de ces combustibles (augmentation des taux de combustion et diminution des temps de refroidissement notamment) et de l'incertitude associée à l'évolution de ces rejets dans le temps (fraction du tritium restant dans le combustible). Il en est de même pour un certain nombre de radionucléides présents dans les effluents rejetés (¹⁰⁶Ru...).

L'évolution des rejets annuels de tritium par voies liquide et gazeuse, pour l'ensemble des réacteurs nucléaires et des principales usines de traitement de combustibles usés durant la période 1970-2007, est reportée sur le graphe ci-après, les bilans de ces rejets étant également comparés à la production annuelle de tritium naturel.

Comparaison des rejets annuels en tritium de l'industrie nucléaire civile et de la production annuelle de tritium naturel (données UNSCEAR)



Les rejets liquides des réacteurs et des usines de traitement ont augmenté durant cette période d'environ deux ordres de grandeur alors que le niveau des rejets gazeux des usines est resté sensiblement constant. Depuis 1995, date à partir de laquelle les nouvelles usines UP3 et UP2-800 de La Hague ont pratiquement atteint leur capacité de traitement nominale, les rejets liquides totaux des usines de traitement dépassent ceux des réacteurs nucléaires. En 2007, ces rejets sont du même ordre de grandeur et de l'ordre de 11 000 TBq.an⁻¹. Les rejets atmosphériques totaux sont de l'ordre de 6 000 TBq.an⁻¹ et de l'ordre de 300 TBq.an⁻¹ respectivement pour les réacteurs nucléaires et les usines de traitement. Ces valeurs sont à comparer à la production naturelle de tritium sous forme d'eau tritiée qui atteint 50 à 70 PBq par an.

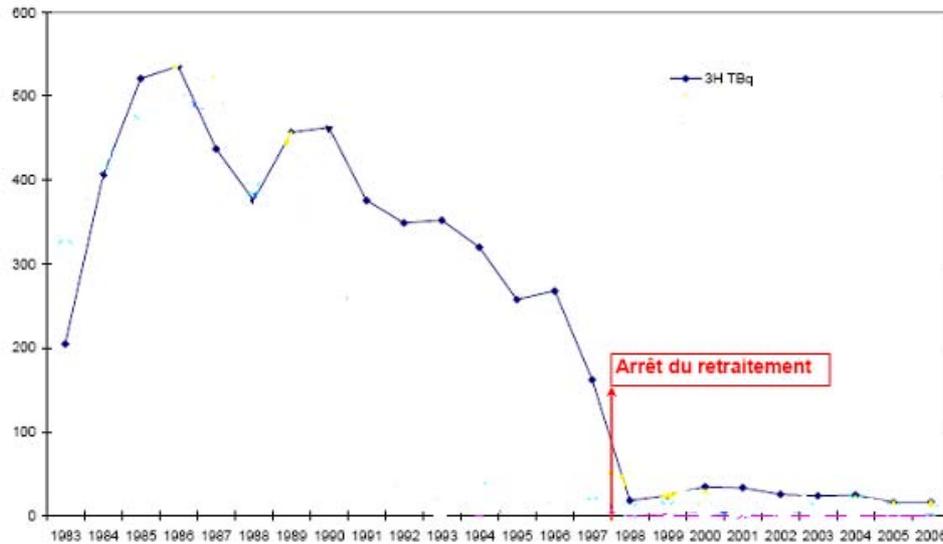
2.2.2.3 Réacteurs dédiés à la production de tritium et autres installations nucléaires

En France, les autres installations nucléaires civiles et militaires et les réacteurs dédiés à la production de tritium qui rejettent ce radio-isotope sous forme liquide ou gazeuse sont situés principalement sur les sites CEA de Marcoule, Valduc et Bruyères-le-Châtel.

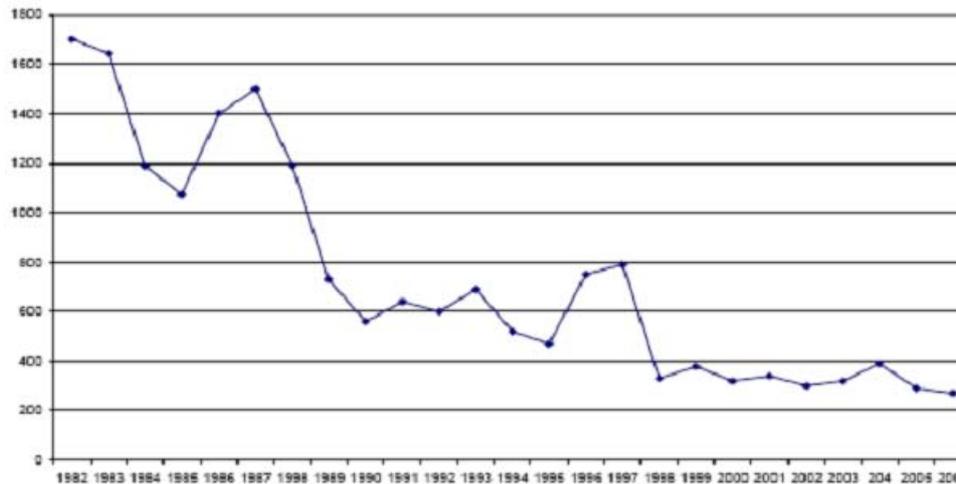
Les évolutions des rejets de tritium dans les effluents liquides et gazeux du centre CEA de Marcoule pour la période 1983-2006 sont reportées sur les figures ci-après [22]. Les installations du site de Marcoule sont constituées notamment d'une « INBS » (production de matières nucléaires intéressant la défense) et de 4 INB civiles (Atalante, Phénix, Mélox et Centraco) auxquelles il convient d'ajouter les installations de CISbio. L'ensemble des effluents liquides radioactifs transite par la station de traitement des effluents liquides de l'INBS pour épuration et contrôle avant rejet.

L'activité en tritium des effluents rejetés dans le Rhône durant la période 2003-2007 est de l'ordre de 20 TBq.an⁻¹ en moyenne et a atteint aujourd'hui une valeur palier, la limite réglementaire autorisée étant de 2 500 TBq.an⁻¹ (arrêté interministériel datant de 1981 - révision des autorisations de rejets en cours). Cette activité rejetée a considérablement diminué depuis 1998, date de l'arrêt définitif d'exploitation de l'usine de traitement de combustibles UP1, le niveau des rejets ayant atteint 500 TBq dans les années 1980. Les rejets en tritium gazeux du site de Marcoule diminuent progressivement depuis les années 1990 pour atteindre une valeur palier de l'ordre de 350 TBq en 2007, la limite réglementaire autorisée étant de 10 000 TBq.an⁻¹ pour l'INBS. Ces rejets sont dus principalement, depuis 1998 (date d'arrêt de l'usine UP1), au fonctionnement des réacteurs Célestin produisant du tritium et de l'atelier tritium de Marcoule (ATM) assurant l'extraction du tritium des éléments provenant des réacteurs Célestin. Les impacts dosimétriques annuels associés aux rejets liquides et gazeux de tritium sont respectivement inférieurs à 0,1 µSv et de l'ordre de 7 µSv en moyenne sur la période 2002-2006 pour les groupes de référence concernés.

Rejets liquides annuels en tritium du site de Marcoule (en TBq)



Rejets gazeux annuels en tritium du site de Marcoule (en TBq)



Concernant le centre CEA de Valduc, l'évolution des rejets de tritium dans les effluents gazeux pour la période 1969-2007 est reportée sur la figure ci-après.

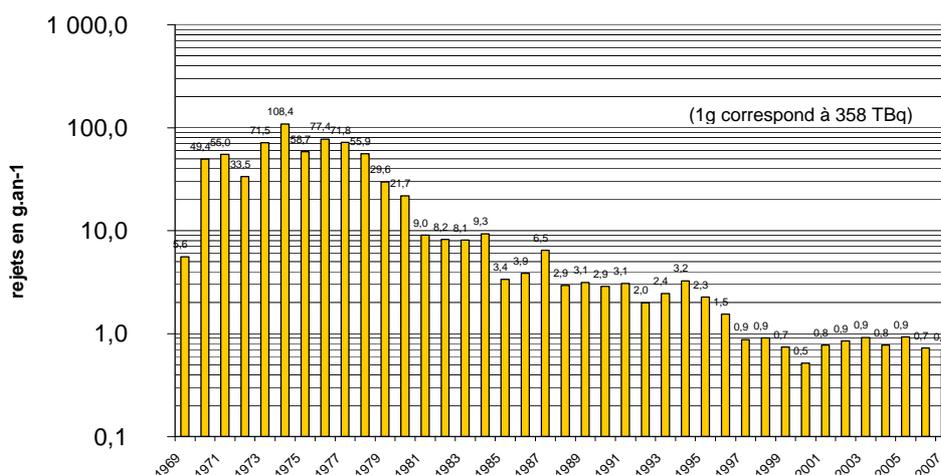
Les rejets gazeux sont liés principalement aux activités de production des composants nucléaires des armes (dont la purification du tritium) et au traitement et à l'entreposage des déchets tritiés produits. Les rejets en tritium gazeux du CEA/Valduc ont conduit à un marquage en tritium mesurable des eaux du sol, des nappes et des cours d'eau (l'activité volumique des eaux des sources a dépassé les 1000 Bq/L dans les années 1975-1980). Ces rejets ont considérablement décliné et sont passés d'environ 35 000 TBq.an⁻¹ (100 g.an⁻¹) à un peu moins de 350 TBq.an⁻¹ (1 g.an⁻¹) actuellement (rejet de 251 TBq en 2007), correspondant à moins de 20 % de la limite actuelle de l'autorisation de rejet annuel (1850 TBq). La diminution des rejets résulte principalement de l'amélioration de la conception des installations manipulant du tritium (confinement du procédé, limitation des fuites...), de la mise en place d'un traitement de l'air (ajout de modules de détritiation sur les réseaux de ventilation des boîtes à gants, entreposage en bidons de polyéthylène ou piégeage sur zéolithe des quantités d'eau tritiée récupérées...) et de la mise en place d'une politique de traitement des déchets tritiés [23][24].

Le traitement des déchets tritiés constitue actuellement la principale source de rejets (de l'ordre de 80 % des rejets totaux). Seuls les déchets solides de forte activité sont traités pour diminuer leur taux de dégazage et par conséquent diminuer les rejets de tritium. Les déchets métalliques issus de la première barrière de confinement en contact direct avec le tritium (circuits de procédé) sont triés, découpés et fondus sous vide, les déchets solides organiques fortement dégazants provenant de la deuxième barrière (gants et panneaux de boîtes à gants, emballages en vinyle...) étant déchiquetés, étuvés et compactés. L'air extrait des boîtes à gants dans lesquelles sont effectuées ces opérations, est détritiié, produisant ainsi de l'eau tritiée piégée ensuite sur des zéolithes, elles-mêmes conditionnées en conteneurs étanches en attente de recyclage. Les déchets détritiiés récupérés sous

forme de lingots ou de colis compactés sont conditionnés puis dirigés vers les installations d'entreposage de « faible activité » (taux de dégazage des colis inférieur à $50 \text{ MBq.j}^{-1}.\text{colis}^{-1}$), les déchets non traitables, solides ou liquides, provenant notamment de la deuxième barrière de confinement (structures de boîtes à gants, gaines de ventilation, métaux divers...), étant dirigés vers les entreposages de « moyenne activité » (taux de dégazage des colis supérieur à $50 \text{ MBq.j}^{-1}.\text{colis}^{-1}$). Le taux de dégazage moyen de ces entreposages est de l'ordre de 1 % par an en moyenne et dépend principalement de la température ambiante. Les déchets anciens les plus dégazants ont été, quant à eux, mis en surfûts dans l'attente de leur traitement.

Enfin, il faut noter que le centre de Valduc ne dispose plus d'autorisation de rejets liquides depuis 1995 (rejet maximal de 3 mg (1 TBq) en 1975 puis de 30 à 300 µg (0,01 à 0,1 TBq) de 1975 à 1995).

Rejets atmosphériques de Tritium à Valduc en gramme par an de 1969 à 2007

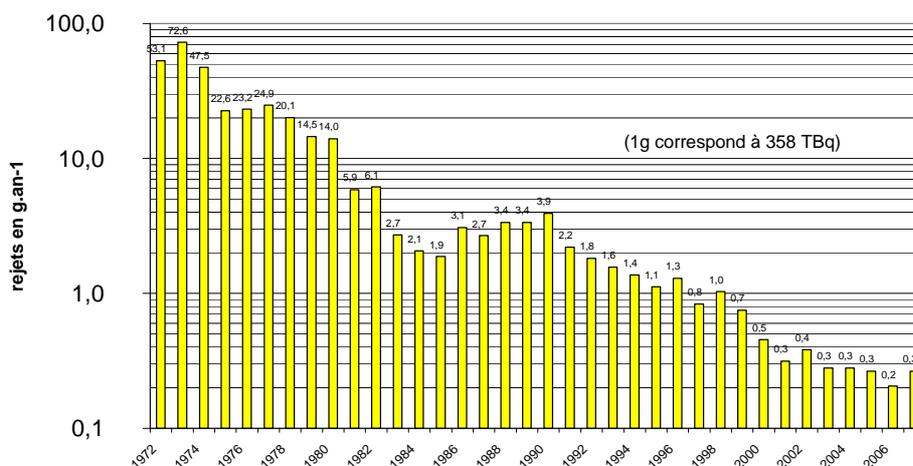


Concernant le centre CEA de Bruyères-le-Châtel, l'évolution des rejets de tritium dans les effluents gazeux durant la période 1972-2007 est reportée sur la figure ci-après.

Les rejets gazeux actuels de tritium sont liés principalement aux activités d'assainissement et de démantèlement des installations « tritium » (ces activités ayant été progressivement transférées sur le centre de Valduc) et sont dus en particulier au dégazage des bâtiments et des colis de déchets conditionnés, les unités de détritiation ayant été par ailleurs démantelées. Il faut noter que la grande majorité des déchets tritiés produits seront traités dans les unités de traitement du centre de Valduc ou directement entreposés sur ce site. Les rejets ont considérablement décliné depuis les années 1970 et sont passés d'environ $21\ 000 \text{ TBq.an}^{-1}$ (60 g.an^{-1}) à un peu moins de 110 TBq.an^{-1} ($0,3 \text{ g.an}^{-1}$) actuellement (rejet de $95,2 \text{ TBq}$ en 2007), la limite de rejet réglementaire pour le tritium gazeux étant de 1850 TBq.an^{-1} .

Le centre de Bruyères-le-Châtel produit très peu d'effluents liquides moyennement ou fortement actifs et, de ce fait, ne dispose pas d'une station de traitement des effluents. Les rejets liquides sont constitués actuellement des eaux usées des laboratoires inactifs et des effluents douteux des laboratoires actifs évacués via la station d'épuration chimique et rejetés en rivière. Ces rejets ont considérablement décliné depuis les années 1970 et sont passés d'environ 300 GBq.an^{-1} (moins de 1 mg.an^{-1}) à un peu moins d'une dizaine de GBq.an^{-1} dans les années 1990 et à environ 1 GBq.an^{-1} actuellement, la limite de l'autorisation de rejet annuel étant de 75 GBq .

Rejets atmosphériques de Tritium à Bruyères en gramme par an de 1972 à 2007



Les moyennes actuelles des rejets annuels de tritium par voies liquide et gazeuse pour l'ensemble des centres de recherche du CEA sont respectivement de l'ordre de 20 TBq (dont 99 % pour le centre de Marcoule) et 700 TBq (dont 85 % pour les centres de Marcoule et Valduc) [25]. Pour l'ensemble de ces installations, les rejets atmosphériques sont largement prédominants et sont supérieurs d'un facteur 7 environ aux rejets gazeux de tritium émis par le parc de réacteurs d'EDF et les usines de traitement de combustibles usés de La Hague (respectivement de l'ordre de 30 et 70 TBq.an⁻¹ en moyenne).

Enfin, pour ce qui concerne les autres pays, la quantité de tritium rejetée dans l'atmosphère à partir des réacteurs dédiés à la production de tritium et autres installations de recherche est de l'ordre de 400 TBq pour le Canada pour l'année 2006 [14]. Ces rejets étaient de l'ordre de 10 000 TBq.an⁻¹ dans les années 1990 pour les Etats-Unis [26].

2.2.2.4 Sources industrielles et petits utilisateurs

Deux utilisations industrielles importantes du tritium peuvent être mentionnées. L'une est la production et l'utilisation de molécules marquées pour des applications médicales ou dans le cadre de recherches scientifiques. Les installations d'Amersham, en Grande-Bretagne, qui rejetaient 500 TBq.an⁻¹ d'effluents atmosphériques avant 2000, rejettent aujourd'hui de l'ordre d'une centaine de TBq.an⁻¹ [27]. Les rejets liquides de tritium lié sous forme de composés organiques dissous en baie de Cardiff (de l'ordre de 500 TBq.an⁻¹ dans les années 1990) ont « marqué » la chaîne alimentaire de l'environnement estuarien, des facteurs de concentration importants (jusqu'à des valeurs de 7000) ayant été observés dans la faune marine [28].

La seconde utilisation industrielle est la production au Canada d'objets luminescents (éclairage...) contenant du tritium sous forme de gaz. Une plaque luminescente « EXIT » peut par exemple contenir de 0,1 à 0,5 TBq. Les rejets annuels liés à cette industrie sont passés progressivement de 1 600 TBq en 2000 à 100 TBq sous forme d'eau tritiée et à 300 TBq sous forme gazeuse en 2006. Ces objets luminescents semblent être à l'origine du marquage des eaux dans certaines décharges américaines [27].

Les petits utilisateurs de molécules marquées (hôpitaux, laboratoires pharmaceutiques, recherche en biologie...) produisent peu de rejets. Il faut noter que le centre CEA de Saclay rejette actuellement de l'ordre de 20 TBq.an⁻¹ de tritium gazeux, ces rejets étant essentiellement liés aux activités de recherche en biologie médicale [25].

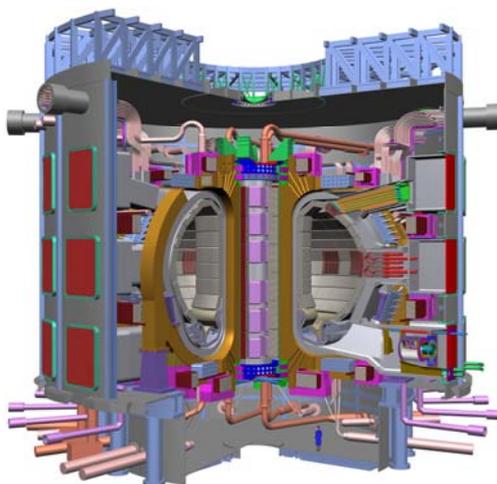
2.2.2.5 Futures sources de production de tritium (ITER)

Les réacteurs à fusion utiliseront et produiront du tritium en grandes quantités. A titre d'exemple, le Joint European Torus (JET), de puissance égale à 16 MWth, a utilisé au total 20 g de tritium.

La future installation ITER en cours d'implantation sur le site de Cadarache vise à démontrer la maîtrise de l'énergie de fusion pendant des durées de l'ordre de 400 s avec une puissance d'environ 500 MWth (soit environ

40 000 « décharges » nominales sur une durée de vie de 20 ans). L'inventaire maximal en tritium de l'installation serait de 4 kg. La consommation annuelle de tritium de l'installation devrait être de l'ordre de 1,2 kg (montée progressive en puissance prévue sur 10 ans). Les données concernant les rejets atmosphériques et liquides ne sont pas encore fixées au stade actuel du projet, l'objectif recherché par l'exploitant d'ITER étant d'optimiser au maximum ces rejets, en premier lieu les rejets atmosphériques. Ces derniers pourraient être de l'ordre de quelques grammes par an [29][30].

Vue en coupe du réacteur ITER



Dans un but d'exhaustivité, il est à noter que les lasers de puissance, comme le Laser MegaJoule (LMJ) en France, devraient aussi rejeter quelques milligrammes de tritium par an.

2.2.2.6 Inventaire des déchets tritiés

Il convient tout d'abord de rappeler qu'entre 1967 et 1982, environ 20 PBq de déchets tritiés ont été éliminés par déversement en mer. Ces immersions ont été interrompues à la suite de la convention de Londres (1972) et aux moratoires qui ont suivi, auxquels la France a souscrit.

Filières opérationnelles pour les déchets tritiés

Les filières disponibles pour l'évacuation de déchets tritiés concernent uniquement les déchets solides et liquides les moins actifs, issus notamment des activités des « petits producteurs », susceptibles d'être traités dans les installations SOCATRI ou CENTRACO (de l'ordre de 200 m³.an⁻¹) ou d'être évacués directement vers les sites de stockage actuels de l'ANDRA (CSTFA ou CSFMA), les critères d'acceptation étant toutefois très restrictifs. Pour mémoire, le stockage de déchets contenant des quantités significatives de tritium, de l'ordre de 1 000 TBq (valeur de l'inventaire initial réactualisée en 2003), au Centre de Stockage de la Manche (CSM), a conduit à un marquage durable de l'environnement, notamment à la suite de l'incident de 1976¹⁹.

Ce retour d'expérience a conduit l'ANDRA à limiter fortement les quantités de tritium susceptibles d'être acceptées dans le centre de stockage de déchets de faible et de moyenne activité et à vie courte de Soulaing (CSFMA), mis en service en 1992, pour éviter le marquage par le tritium des sols et de la nappe phréatique [31]. En effet, le tritium, à l'état d'hydrogène tritié, diffuse facilement, du fait du faible diamètre de son noyau, à travers les différentes barrières, y compris à travers les matériaux utilisés habituellement pour confiner les autres radionucléides, puis migre vers le milieu naturel sous forme de gaz ou d'eau tritiée. De par cette capacité à se déplacer facilement, sous forme de relâchement diffus, hors des colis et des ouvrages de stockage (à l'état d'eau tritiée, le tritium est extrêmement mobile et suit l'eau jusqu'à l'exutoire), le tritium peut provoquer un marquage

¹⁹ L'incident de 1976 résulte d'un débordement dans le réseau des eaux pluviales du centre, des eaux de drainage des abords de tranchées contenant, entre autres, des déchets tritiés. Malgré la reprise d'une grande partie de ces déchets, l'ensemble du massif est resté imprégné de tritium, celui-ci diffusant dans la zone non saturée. La mise en place de la couverture, achevée en 1996, a conduit à une diminution d'un facteur 100 environ du débit d'infiltration dans les ouvrages et, par voie de conséquence, du relâchement de tritium au sein du stockage. A titre indicatif, il reste actuellement moins de 300 TBq de tritium immobilisé dans les déchets stockés et les ouvrages. L'activité actuellement relâchée par le stockage est de l'ordre de 40 GBq.an⁻¹, ce flux d'activité ayant décliné de près d'un facteur 1000 depuis la mise en place de la couverture.

de l'environnement facilement détectable (dès quelques Bq.L⁻¹), son impact radiologique restant toutefois très réduit compte tenu de sa faible radiotoxicité.

En pratique, l'acceptabilité des déchets tritiés au CSFMA est étudiée au cas par cas, en fonction notamment des caractéristiques intrinsèques des colis concernés (taux de dégazage...), de leur nombre et de leur mode de conditionnement. Ainsi, même si ceux-ci sont conformes aux spécifications d'acceptation du CSFMA (en particulier : capacité maximale radiologique du centre de 4 000 TBq, taux de dégazage inférieur à 2 GBq.t⁻¹.j⁻¹, LMA de 2.10⁵ Bq.g⁻¹ et activité inférieure à 1 GBq par fût à compacter), la volonté de l'ANDRA de préserver autant que possible l'absence de marquage du site rend, de fait, très difficile l'évacuation de déchets tritiés des différents sites de production, quelle qu'en soit leur origine, sans traitement ou entreposage préalable. Il convient de noter que, malgré les dispositions de conception et d'exploitation adoptées par l'ANDRA, une présence de tritium a été observée depuis quelques années de manière très ponctuelle et localisée dans la nappe sous le centre, sans toutefois pouvoir l'attribuer de façon certaine au stockage.

Le centre de stockage de déchets de très faible activité de Morvilliers (CSTFA), mis en service en 2003, vise le même objectif, le risque de marquage de l'environnement conduisant à limiter l'activité globale acceptée par alvéole. Notamment, un suivi particulier de la migration du tritium est mis en œuvre selon une méthodologie définissant un certain nombre d'indicateurs environnementaux et de seuils indicatifs en termes d'activité totale stockée sur le centre. Dans ce cadre, l'acceptation d'un lot de déchets contenant du tritium est jugée notamment sur la base d'une évaluation préalable de la quantité totale de tritium contenue dans le lot.

Le centre de stockage FAMA de l'Aube



Par ailleurs, les déchets contenant des radionucléides « à vie longue », tels que les déchets de structure (coques et embouts) issus du traitement de combustibles usés aujourd'hui compactés (colis CSD-C), les déchets de graphite issus du démantèlement des réacteurs graphite-gaz où les barres de contrôle des réacteurs à base de carbure de bore (B₄C), peuvent également contenir des quantités significatives de tritium. Celui-ci, piégé dans ces déchets notamment sous forme d'hydrures, y est très peu mobile (le taux de dégazage est inférieur à 10⁻⁶.an⁻¹). Ces déchets sont destinés aux futurs centres de stockage en formation géologique profonde HA/MA-VL et en sub-surface FA-VL actuellement à l'étude. Plus précisément :

- le modèle d'inventaire des colis de déchets HA-VL [32], utilisé par l'ANDRA pour les études de faisabilité du stockage, fait état d'environ 40 000 colis de déchets compactés CSD-C (déchet de type B) produits principalement par les ateliers de cisailage-dissolution des usines de La Hague et contenant au maximum 20 TBq par colis (pour un temps de refroidissement moyen de 8 ans, après déchargement du réacteur), soit un inventaire total de l'ordre de 800 PBq ;

- le dossier établi par l'ANDRA (2004), relatif à la conception d'un centre de stockage en sub-surface des déchets de graphite, fait état d'environ 20 000 tonnes de déchets de graphite issus du démantèlement des réacteurs UNGG de première génération, l'activité totale en tritium contenue dans ces déchets étant estimée à environ 4 670 TBq ;
- les barres de contrôle borées des réacteurs PWR peuvent contenir jusqu'à environ 2 TBq.GWe⁻¹ en fin de vie.

Déchets tritiés sans filière

Les déchets radioactifs contenant du tritium en proportion significative, actuellement sans exutoire, sont majoritairement produits par le CEA dans le cadre de ses activités de recherche et de production, notamment pour ses applications militaires. La majorité des déchets tritiés déjà produits, « purs » ou « mixtes » (associés à de l'uranium ou d'autres radionucléides), sont entreposés sur les sites de Valduc et de Marcoule et représentent un peu plus de 3 500 m³ pour un inventaire estimé de l'ordre de 5 200 TBq (à fin 2007). Ces déchets sont regroupés (après traitement pour les plus chargés) en fonction de leur inventaire en tritium et plus particulièrement de leur taux de dégazage (cf. ci-dessus).

D'autres déchets tritiés sans filière sont issus des applications civiles du CEA (recherches en biologie médicale, exploitation des réacteurs de recherche...) et du nucléaire diffus (« petits producteurs ») dans des secteurs aussi variés que la recherche en biologie, la pharmacie, l'horlogerie ou les transports (peintures luminescentes, ampoules de gaz, solvants, liquides scintillants, molécules marquées, parasurtenseurs...) et la défense nationale, le volume de ces déchets étant évalué à environ 50 m³ pour une activité totale de tritium de 300 TBq à fin 2006 [33]. Ces déchets sont entreposés sur les sites des producteurs.

Enfin, l'installation ITER générera également, à partir des années 2020, des déchets tritiés, successivement lors des phases d'exploitation et de démantèlement. En se basant sur une durée d'exploitation de 20 ans et sur une durée similaire pour la phase de démantèlement, la quantité totale de déchets qui sera produite est estimée à environ 35 000 tonnes réparties de la manière suivante : 30 % de déchets de très faible activité (TFA), 60 % de déchets de faible et de moyenne activité à vie courte (FMA-VC) et 10 % de déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL).

Ces déchets peuvent être notamment activés et tritiés (composants internes à la chambre à vide), contaminés par du béryllium et du tritium ou uniquement tritiés (déchets issus des activités liées au cycle du combustible DT). A l'horizon 2060, les déchets produits seront prépondérants en termes de volume et d'inventaire en tritium (plus de 30 000 TBq), comparés aux autres sources de déchets tritiés. Il faut toutefois noter que des incertitudes importantes demeurent sur cet inventaire, dans la mesure où les options générales de conception des systèmes et équipements d'ITER ne sont pas définitivement arrêtées, certaines d'entre elles (choix des matériaux de protection radiologique, fréquence de remplacement des composants internes...) étant de nature à influencer de manière significative la quantité de déchets tritiés produits [29].

Les modalités de traitement et de conditionnement de ces déchets, qui seront établies en fonction de leurs caractéristiques radiologiques et chimiques et qui permettront leur prise en charge dans les centres de stockage, le cas échéant après entreposage pour décroissance, sont actuellement en cours d'étude. Il est d'ores et déjà prévu de récupérer le tritium des composants internes, qui généreront des déchets MA-VL lors des activités de maintenance, par traitement thermique dans les cellules « chaudes » d'ITER. Les autres déchets seront conditionnés dans l'installation avant leur envoi, pour décroissance radioactive, vers les modules adéquats de la future installation d'entreposage des déchets tritiés sans filière, dont la construction est prévue dans le cadre du projet EDTSF (cf. ci-après), ou directement vers les centres de stockage de l'ANDRA. Les déchets MA-VL et les déchets tritiés purs, générés durant la phase d'exploitation et présentant une activité supérieure aux seuils d'acceptation de ces installations, seront entreposés dans ITER jusqu'à la phase de démantèlement.

Projet d'entreposage de déchets tritiés sans filière (EDTSF)

Face à cette absence de filière pour la majeure partie des déchets tritiés français, la loi de programme n°2006-739 du 28 juin 2006 relative à la gestion durable des matières et des déchets radioactifs prévoit, dans le cadre du déploiement du Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs (PNGMDR), « *la mise au point pour 2008 de solutions d'entreposage des déchets tritiés contenant du tritium permettant la réduction de leur radioactivité avant leur stockage en surface ou à faible profondeur* », cette étude ayant été confiée au CEA.

Le dossier d'orientation pour l'entreposage des déchets tritiés sans filière (projet EDTSF), transmis fin 2008 à l'ASN, concerne l'ensemble des déchets tritiés solides déjà produits et à produire jusqu'à l'horizon 2060, ceux-ci provenant pour l'essentiel, comme évoqué ci-avant, des activités de la direction des applications militaires du CEA, de la défense nationale, de l'installation ITER et du nucléaire diffus. Ce dossier présente l'inventaire de ces déchets, regroupés en six catégories (déchets tritiés purs ou mixtes de très faible activité, déchets tritiés purs peu

dégazants, déchets tritiés purs dégazants, déchets uraniés tritiés, déchets irradiants tritiés contenant des radionucléides à vie courte et déchets irradiants tritiés contenant des radionucléides à vie longue). A chacune de ces familles est associé un type d'entreposage (allant de l'entrepôt en bardage métallique, clos et couvert, mais non confinant, au concept de puits ventilés) dont les principales options de conception sont décrites. L'objectif visé est de permettre un entreposage sûr des déchets tritiés pendant une période de 50 ans préalablement à leur stockage dans des centres de l'ANDRA. Les installations futures d'entreposage devraient être construites au plus près des principaux lieux de production ou de traitement (ce sera le cas en particulier pour ITER), ceci afin de limiter le transport de grandes quantités de déchets et de répondre, au moins dans un premier temps, au constat de saturation des installations d'entreposage actuelles, par ailleurs de conception ancienne.

L'évaluation de ce dossier par l'IRSN a conduit à conclure que la création de nouveaux entreposages sûrs pour les déchets tritiés sans filière, préalablement à leur stockage, devrait apporter une solution concrète à leur gestion. Toutefois, compte tenu de la capacité radiologique du CSFMA actuel (ou d'un centre futur de capacité similaire), limitée au regard du tritium²⁰, et des incertitudes sur les quantités de déchets tritiés que produiront notamment le réacteur ITER et le démantèlement des installations du CEA, une approche prudente devrait être adoptée pour définir les capacités et les durées d'entreposage nécessaires. En particulier, la capacité supplémentaire nécessaire pour entreposer ces déchets sur une durée de l'ordre du siècle devrait être évaluée et l'incidence de l'augmentation de la durée d'entreposage sur la conception des installations également examinée.

En tout état de cause, la durée maximale d'entreposage, la possibilité de reprendre à tout moment, dans des conditions de sûreté satisfaisantes, les colis de déchets entreposés et la nécessité de réduire autant que possible les rejets dans l'environnement (mise en œuvre d'un traitement amont permettant de réduire le dégazage des déchets entreposés, implantation d'unités de détritiation...), tout en tenant compte des risques d'exposition aux rayonnements ionisants pour les travailleurs et des possibilités de gestion des déchets tritiés secondaires qui seront produits dans ces conditions, constitueront des données de conception importantes de ces installations.

3 EVALUATION DES DIFFÉRENTES STRATÉGIES ET TECHNIQUES POSSIBLES DE GESTION DU TRITIUM

De manière générale, il faut rappeler que, comme toute industrie, les activités nucléaires génèrent des sous-produits, dont certains sont radioactifs, et ce quels que soient les efforts réalisés en matière de prévention, de réduction à la source, de recyclage ou de valorisation. L'exploitant a ainsi le choix entre traiter ces sous-produits en tant que déchets avant leur élimination (tout en réduisant les volumes produits) ou, lorsque leurs caractéristiques le permettent, les rejeter sous forme d'effluents (liquides ou gazeux) dans l'environnement.

Toutefois, le fait de vouloir récupérer et gérer ces sous-produits en tant que déchets en vue d'un entreposage ou d'un stockage doit conduire l'exploitant à s'interroger, dans le cadre d'une démarche d'optimisation, non seulement sur la faisabilité en termes techniques et économiques des procédés de séparation et de conditionnement nécessaires, mais également sur les gains obtenus en termes de risques et d'impact radiologique, et ce pour l'ensemble des étapes concernées (installations de séparation, de conditionnement et d'entreposage) jusqu'au stockage. En effet, en dessous d'un certain seuil de concentration en radionucléides, ceux-ci ne peuvent plus, en général, être « raisonnablement » récupérés pour des raisons techniques ou économiques ou parce que les opérations de séparation et de confinement, associées à la production de déchets, sont de nature à induire un impact radiologique sur les travailleurs et une augmentation des risques sans commune mesure avec le gain espéré pour le public. Les enjeux de sûreté et de radioprotection sont, dans ces conditions, nettement supérieurs à ceux induits par le rejet (liquide ou gazeux). Les radionucléides sont alors rejetés dans le milieu après vérification que leur impact sur le public et l'environnement reste acceptable et autorisation. Ce choix participe donc également d'une démarche visant à minimiser l'impact global de l'installation nucléaire concernée²¹.

²⁰ Il n'est pas acquis non plus que cette capacité soit utilisée en totalité, eu égard notamment aux inquiétudes que suscite le marquage des nappes phréatiques dans le public.

²¹ D'un point de vue réglementaire, les choix en matière de rejets retenus par les producteurs doivent être clairement explicités et justifiés dans les dossiers de demandes d'autorisation de rejets et les référentiels de sûreté des installations concernées, leur approbation ne pouvant relever que d'une étude au cas par cas. De plus, les dispositions permettant d'optimiser les rejets doivent être définies dès la phase de conception des installations. Cette optimisation doit également être envisagée durant toute la durée d'exploitation des installations, dans le cadre des réexamens de sûreté décennaux, voire au titre des autorisations de rejets demandant notamment la transmission à une échéance renouvelée d'études technico-économiques visant à réduire les rejets chimiques et radiologiques de l'installation (cas par exemple de l'arrêt d'autorisation de rejets de l'établissement AREVA de La Hague). Ainsi, l'exploitant doit démontrer qu'il a optimisé ses rejets et utilisé les meilleures techniques disponibles dans des conditions réalisables, compatibles avec les enjeux de sûreté et de radioprotection et à un coût économiquement acceptable, au même titre qu'il doit démontrer que la sûreté de son installation est au meilleur niveau raisonnablement possible.

Les rejets de tritium des installations nucléaires (notamment des réacteurs nucléaires de puissance et des usines de traitement de combustibles usés) relèvent totalement de cette démarche d'optimisation. Par conséquent, il apparaît utile, dans le cadre d'une démarche de progrès continu, de dresser un bilan des différentes techniques disponibles, en cours de développement ou envisageables à plus long terme, pour piéger, séparer et immobiliser ce radionucléide en vue d'un entreposage pour décroissance radioactive ou d'un stockage, en précisant notamment leurs avantages et inconvénients, tant sur le plan technique que sur celui des risques induits, en évaluant en particulier les efforts de R&D restant à fournir pour aboutir à une démonstration de faisabilité à l'échelle industrielle. Ainsi, les enjeux technico-économiques et les enjeux de sûreté et de radioprotection, associés à la mise en place d'un traitement du tritium et à la production concomitante de déchets tritiés, pourront être objectivement comparés à ceux induits par un rejet direct.

3.1 EVALUATION DES PROCÉDÉS DE SÉPARATION ET DE RÉCUPÉRATION DU TRITIUM

La stratégie permettant de réduire l'impact des rejets de tritium dans l'environnement émanant des centrales nucléaires ou des usines de traitement de combustibles usés consisterait à piéger, immobiliser et conditionner sous une forme appropriée le tritium présent dans les effluents liquides en vue d'un entreposage permettant sa décroissance radioactive ou d'un stockage direct sous forme de déchet ultime.

La solution la plus simple a priori consisterait tout d'abord à entreposer directement les effluents à rejeter dans des cuves afin de réduire leur activité volumique en tritium par simple décroissance radioactive. Toutefois, les volumes très importants de ces effluents (de l'ordre de 10 000 à 12 000 m³.an⁻¹ pour un réacteur du parc EDF et de 40 000 m³.an⁻¹ pour une usine traitant annuellement 1 100 tonnes de combustibles usés) rendrait très difficile la mise en œuvre d'une telle stratégie. En effet, les capacités d'entreposage maximales nécessaires, en considérant une période d'entreposage égale à la période de décroissance radioactive du tritium (12,3 ans), permettant de réduire son activité d'un facteur 2, seraient respectivement de l'ordre de 30 000 m³ pour un site comportant deux tranches REP 1 300 MWe (en supposant de plus un recyclage volontaire des effluents tritiés primaires pour reconcentration) et de 500 000 m³ pour une usine traitant 1 100 tonnes de combustibles usés par an. Par ailleurs, ces entreposages pourraient conduire à des rejets de tritium gazeux plus importants en fonctionnement normal et induire des risques supplémentaires de rejets en situation accidentelle, leur impact étant progressivement accru au fur et à mesure de l'augmentation des quantités de tritium entreposées. Dans le cas particulier des CNPE, il faut également souligner que le déstockage au bout d'une douzaine d'années des effluents entreposés pourrait s'avérer difficile, voire impossible, en particulier pour des centrales en bord de rivières à faible débit, compte tenu notamment des concentrations maximales réglementaires à respecter au niveau des exutoires. Ces difficultés seraient encore accrues s'il était décidé d'entreposer ces effluents sur des durées plus importantes pour diminuer davantage encore l'activité en tritium rejetée.

Ainsi, la mise en œuvre de procédés permettant de décontaminer les effluents tritiés et de concentrer le tritium récupéré dans un volume d'effluents réduit, notamment par séparation isotopique, apparaît indispensable pour obtenir des volumes compatibles avec les options d'entreposage ou de conditionnement étudiées, le tritium présent dans les effluents à rejeter étant de fait extrêmement dilué (de l'ordre de 10⁶ Bq.L⁻¹ pour les CNPE et 10⁸ Bq.L⁻¹ pour les usines de traitement). Les principaux procédés potentiellement applicables regroupent les techniques de distillation sous vide, d'électrolyse, de séparation sur résines et d'échanges chimiques. Ces techniques ont été essentiellement développées et mises en œuvre dans le cadre de la production, du retitrage et de la détritiation de l'eau lourde présente dans le caloporteur des réacteurs HWR et de la séparation des isotopes de l'hydrogène présents dans les effluents gazeux des réacteurs prototypes à fusion thermonucléaire en fonctionnement (JET) ou en cours de développement (ITER). Pour ce qui concerne les usines de traitement, une autre possibilité serait de réduire au maximum la production d'effluents tritiés à la source en adaptant le procédé TRILEX déjà partiellement mis en œuvre sur le site de La Hague (cf. ci-après) ou en s'appuyant sur des procédés évolutifs comme la voloxydation ou la pyrochimie, capables d'extraire le tritium du combustible irradié.

Procédé de voloxydation

Ce procédé, qui n'a jamais été mis en œuvre à l'échelle industrielle et dont l'objectif premier est de simplifier le procédé PUREX en séparant, lors des opérations de tête, un certain nombre de radionucléides gênants pour la suite de ce procédé, consiste à chauffer dans un four le combustible cisailé à une température de l'ordre de 500 °C sous un flux d'air ou d'oxygène afin de convertir l'oxyde d'uranium en U₃O₈. Cette montée en température provoque l'éclatement du combustible et de son gainage et permet, en particulier, le relâchement d'une fraction significative du tritium présent dans l'oxyde irradié sous forme de gaz (plus de 90 %), celui-ci pouvant être récupéré sous forme d'eau tritiée, après passage sur un catalyseur, puis piégé sur un support solide [4]. Les essais réalisés [34] conduisent à un volume d'effluents tritiés générés de l'ordre de 20 L.t_{U1}⁻¹ (à comparer à un flux d'environ 4 000 L.t_{U1}⁻¹ pour les usines actuelles). Toutefois, ce traitement induit des risques d'inflammation des

débris de gaine en zircaloy (cas des combustibles LWR), ce matériau étant particulièrement pyrophorique à l'état divisé, et conduit également à un relâchement important de produits de fission gazeux, volatils ou semi-volatils (iode 129, krypton 85, carbone 14, ruthénium 106, césium 137...), qui nécessite un traitement des gaz adapté, générant à son tour un volume d'effluents significatif. De plus, la présence de ces radionucléides pourrait compliquer les opérations de séparation et de purification du tritium. Ainsi, il peut être considéré que ce procédé induirait des risques potentiels relativement élevés si celui-ci était mis en œuvre dans le seul objectif de diminuer les rejets de tritium dans l'environnement.

Procédés pyrométallurgiques

Les procédés pyrométallurgiques regroupent des techniques de conversion et de séparation des actinides tels que la calciothermie, la précipitation fractionnée dans les chlorures fondus, l'extraction liquide/liquide entre un sel fondu et un métal liquide ou encore la séparation électrolytique dans les halogénures fondus (chlorures ou fluorures). Les deux dernières techniques séparatives font actuellement l'objet de nombreuses études à l'échelle du laboratoire dans le cadre notamment des recherches sur la séparation/transmutation des actinides, la séparation électrolytique en milieu de chlorures fondus ayant été en particulier déjà appliquée au traitement de quelques centaines de kg de combustibles métalliques RNR aux Etats-Unis et en Russie [35].

Ces procédés, appliqués au traitement de combustibles UOX, consisteraient, après une éventuelle étape de cisailage ou de dégainage du combustible, à dissoudre ce dernier et à séparer les espèces chimiques présentes dans des sels fondus à des températures pouvant varier de 500 à plus de 1000 °C. La destructuration de l'oxyde d'uranium permettrait ainsi de relâcher le tritium, les gaz rares et les autres produits de fission volatils dans les effluents gazeux du procédé et de récupérer ces différents radionucléides après un traitement adapté. Toutefois, ces procédés pyrométallurgiques nécessitent encore de très nombreux développements et ne pourraient être, en tout état de cause, envisagés que dans le cadre de futures usines de traitement associées aux réacteurs de quatrième génération.

Procédé TRILEX

Ce procédé, déjà partiellement mis en œuvre dans les usines de La Hague, consiste, outre l'établissement d'un « barrage tritium » au niveau du premier cycle d'extraction (cf. ci-dessus), à limiter au maximum les ajouts d'eau fraîche dans la zone tritiée de l'usine par l'utilisation de réactifs anhydres ou en solution aqueuse concentrée et le recyclage en tête d'usine d'une quantité maximale d'acide tritié provenant de l'unité de récupération de l'acide tritié.

Ce mode de fonctionnement permet ainsi de minimiser le volume d'eau tritiée extrait du procédé et de le rendre compatible avec un procédé de séparation isotopique [36]. Toutefois, l'obtention d'une réduction significative du volume d'effluents à traiter (quantité minimale d'eau introduite dans le cycle comprise entre 500 et 1 000 L.t_{UJ}⁻¹ selon les hypothèses retenues [37]) nécessiterait de modifier profondément la conception des usines existantes et entraînerait de fait une augmentation significative de l'inventaire et de la concentration en tritium dans la zone tritiée qui conduirait à une augmentation des risques de rejets de ce radionucléide dans les effluents gazeux et à des risques accrus de contamination des opérateurs, en cas par exemple de perte de confinement des équipements, enceintes ou boîtes à gants (le problème serait a priori similaire pour les autres radionucléides accompagnant le tritium et fonction des facteurs de décontamination obtenus). Les unités de traitement des gaz, nécessaires pour gérer ces risques, généreraient à leur tour des volumes d'effluents supplémentaires allant à l'encontre des facteurs de réduction visés. De plus, l'accumulation considérable de tritium dans la zone tritiée de l'usine nécessiterait également d'augmenter significativement l'efficacité du barrage tritium.

Distillation sous vide

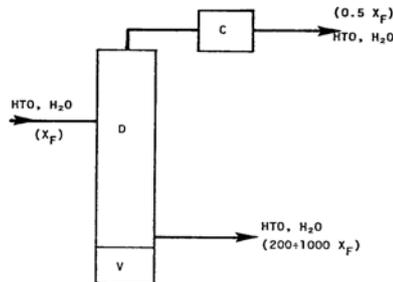
Ce procédé, déjà accessible industriellement²², est basé sur la différence de volatilité entre les isotopes de l'eau. Le facteur de séparation augmentant lorsque la température diminue, la distillation est généralement effectuée sous vide (facteur de séparation de l'ordre de 1,06 à 50 °C et 100 mbar). Ce facteur reste néanmoins très proche de 1 et nécessite par conséquent un grand nombre d'étages théoriques et un fort reflux. Des essais réalisés à très faible débit (1 L.h⁻¹) au centre d'études de Mol (Belgique) ont permis d'obtenir un facteur de concentration de l'ordre de 1000. Toutefois, le traitement de flux extrêmement dilués nécessiterait des installations de très grande taille et une puissance électrique très élevée. Pour information, les études menées par AREVA [17] indiquent que, pour une usine traitant 1 700 t.an⁻¹ de combustibles, l'unité de distillation qui serait nécessaire au traitement du flux de tritium (de l'ordre de 10⁸ Bq.L⁻¹) devrait comporter un nombre de colonnes de diamètre 4 m équivalent à une hauteur totale de plus de 300 m, soit plus de 4 000 m³ de garnissage, et conduirait à une consommation énergétique très élevée de l'ordre de 130 MW. De plus, le matériau de garnissage utilisé (cuivre oxydé) est sensible aux impuretés ioniques et organiques, ce qui nécessite une

²² La technique de distillation sous vide a déjà été utilisée pour récupérer le tritium contenu dans l'eau lourde tritiée des réacteurs de puissance de la filière CANDU au Canada et du réacteur de l'Institut Laue-Langevin à Grenoble, ainsi que dans le modérateur du réacteur Orphée à Saclay. Elle a également été testée à l'échelle du laboratoire dans l'usine de traitement de combustibles usés Eurochemic (Belgique) [4][5][38].

décontamination préalable des effluents liquides tritiés à traiter, et doit être périodiquement renouvelé. Ces données de dimensionnement rendent par conséquent cette technologie très onéreuse et difficile à mettre en œuvre aussi bien pour les usines de traitement actuelles que pour les réacteurs REP, ceci malgré sa maturité et le fait qu'elle n'induit pas, en particulier, de risque d'explosion (pas d'utilisation ou de production de dihydrogène sous forme gaz) contrairement à la plupart des autres procédés de séparation.

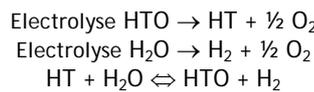
Schéma de principe de la distillation d'eau tritiée

C - condenseur, D - colonne de distillation, x_F - fraction molaire d'eau tritiée dans le flux d'alimentation



Electrolyse directe

La séparation du tritium par électrolyse directe de l'eau, qui aboutit à sa décomposition en dioxygène et dihydrogène gazeux (O_2 et HT/H_2), est basée sur la différence de tension d'électrolyse et de diffusion des ions dans l'électrolyte, de fortes densités de courant étant nécessaires :

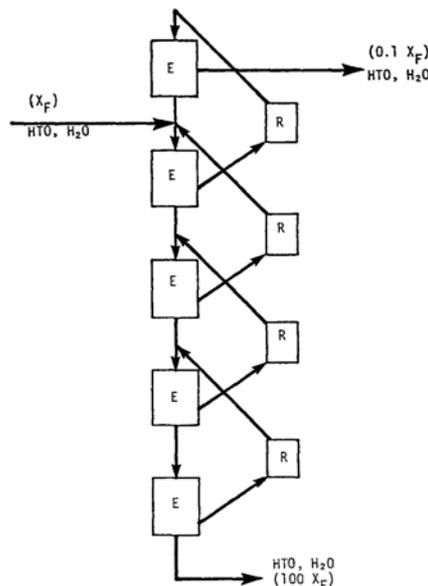


Les formes moléculaires légères migrent plus rapidement dans l'électrolyte et sont préférentiellement réduites à la cathode, l'électrolyte s'enrichissant ainsi progressivement en tritium et le flux de dihydrogène produit s'appauvrissant en ce même radioisotope. Plusieurs étages avec recombinaison des phases gazeuses (HT/H_2 et O_2) sont nécessaires pour obtenir un enrichissement suffisant, l'électrolyte étant régénéré lorsque la teneur en tritium devient trop élevée.

Les facteurs de séparation obtenus, fonction des écarts de masse atomique entre les espèces réduites à la cathode et migrantes dans l'électrolyte, dépendent du type d'électrolyseur utilisé (électrolyseur alcalin, à membrane...) et ne dépassent pas quelques unités, les capacités de traitement éprouvées variant de quelques L.h-1 à quelques centaines de L.h-1 [4][5][38]. L'utilisation d'électrodes bipolaires a été également envisagée (elles évitent tout dégagement gazeux et permettent, en très peu d'étages, d'obtenir un facteur de concentration du tritium proche de 1000 [39]), cette technologie restant néanmoins complexe à mettre en œuvre.

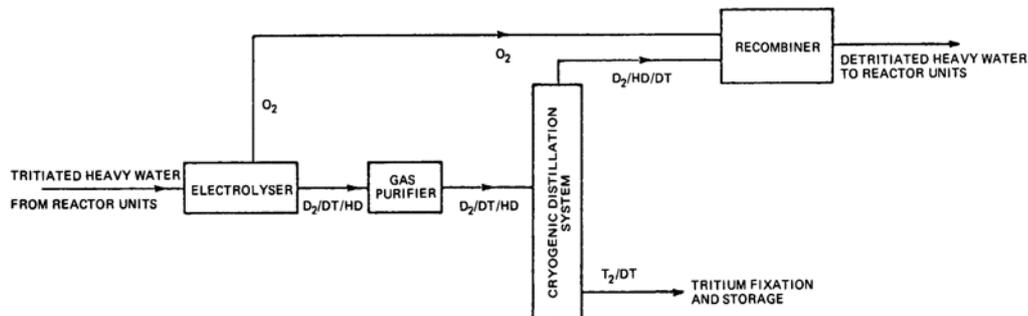
Schéma de principe de l'électrolyse directe

E - cellule d'électrolyse, R - recombineur, x_F - fraction molaire d'HTO dans le flux d'alimentation



L'électrolyse directe peut également être couplée à une étape de distillation cryogénique (séparation des isotopes de l'hydrogène entre 20 et 25 K), le flux de dihydrogène gazeux appauvri en tritium récupéré étant recombinaé avec l'oxygène généré dans la cellule d'électrolyse pour former de l'eau détritiiée et le flux gazeux enrichi en tritium étant récupéré pour immobilisation, entreposage ou stockage.

*Electrolyse directe couplée à un système de distillation cryogénique
(exemple de la détritiation de l'eau lourde)*



Compte tenu de sa relative complexité, des faibles capacités de traitement, des coûts de mise en œuvre élevés, du fait notamment de la consommation énergétique, et des risques spécifiques induits par ce type de procédé (risques d'incendie et d'explosion liés au dihydrogène produit) ou propres à la plupart des procédés de séparation et de reconcentration (inventaire élevé en tritium pouvant conduire à des rejets importants en cas d'accident...), l'électrolyse directe ne paraît pas à l'heure actuelle adaptée au traitement de flux d'effluents tritiés de plusieurs dizaines de milliers de m³.an⁻¹.

Procédés d'échanges chimiques

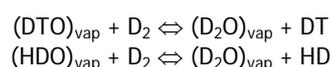
Les procédés d'échanges chimiques, principalement développés pour la production et la purification d'eau lourde et, plus récemment, pour le traitement des effluents tritiés produits par les unités de traitement des gaz des réacteurs à fusion, comprennent deux étapes principales : transfert du tritium présent dans l'eau lourde ou l'eau légère tritiée (DTO ou HTO) vers un flux de dihydrogène gazeux (DT ou HT) circulant à contre courant en présence d'un catalyseur à base de platine (loi d'action de masse), suivi d'une étape de séparation et de concentration du tritium gazeux utilisant le plus souvent la distillation cryogénique.

Plusieurs technologies ont été développées sur ce principe [4][5][38] :

- le procédé VPCE (Vapor Phase Catalytic Exchange) ;
- le procédé LPCE (Liquid Phase Catalytic Exchange) ;
- le procédé CECE (Combined Electrolysis-Catalytic Exchange).

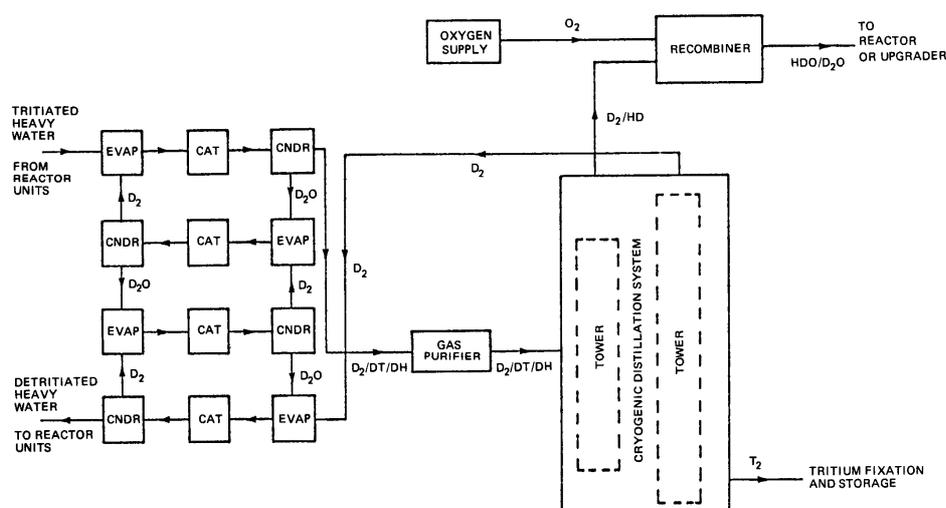
Le procédé VPCE, développé par le CEA, est une des premières technologies d'échange catalytique à avoir été éprouvée à l'échelle industrielle. Il a été tout d'abord mis en œuvre pour détritier l'eau lourde du réacteur à « haut flux » (RHF) de l'Institut Laue-Langevin de Grenoble, associé à une distillation cryogénique, puis a été utilisé à plus grande échelle dans l'installation de récupération du tritium du site de Darlington au Canada (Tritium Removal Facility - TRF).

Ce procédé fonctionne à contre-courant, plusieurs cycles d'évaporation-condensation étant nécessaires. Il peut comprendre entre 3 et 8 étages théoriques, chaque étage étant constitué d'un évaporateur, d'un surchauffeur, d'un réacteur catalytique et d'un condenseur. L'eau lourde tritiée est introduite dans l'évaporateur du premier étage, la vapeur formée étant mélangée avec le deutérium froid refluant de l'étage suivant. Le mélange est ensuite réchauffé à 200 °C avant d'être introduit dans le réacteur catalytique sous une pression de 1,2 bar, pour éviter la condensation de la vapeur pouvant saturer les sites du catalyseur. Le deutérium gaz, enrichi préférentiellement en tritium selon les réactions équilibrées ci-dessous, est ensuite séparé de l'eau lourde dans le condenseur puis purifié avant d'alimenter la colonne de distillation cryogénique (séparation des isotopes HD/D₂/DT/T₂ réalisée sous 2 bar). L'eau lourde recondensée, appauvrie en tritium, alimente à son tour l'évaporateur de l'étage suivant. Le gaz de deutérium détritiié alimentant le dernier étage provient de l'unité de distillation cryogénique.



Le principal inconvénient de ce procédé réside dans le fait que les réactions d'échange catalytique s'effectuent en phase gazeuse homogène, les facteurs de séparation obtenus étant relativement faibles, de l'ordre de quelques unités. De plus, un des principaux risques liés à ce procédé est le risque d'explosion dû à la présence de dihydrogène en phase gazeuse sous forme d'hydrogène, de deutérium et de tritium, pouvant être mis en contact accidentellement avec l'oxygène. A titre d'exemple, pour le RHF, la teneur en tritium du flux d'eau lourde à traiter était de l'ordre de 8.10^{10} Bq.L⁻¹ pour un débit d'alimentation de 20 L.h⁻¹, celle de l'eau lourde détritée étant de l'ordre de 2.10^{10} Bq.L⁻¹. Par ailleurs, la capacité de traitement de l'installation TRF de Darlington est de 2 500 m³.an⁻¹ pour une activité en tritium récupérée de $7,4.10^{17}$ Bq.an⁻¹ et reste encore très éloignée des capacités requises pour traiter les flux d'effluents liquides tritiés produits par les réacteurs REP et les usines de traitement de combustibles.

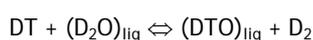
Schéma de principe du procédé VPCE appliqué au cas de la détritiation de l'eau lourde
 EVAP - évaporateur et surchauffeur, CAT - échangeur catalytique, CNDR - condenseur



Le développement de catalyseurs hydrophobes à base de platine par AECL, gardant leur efficacité en phase liquide, a permis de simplifier de façon importante ce type de procédé en réduisant considérablement la taille des installations. Ainsi, le mécanisme de détritiation du procédé LPCE s'appuie sur le même principe que celui du procédé VPCE, à ceci près que le transfert du tritium vers le deutérium gazeux peut s'effectuer directement à partir de la phase liquide. Les principaux avantages de ce procédé sont qu'il peut être mis en œuvre dans une simple colonne de lavage à garnissage hydrophile (pour faciliter l'échange de l'hydrogène entre la vapeur d'eau et l'eau liquide), dans des conditions proches des conditions normales (50 °C, pression atmosphérique), et qu'il permet d'obtenir des facteurs de séparation plus élevés que ceux obtenus avec le procédé VPCE [40]. D'autres pays (Inde, Corée, Russie, Etats-Unis...) ont, depuis, développé le même type de catalyseurs hydrophobes. Ce procédé a été notamment mis en œuvre dans l'unité de purification du fluide modérateur des réacteurs CANDU de la centrale de Wolsong (Corée), où des facteurs d'épuration de l'ordre de 35 ont été atteints. Toutefois, la sensibilité du catalyseur aux impuretés organiques et inorganiques nécessite en général une décontamination préalable des effluents liquides tritiés à traiter.

Une troisième option (procédé CECE) consiste à combiner l'électrolyse avec le procédé LPCE. Ce procédé, qui a été également développé par AECL, est considéré comme le plus efficace et constitue aujourd'hui la référence pour le traitement des effluents liquides tritiés de l'installation ITER. Il a également été mis en œuvre à l'échelle pilote, au Japon, sur le site du réacteur Fugen (capacité de traitement de 3,6 L.j⁻¹, facteur de concentration de l'eau tritiée proche de 10 000), ainsi que dans l'installation pilote de production d'eau lourde CIRCE à Hamilton au Canada (capacité de traitement de 1,5 L.h⁻¹, facteur de décontamination en tritium de l'ordre de 30 000). Plus récemment, des facteurs de séparation encore plus élevés, atteignant des valeurs de 50 000, ont été obtenus lors d'essais de décontamination d'eau lourde dans les laboratoires de Chalk River.

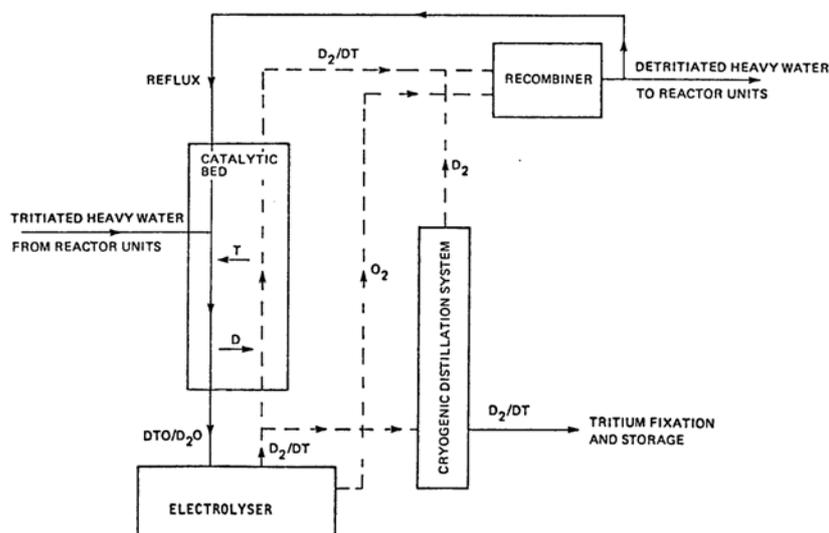
Le flux d'eau lourde tritiée à traiter (D₂O/DTO) est introduit à mi-hauteur de la colonne contenant le lit de catalyseur (platine hydrophobe) et est mis en contact avec le flux ascendant de dihydrogène gazeux (D₂/DT) produit dans la cellule d'électrolyse. L'échange catalytique favorise l'enrichissement de l'effluent liquide en tritium et l'appauvrissement de la phase gazeuse en ce même radioisotope suivant la réaction équilibrée :



Le flux liquide enrichi en tritium est collecté dans la cellule d'électrolyse, l'électrolyte s'enrichissant progressivement en tritium (D_2O étant préférentiellement réduit à la cathode). Une fraction du mélange DT/D_2 produit par électrolyse est dirigée vers la colonne de distillation cryogénique pour séparation du tritium, le deutérium appauvri en tritium récupéré étant recombinaé avec l'oxygène généré dans la cellule d'électrolyse en eau lourde détritiiée recyclée au niveau du réacteur. Une fraction de cette eau retourne également en tête de la colonne catalytique pour améliorer encore la décontamination en tritium de la phase gazeuse ascendante, le deutérium en étant pratiquement exempt en sortie.

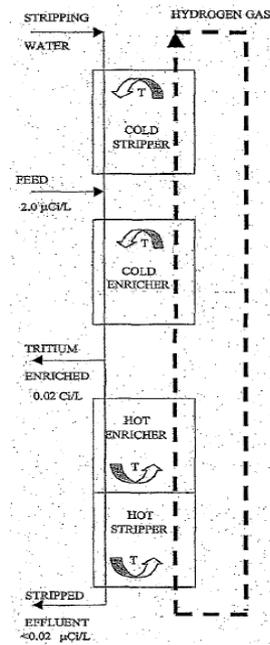
Le procédé CECE fait actuellement l'objet de nombreux développements, en particulier dans le cadre des recherches sur la fusion, mais ceux-ci n'ont pas encore atteint le stade industriel (études de nouveaux catalyseurs, conception de nouvelles cellules électrolytiques fonctionnant à hautes températures et permettant de réduire la consommation énergétique, optimisation d'autres équipements...). Les principaux inconvénients de ce procédé résident, comme pour les précédents, dans les coûts de fonctionnement liés principalement à la consommation énergétique (les facteurs de séparation élevés obtenus n'ayant pas d'impact sur cette consommation), les risques liés à la présence d'effluents fortement concentrés en tritium nécessitant de disposer de systèmes de confinement éprouvés ainsi que les risques d'explosion liés à la présence de dihydrogène gazeux. Par ailleurs, le procédé CECE mis en œuvre uniquement à l'échelle pilote, reste de fait encore difficilement applicable au traitement d'un flux d'effluents tritiés de plusieurs dizaines de milliers de $m^3 \cdot an^{-1}$.

Schéma de principe du procédé CECE appliqué au cas de la détritiation de l'eau lourde



Le procédé bitherme faisant intervenir le couple eau-hydrogène, également utilisé pour la détritiation de l'eau lourde (prototype CIRCE à Hamilton, Canada), est basé sur le même principe d'échange catalytique que le procédé CECE, mais ne nécessite pas d'électrolyser le flux d'effluents tritiés à traiter. Son principe est basé sur le recyclage permanent d'un flux d'hydrogène au travers de deux colonnes de séparation couplées, comportant chacune une zone d'enrichissement et une zone d'appauvrissement et fonctionnant sous pression (50 bar), l'une à 170 °C, l'autre à 50 °C. Les risques liés à ce procédé (confinement, explosion) sont néanmoins beaucoup plus délicats à appréhender du fait que les équipements fonctionnent sous haute pression.

Schéma de principe du procédé bitherme eau-hydrogène



Enfin, le procédé Girdler-Sulphide [41], basé sur le même principe d'échange chimique, mais faisant intervenir cette fois l'eau et l'hydrogène sulfureux ($\text{HDS} + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{H}_2\text{S} + \text{HDO}$), est mis en œuvre sous une pression de l'ordre de 20 bar dans des colonnes de températures différentes. Ne nécessitant pas l'utilisation de catalyseur, ce procédé ne conduit pas à des installations de taille importante, mais engendre, toutefois, des risques élevés d'explosion et de perte de confinement liés aux pressions mises en œuvre, l'hydrogène sulfureux étant également très toxique et corrosif. Ceci semble rendre réhivitoire l'extrapolation de ce procédé à une plus grande échelle.

Autres procédés

De nombreux autres procédés de séparation du tritium ont été étudiés et sont encore en développement sans avoir franchi le stade industriel. Certains d'entre eux peuvent présenter des facteurs de séparation très élevés, mais ne peuvent être mis en œuvre, pour l'instant, que pour le traitement de très faibles quantités d'effluents tritiés [4] [34] :

- séparation sur résines modifiées : ce procédé, développé par la société MSI [42], utilise des résines échangeuses d'ions sélectives fixant préférentiellement l'eau tritiée, ces résines devant toutefois être régénérées par chauffage à haute température (jusqu'à 150-160 °C) dès saturation. L'eau tritiée présente dans les gaz ainsi produits est piégée sur des tamis moléculaires ou recondensée. Ces résines nécessitent également de purifier les solutions à traiter pour assurer des capacités d'adsorption correctes ;
- séparation sur membranes perméables : ce procédé de séparation isotopique, développé notamment dans le cadre des recherches sur la fusion, nécessitent un fonctionnement en cascades ;
- thermodiffusion : lorsqu'un mélange de dihydrogène gazeux (H_2 , HT , T_2) est placé dans un champ de température, les molécules de masses moléculaires les plus faibles (H_2) migrent vers la paroi chaude et celles ayant les masses les plus lourdes (T_2) migrent vers la paroi froide, créant ainsi un gradient de concentration (transport de matière lié aux forces intermoléculaires) ;
- séparation isotopique par laser : procédé basé sur la photodissociation de molécules tritiées induite par laser ;
- ...

Conclusion sur l'évaluation des procédés de séparation et de récupération du tritium

En résumé, aucun des procédés de séparation isotopique existants décrits ci-dessus, mis en œuvre à l'échelle pilote, voire pré-industrielle, n'a été conçu et exploité à une échelle et avec des performances visées comparables à celles requises pour le traitement des effluents liquides tritiés produits par les usines de traitement de combustibles usés et les réacteurs de type REP. En effet, ces procédés ont été conçus uniquement pour des flux limités (facteur d'échelle pouvant varier de 50 à 1000) et pour des concentrations en tritium élevées (au moins 1000 fois supérieures à celles des effluents des usines de traitement et des réacteurs nucléaires) et n'ont, pour la

plupart, pas encore été qualifiés et éprouvés à l'échelle industrielle. L'application de ces procédés aux réacteurs et aux usines nécessiterait par conséquent le développement et la mise en œuvre d'équipements de tailles très importantes, associés à une très forte consommation d'énergie (distillation sous vide, électrolyse, prétraitement nécessaire pour atteindre un niveau de pureté suffisant des effluents à traiter...).

De plus, ces procédés conduiraient à une augmentation notable des risques, liée notamment à l'augmentation de la concentration et de l'inventaire en tritium manipulé dans l'installation et à la présence de dihydrogène gazeux ou de réactifs toxiques et corrosifs, parfois mis en œuvre dans des conditions de températures et de pression élevées. Ainsi, ces sources de danger pourraient conduire, en fonctionnement normal, à une augmentation des rejets gazeux pouvant engendrer une augmentation de l'impact du site sur les groupes de référence et, en cas de perte accidentelle du confinement ou d'explosion, à des rejets significatifs de tritium sous forme gazeuse dans l'environnement.

Par ailleurs, il faut également tenir compte du risque d'augmentation des doses pour les travailleurs liées aux éventuels travaux de modification des installations existantes et à l'exploitation des nouvelles unités de séparation et de concentration du tritium (augmentation des risques d'exposition par inhalation, pénétration cutanée...), ces contraintes pouvant avoir une incidence forte sur la conception de ces unités et sur les procédures opératoires (manipulation à distance, ventilation/détritiation, protection individuelle, limitation de la concentration en tritium dans les flux à traiter...).

Enfin, les procédés visant à extraire le tritium du combustible irradié en tête du procédé de traitement sont encore au stade du développement en laboratoire, la plupart nécessitant des sauts technologiques importants, et ne pourraient être envisagés a priori que dans le cadre de la conception d'usines futures. L'entreposage des effluents liquides tritiés permettant la décroissance radioactive du tritium avant rejet semble également difficilement envisageable compte tenu des volumes en jeu et de la durée d'entreposage nécessaire.

3.2 EVALUATION DES PROCÉDÉS D'IMMOBILISATION ET DE CONDITIONNEMENT

Même si un entreposage direct du tritium sous forme liquide ou gazeuse, en conteneurs ou bouteilles étanches, reste une solution envisageable afin de réduire l'activité volumique du tritium par simple décroissance radioactive, sous réserve d'évaluer précisément les risques associés (confinement supplémentaire à apporter, garantie du maintien de l'étanchéité des bouteilles dans le temps tenant compte de la production d'hélium, des phénomènes de radiolyse, de fragilisation des aciers et de corrosion...), l'immobilisation du tritium sous la forme d'une matrice stable et résistante aux agressions (de types mécanique, chimique, thermique, liés aux rayonnements...), capable d'assurer la rétention de ce radionucléide sur une période de temps suffisante en vue d'un entreposage ou d'un stockage, n'en demeure pas moins une option qu'il convient d'étudier.

Le choix du mode de conditionnement du tritium dépend de la forme physique sous laquelle il a été concentré (gaz ou liquide) et de son activité spécifique. Les principales voies étudiées concernent les adsorbants solides (agents déshydratants), les liants hydrauliques (mortiers à base de ciment), les polymères organiques et les hydrures métalliques [4][6].

Les adsorbants solides

La famille des adsorbants solides regroupe principalement le silica gel, l'alumine activée, le sulphate de calcium, les tamis moléculaires et les zéolithes. Ces matériaux, avides d'humidité, sont notamment utilisés pour récupérer et piéger la vapeur d'eau tritiée présente dans l'air ou dans d'autres types de gaz, la quantité d'eau incorporée pouvant varier de 10 à 40 % environ. Parmi ces adsorbants, le silica gel, les tamis moléculaires et les zéolithes, particulièrement stables, présentent les meilleures propriétés de rétention, ce paramètre variant néanmoins avec le taux de chargement du matériau.

Le tritium peut également être récupéré par circulation d'un flux d'air sec à haute température, les propriétés de ces adsorbants n'étant pas altérées significativement par les conditions de régénération (cas notamment de la zéolithe). Toutefois, un conditionnement de ces matériaux en conteneurs étanches serait nécessaire dans le cadre d'un entreposage sur une durée de plus d'une centaine d'années, voire d'un stockage, pour éviter tout contact éventuel avec l'eau pouvant conduire à un relâchement d'une fraction de l'activité contenue (les taux d'échange maximum du tritium avec ce vecteur sont de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-4} j^{-1}) et pour tenir compte de l'effet éventuel du vieillissement sur les propriétés de ces adsorbants.

De plus, ces conteneurs de « haute intégrité » et à « haut pouvoir confinant » devraient être dimensionnés à la corrosion et aux hautes pressions dues à l'hélium produit par décroissance radioactive du tritium (1 g de tritium

gène 7 L d'hélium gaz). Ces exigences rendent particulièrement coûteuse la mise en œuvre d'un tel conditionnement, l'enrobage dans un liant hydraulique ou un polymère organique pouvant également constituer une alternative (cf. ci-après). De fait, ces agents déshydratants sont davantage adaptés à l'immobilisation et au transport de petites quantités de tritium fortement concentrées, destinées à être recyclées (voir notamment le retour d'expérience du centre CEA de Valduc).

Les liants hydrauliques à base de ciment

Les mortiers à base de ciment (classification selon la teneur en chaux, silice et alumine) peuvent constituer une deuxième option pour conditionner les effluents liquides tritiés, l'objectif étant d'obtenir un matériau solide, homogène, compact et stable et assurant sur un laps de temps suffisant le confinement du tritium, avant stockage du colis.

Le choix du liant hydraulique est fonction en général de son niveau de compatibilité avec les effluents ou les déchets à enrober, de sa capacité chimique d'hydratation, de son durcissement, de son niveau de retrait thermique et hydraulique, de son comportement à la température, aux rayonnements ionisants, à la corrosion et à l'érosion et de sa résistance à la lixiviation. Toutefois, il faut rappeler que, de par ses caractéristiques, le tritium diffuse facilement au travers des matrices cimentées. Certaines matrices, fabriquées par exemple à base de ciment Portland, peuvent néanmoins présenter un taux de rétention plus important du tritium.

Par ailleurs, la résistance mécanique et la résistance aux agressions chimiques des colis dépendent notamment de la quantité d'eau incorporée au ciment (le rapport eau/ciment étant en général compris entre 0,3 et 0,5), le relâchement de tritium, sous forme d'eau tritiée, de colis entreposés en atmosphère humide pouvant atteindre 25 % de l'inventaire initial, dès les premières semaines suivant la fabrication.

Des essais de lixiviation réalisés sur différents types d'enrobés montrent également que le taux de relâchement du tritium est en moyenne de l'ordre de 10^{-2} durant le premier mois, ce taux diminuant ensuite avec le temps. A cet égard, des études ont montré que l'application d'une couche d'imprégnation sur la surface du colis (voire un sur-enrobage), par exemple à base de résines époxyde, pouvait améliorer la capacité de rétention du tritium. Une diminution drastique du taux de relâchement de ce radionucléide ne pourrait toutefois être obtenue que si le colis est associé à un conteneur étanche en acier dont les caractéristiques seraient adaptées aux contraintes de l'entreposage ou du stockage (corrosion, pression...) et dont la durée de vie serait au moins de l'ordre d'une centaine d'années.

Enfin, pour ce qui concerne la sûreté du procédé d'enrobage, les dispositions visant à confiner le tritium éventuellement dégagé pendant la coulée et la prise du ciment doivent également être évaluées avec soin, notamment pour ce qui concerne le traitement des gaz de ventilation du procédé.

Les polymères organiques

Les polymères organiques dans lesquels le tritium est lié au carbone sont susceptibles d'immobiliser le tritium compte tenu de leurs stabilités chimiques, de leurs faibles tensions de vapeur et de leurs propriétés hydrophobes. Les polymères couramment étudiés, à base d'acétylène, sont les polyacétylènes, les bakélites, les polyacrylonitriles et les polyacrylates. Les polystyrènes sont également cités.

Les tests de lixiviation réalisés sur la plupart de ces polymères au contact de l'eau montrent que les taux de relâchement en tritium peuvent s'avérer importants (jusqu'à 5 % de l'inventaire initial relâché en quelques jours). De plus, la complexité et les risques associés à ce type de procédé ne semblent pas adaptés au conditionnement de flux importants d'effluents tritiés concentrés.

Les hydrures métalliques

Le tritium gaz peut former des hydrures métalliques avec de nombreux métaux, mais seul un certain nombre d'entre eux sont suffisamment stables, en particulier lorsqu'ils sont mis en contact avec l'air ambiant ou avec l'eau, et possèdent une pression de dissociation suffisamment faible pour garantir l'immobilisation du tritium et son absence de relâchement durant toute la durée de l'entreposage. Les hydrures de zirconium et de titane sont, dans ce contexte, particulièrement étudiés, le choix du type de métal étant fonction des conditions d'entreposage ou de stockage. A titre d'exemple, les taux de relâchement des hydrures de zirconium et de titane au contact de l'eau sont très faibles, de l'ordre de 10^{-6} à 10^{-9} j^{-1} , la fraction de tritium relâchée au bout de 600 jours étant inférieure à 0,05 % de l'inventaire initial.

Les hydrures peuvent être obtenus par chargement du métal par voie gazeuse (mélange argon-hydrogène sous pression) à des températures de l'ordre de 400 °C (des techniques par chargement électrolytique ont été également développées). La technique de chargement par voie gazeuse nécessite toutefois l'emploi de réactifs purs, la présence d'hélium ou d'oxygène pouvant en particulier ralentir, voire inhiber, la réaction de formation de

l'hydrure. A l'inverse, le tritium peut être récupéré par chauffage du métal hydruré sous vide (à plus de 800°C pour le zirconium).

Par ailleurs, la capacité de piégeage du tritium par ces métaux peut être relativement importante. A titre d'exemple, les hydrures de zirconium purs correspondent à 18 g d'atomes d'hydrogène ou 50 g d'atomes de tritium par kg de zirconium. Dans des conditions de chargement « normales », des teneurs de l'ordre de 1000 ppm d'atomes d'hydrogène (soit 3000 ppm d'atomes de tritium) sont couramment atteintes. Ainsi, sur un plan théorique, quelques dizaines de kg de zirconium suffiraient pour piéger la totalité du tritium rejeté annuellement par les usines de La Hague (soit au maximum 50 g par an). Toutefois, la mise en œuvre de ces techniques reste complexe (hautes températures), le taux et le temps de chargement dépendant principalement de la surface d'échange et de l'état de surface du métal.

L'entreposage sur des durées de l'ordre d'une centaine d'années (ou le stockage direct) de ces hydrures nécessiterait, en tout état de cause, de les conditionner dans des conteneurs en acier de haute intégrité, notamment pour éviter tout contact avec l'eau et pour tenir compte de l'effet éventuel du vieillissement sur les propriétés de ces composés, de la même manière que pour les adsorbants solides. Enfin, il faut rappeler que le piégeage du tritium, sous forme d'hydrures métalliques, nécessiterait au préalable d'électrolyser l'intégralité des effluents tritiés produits par les réacteurs et les usines de traitement, pour récupérer ce radionucléide sous forme de gaz (HT ou T₂), cette opération conduisant à une forte consommation d'énergie et induisant notamment des risques d'explosion. De plus, les risques liés au caractère pyrophorique des hydrures devraient également être évalués avec soin. De fait, les hydrures métalliques semblent pour l'instant, comme pour les adsorbants solides, davantage adaptés à l'immobilisation et au transport de petites quantités de tritium, destinées à être recyclées.

Conclusion sur les procédés d'immobilisation

En conclusion, parmi les différents modes possibles de conditionnement du tritium, les adsorbants solides (tamis moléculaire, zéolithes...) et les hydrures métalliques (zirconium, titane...) semblent les plus prometteurs compte tenu de leur stabilité (maintien des performances) à court et moyen terme, de leurs capacités de rétention et de leurs taux de relâchement relativement faibles lorsqu'ils sont mis en contact avec l'air ou l'eau, mais également de la possibilité de régénérer ces supports solides en récupérant (et valorisant) le tritium piégé. Un conditionnement de ces matériaux (et le cas échéant des déchets secondaires produits) en conteneurs étanches serait toutefois nécessaire pour résister aux différents types d'agressions envisageables en situation d'entreposage (voire de stockage) sur une durée de plus d'une centaine d'années, l'effet du vieillissement à long terme pouvant en particulier modifier le taux de dégazage de ces supports.

En tout état de cause, ces techniques ne sont actuellement pas éprouvées pour l'immobilisation de quantités importantes de tritium sous forme d'eau tritiée concentrée ou de dihydrogène gazeux, des développements technologiques importants étant encore nécessaires.

Par ailleurs, comme pour les unités de séparation et de concentration du tritium, il faudrait également tenir compte des risques d'augmentation des doses pour les travailleurs liées aux éventuels travaux de modification des installations existantes et à l'exploitation des nouvelles unités de conditionnement et d'entreposage des déchets tritiés produits.

4 CONCLUSION GÉNÉRALE

La question des rejets de tritium des installations nucléaires conduit à examiner la pertinence des modes de gestion des effluents et des déchets solides contenant du tritium et, corrélativement, l'intérêt et les moyens de réduire les rejets dans l'environnement de ce radionucléide. Cet examen nécessite de considérer trois éléments : la nature de l'effluent (liquide ou gazeux), les facteurs qui gouvernent l'impact environnemental de ces rejets et l'efficacité des moyens qui peuvent être mis en œuvre pour capturer et confiner le tritium.

L'analyse globale de ces éléments conduit à distinguer la gestion des liquides peu concentrés, mais en très grands volumes, le traitement des effluents gazeux et l'entreposage et le stockage des déchets.

- Les effluents liquides qui proviennent de l'exploitation des réacteurs nucléaires et du traitement de combustibles usés sont aujourd'hui la source la plus importante de rejet de tritium dans l'environnement. Leur faible concentration en tritium et leurs volumes très élevés (plusieurs dizaines de milliers de m³ par an et par installation) sont un obstacle à la mise en œuvre de procédés de récupération de ce radioélément, suffisamment efficaces, sûrs et viables économiquement. Il faut toutefois noter que l'environnement dans lequel les rejets sont effectués (mer, fleuves) permet une dilution supplémentaire extrêmement importante du tritium et une réduction consécutive de son impact à des niveaux extrêmement faibles, en général inférieurs au µSv par an.

- Les effluents gazeux se prêtent mieux à un traitement avant rejet permettant la capture du tritium sous forme d'eau tritiée concentrée, comme les procédés mis en œuvre par le CEA ont pu le démontrer. Compte tenu du fait que l'environnement terrestre dans lequel s'effectuent les rejets gazeux ne possède pas la capacité de dilution de l'environnement marin, le recours à la détritiation de ces effluents peut être d'autant plus utile qu'outre la possibilité de valoriser le tritium récupéré, il permet une réduction significative de l'impact radiologique associé à ces rejets. La quantité produite d'effluents tritiés concentrés doit toutefois demeurer faible, du fait des difficultés posées par sa gestion sûre, et constitue sans doute un facteur limitant au déploiement de telles techniques.

- Enfin, l'entreposage et le stockage de déchets tritiés solides, dont certains ont pu faire l'objet d'une détritiation préalable, apportent des solutions de confinement du tritium contenu, mais ce confinement n'est pas absolu. En effet, les entreposages induisent généralement des rejets de tritium dans l'atmosphère et des rejets diffus dans le sol ne peuvent pas totalement être évités dans le cas des stockages.

Il ne peut donc pas être envisagé, au moyen des techniques actuellement disponibles, de récupérer et de confiner totalement le tritium présent dans les effluents des installations existantes. Dès lors, les opérations entreprises pour traiter des effluents ou des déchets tritiés dans une installation donnée, vont s'accompagner d'un déplacement du risque vers d'autres installations, en termes de rejet et d'impact pour les travailleurs et l'environnement. Ce déplacement du risque doit être évalué globalement pour apprécier la pertinence des modes de gestion des effluents et des déchets tritiés qui pourront être mis en œuvre à l'avenir.

En tout état de cause, au regard de la loi TSN du 13 juin 2006, il incombe aux exploitants des installations nucléaires rejetant des radionucléides de poursuivre leurs efforts en matière de maîtrise et de diminution des rejets. Par conséquent, ceux-ci devront tenir compte des évolutions technologiques en cours ou à venir, notamment dans le cadre de la conception de nouvelles installations, permettant de réduire au mieux les rejets tout en maîtrisant les risques associés aux nouveaux procédés mis en œuvre et à la gestion des déchets induits, afin de définir les stratégies les plus favorables en terme de sûreté et de radioprotection.

RÉFÉRENCES

- [1] UNITED NATIONS, Sources and Effects of Ionizing Radiation (Report to the General Assembly), Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), UN, New York (2000)
- [2] UNITED NATIONS, Sources and Effects of Ionizing Radiation (Report to the General Assembly), Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), UN, New York (1993)
- [3] ELECNUC, Les centrales nucléaires dans le monde, Edition 2008, Institut de tecnico-économie des systèmes énergétiques, CEA/DEN
- [4] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Management of Waste Containing Tritium and carbon-14, Technical Reports Series n°421, IAEA, Vienna (2004)
- [5] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Handling of Tritium-Bearing Wastes, Technical Reports Series n°203, IAEA, Vienna (1981)
- [6] McKAY, H.A.C., "Background considerations in the immobilization of volatile radionuclides", Management of Gaseous Wastes from Nuclear Facilities (Proc. Int. Symp. Vienna 1980), IAEA, Vienna (1980) 59-78
- [7] B. LE GUEN, Impact du tritium autour des centrales nucléaires EDF, Radioprotection 2008, Vol. 43, n°2, pages 177 à 191, EDP Sciences
- [8] B. LE GUEN, V. CHRETIEN, « Rejets de tritium et impact autour des CNPE d'EDF », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [9] HOLTSLANDER, W.J., TSYPLENKOV, V., "Management of tritium at nuclear facilities", Radioactive Waste Management (Proc. Int. Conf. Seattle, WA, 1983), Vol. 2, IAEA, Vienna (1984) 191-204
- [10] UNITED NATIONS, Sources and Effects of Ionizing Radiation (Report to the General Assembly), Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), UN, New York (1988)
- [11] UNITED NATIONS, Sources and Effects of Ionizing Radiation (Report to the General Assembly), Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), UN, New York (1982)
- [12] W. KUNZ, H. MUNZEL and U. HELFRICH. J. Nucl. Mater. 105 (1982), p. 178
- [13] J.J. KEARNS. J. Nucl. Mater. 43 (1972), p. 330
- [14] P. THOMPSON, « Problématique de la gestion du tritium au Canada : le point de vue des autorités », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [15] Mc GUIRE, J.C. and RENNER, T.A., Control of tritium in liquid metal cooled fast breeder reactors, Atomic energy review, 16 (4) 1978 pp 657-695
- [16] M. CARMINATTI, N. S. MORRISON, « Hydrogen and tritium behaviour in Phenix and PFR », 4ème conférence internationale sur la technologie des métaux liquides, 17-21 octobre 1988, Avignon (LIMET 88)
- [17] P. DEVIN, « Gestion des rejets de tritium du site AREVA NC de La Hague, impact et surveillance associés », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [18] GRNC, Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, Rapport de synthèse « Estimation des niveaux d'exposition aux rayonnements ionisants et des risques de leucémie associés de population du Nord-Cotentin » et Volume 1 « Inventaire des rejets radioactifs des installations nucléaires », 1999
- [19] GRNC, Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, Rapport de synthèse et rapport détaillé « Année 2006 - Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses présentées dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement d'AREVA-NC La Hague », 2008
- [20] Sellafield Ltd Annual Report 2006 - Discharges and Monitoring of the Environment in the UK
- [21] Rapport de surveillance de l'environnement de l'établissement AREVA de La Hague, 2006
- [22] F. LEVY, « Retour d'expérience et perspectives du site de Marcoule », Revue Générale Nucléaire, année 2008, N°1, janvier-février
- [23] P. GUETAT, A. TOGNETTI, L. VICHOT, « Apports de la surveillance du centre CEA/Valduc sur la connaissance des transferts de l'eau tritiée atmosphérique dans les différents compartiments de l'environnement », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [24] D. LETERQ, P. BUSSIERE, « Retour d'expérience du procédé de détritiation de Valduc », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [25] Rapports transparence et sécurité nucléaire (par centre), CEA, 2007 et 2008
- [26] Y. BELOT, Le tritium de l'environnement à l'Homme, IPSN, les éditions de physique
- [27] P. GUETAT, Le tritium et l'environnement : sources, mesures et transferts, Radioprotection 2008, Vol.43, n°4, 547 à 569, EDP Sciences
- [28] S. JENKINSON, « Tritium concentrations around british coasts », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [29] L. RODRIGUEZ-RODRIGO, « La gestion des déchets d'ITER », Colloque ANCLI Le tritium discret mais présent partout, 4 et 5 novembre 2008, Orsay
- [30] P. CORTES, J. ELBEZ-UZAN, M. GLUGLA, « Optimisation de la gestion du tritium dans le projet ITER », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris

- [31] F. CHASTAGNER, « Difficultés associées au confinement des déchets tritiés », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [32] Dossier 2005 Argile, Evaluation de la faisabilité du stockage géologique en formation argileuse, Décembre 2005, ANDRA
- [33] Inventaire National des Matières et Déchets Radioactifs 2009, ANDRA
- [34] G. VASARU, Tritium isotope separation, CRC Press, 1993
- [35] Le traitement-recyclage du combustible nucléaire usé, Monographie DEN, CEA, Editions Le Moniteur
- [36] Brevet FRA-A-2 230 040, C. BERNARD, Procédé de traitement des combustibles irradiés pour limiter le rejet du tritium dans l'environnement, 1973
- [37] J.P. GOUMONDY, « Maîtrise du tritium dans les usines de retraitement de combustibles REP », Journées tritium des 23-24-25 avril 1986, Société Française de radioprotection (SFRP), Dijon
- [38] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Management of Tritium at Nuclear Facilities, Technical Reports Series n°234, IAEA, Vienna (1984)
- [39] E.H. KOBISH, Separation of tritium from gaseous and aqueous effluent systems, ORNL 77/183
- [40] SEDDON, W.A. and al., Wetproofed Catalysts : A new and effective solution for hydrogen isotope separation and hydrogen/oxygen recombinaison, Rep. AECL-8293, Atomic Energy of Canada Ltd, Chalk River (1984)
- [41] DOE/RL _ 2004-11 Rev.0 2004 Evaluation of Tritium Removal and Migration Technologies for Wastewater Treatment
- [42] Molecular Separation Inc., « Tritium separation technology », paper presented at the EPRI Low Level Waste Conference, July 13, 1999, East Brunswick, NJ, 1999