

IRSNINSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE*Faire avancer la sûreté nucléaire*

PROJET CIGEO - EXAMEN DES ETUDES REMISES DEPUIS 2009

RAPPORT IRSN N° 2013-00001

TOME 2 - MODELE DE RELACHEMENT DES
COMBUSTIBLES USES

Réunion du Groupe permanent d'experts pour les « Déchets »
du 5 février 2013

RESUME DU RAPPORT

Le Tome 2 du présent rapport constitue l'avis de l'IRSN relatif au modèle opérationnel de relâchement des combustibles usés associé au Projet Cigéo, présenté lors la réunion du groupe permanent du 5 février 2013. L'examen par l'IRSN du programme industriel de gestion des déchets (PIGD) est présenté dans le Tome 1 et celui des résultats de la sismique 3D dans le Tome 3.

S'agissant du modèle de relâchement des combustibles usés, l'examen de l'IRSN a porté sur le modèle de relâchement instantané de radionucléides (IRF) et sur le modèle de dissolution de la matrice UO₂. L'IRSN considère que le modèle présenté par l'Andra constitue un progrès et qu'il est en adéquation avec l'état des connaissances actuel. Les valeurs de relâchement obtenues au moyen de ce nouveau modèle sont globalement similaires à celles qui avaient été retenues dans le Dossier 2005. Les principales différences identifiées concernent les valeurs de relâchement instantané du ³⁶Cl, réestimées à la hausse, et l'absence de relâchement instantané des actinides contenus dans les grains des amas de plutonium des combustibles MOX. L'IRSN considère que ces différences n'ont qu'un impact très faible sur l'impact radiologique du stockage tel qu'estimé dans le Dossier 2005. En conséquence, les conclusions de l'IRSN, à l'issue de l'examen de ce même Dossier, sur la faisabilité d'un stockage de combustibles usés dans la formation du Callovo-Oxfordien ne sont pas modifiées.

TABLE DES MATIERES

I	INTRODUCTION	4
I.1	OBJET DU PRESENT RAPPORT	4
I.2	CONTEXTE DE LA DEMANDE	4
I.3	PRESENTATION DU DOSSIER DE L'ANDRA	5
II	MODELE DE RELACHEMENT DES COMBUSTIBLES USES	6
II.1	STRATEGIE DE GESTION DES COMBUSTIBLES EN REACTEUR	6
II.2	CONCEPT DE STOCKAGE DIRECT DES COMBUSTIBLES USES	7
II.3	RELACHEMENT DES COMBUSTIBLES EN CONDITIONS DE STOCKAGE	9
II.3.1	Caractéristiques des pastilles de combustibles en sortie de réacteur	9
II.3.2	Relâchement instantané de radionucléides	11
II.3.2.1	Conséquences de l'accumulation d'He sur la microstructure des pastilles	11
II.3.2.2	Evaluation de l'IRF	15
II.3.2.3	Conclusion sur l'IRF	20
II.3.3	Dissolution de la matrice	20
II.3.3.1	Méthodologie retenue	21
II.3.3.2	Modèle de dissolution de la matrice de combustible	22
II.3.3.2.1	Calcul du terme source	22
II.3.3.2.2	Calcul électrochimique	24
II.3.3.3	Conclusion sur le modèle de dissolution	26
III	CONCLUSION	27
	REFERENCES	28

I INTRODUCTION

I.1 OBJET DU PRESENT RAPPORT

Par lettre ASN/CODEP-DRC-2012-045908 du 29 août 2012 (cf. Annexe A1), l'ASN a demandé au président du groupe permanent d'experts pour les déchets (GPD ou « groupe permanent » dans le présent rapport) d'examiner les études remises depuis 2009 par l'Andra concernant le projet de centre industriel de stockage géologique (Cigéo). La lettre CODEP-DRC-2012-045908 précitée précise que cet examen devra notamment permettre de se prononcer sur :

- *« la pertinence des données de base (volume et typologie des colis, chroniques de stockage) retenues par l'Andra pour constituer l'inventaire des déchets fourni dans le dossier de PIGD en considérant également les réserves éventuellement retenues dans cet inventaire pour les déchets dont la filière définitive de stockage n'est pas encore arrêtée ;*
- *les résultats des études sur le comportement des combustibles en formation géologique profonde et leur incidence éventuelle sur la faisabilité de leur stockage au regard des options de conception présentées dans le « Dossier 2005 Argile », examiné par le groupe permanent lors des séances des 12 et 13 décembre 2005 ;*
- *les résultats de sismique 3D au regard de la confirmation des caractéristiques favorables pour un stockage géologique de la zone reconnue, compte tenu des techniques employées, ainsi que leur prise en compte dans le modèle conceptuel de site ».*

Le Tome 2 du présent rapport constitue l'avis de l'IRSN relatif au modèle opérationnel de relâchement des combustibles usés associé au Projet Cigéo, présenté lors la réunion du groupe permanent du 5 février 2013. L'examen par l'IRSN du programme industriel de gestion des déchets (PIGD) est présenté dans le Tome 1 et celui des résultats de la sismique 3D dans le Tome 3.

Les conclusions qui font l'objet de propositions de recommandations résultant de l'instruction sont repérées dans le texte en caractères gras encadrés.

I.2 CONTEXTE DE LA DEMANDE

La loi de programme n°2006-739 du 28 juin 2006 relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs prévoit que l'Andra dépose une demande d'autorisation de création (DAC) d'un centre de stockage de déchets radioactifs de haute activité et de moyenne activité à vie longue (HA-MAVL) en formation géologique profonde, en vue de son instruction en 2015. Elle prévoit également que le dépôt de la DAC soit précédé d'un débat public « *sur la base d'un dossier réalisé par l'Andra* ». Elle définit enfin les objectifs du Plan national de gestion des matières et déchets radioactifs (PNGMDR).

L'ASN indique, dans la lettre ASN/CODEP-DRC-2012-045908 précitée, qu'elle « *souhaite prendre position, en préalable au début du débat public prévu par la loi* », sur le rapport relatif aux études réalisées dans le cadre du PNGMDR sur le comportement à long terme des combustibles usés en conditions de stockage. Il est à noter que de précédentes instructions ont déjà traité de sujets équivalents mais à un stade différent d'avancement. En effet, l'examen par l'IRSN du modèle de relâchement des combustibles usés a été présenté lors de la réunion du GPD du

8 juin 2004 consacrée aux « phénomènes géochimiques régissant le relâchement et le transport des radionucléides dans un stockage en formation géologique profonde ».

I.3 PRESENTATION DU DOSSIER DE L'ANDRA

L'Andra a transmis à l'ASN le rapport relatif aux études sur le comportement à long terme des combustibles usés en conditions de stockage, établi dans le cadre du PNGMDR [2]. Ce rapport est accompagné de deux rapports du CEA de janvier 2011 [3] et décembre 2011 [4] relatifs au modèle opérationnel (MOP) de relâchement des combustibles usés en conditions de stockage. Ce dossier a été complété au cours de l'instruction par deux nouveaux rapports du CEA, le premier concernant le MOP de relâchement des combustibles usés de décembre 2009 [5] et le second le relâchement instantané de radionucléides d'octobre 2009 [6].

II MODELE DE RELACHEMENT DES COMBUSTIBLES USES

Par lettre CODEP-DRC-2012-045908 du 29 août 2012, l'ASN indique qu'elle « *souhaite prendre position, en préalable au début du débat public prévu par la loi, sur [...] les résultats des études sur le comportement des combustibles en formation géologique profonde et leur incidence éventuelle sur la faisabilité de leur stockage au regard des options de conception présentées dans le « Dossier 2005 Argile », examiné par le groupe permanent lors des séances des 12 et 13 décembre 2005* ».

Le retraitement des combustibles usés constitue un des choix prioritaires de la France en termes de gestion de l'aval du cycle. Les combustibles usés sont ainsi considérés comme des matières valorisables. La stratégie de gestion de ces matières ne suppose donc pas leur stockage direct en milieu géologique profond. L'Andra a cependant étudié cette option dans le cadre de la loi de 1991. Ainsi, un concept d'alvéole et de colis de stockage a été développé par l'Andra [7], dont l'évaluation par l'IRSN a été présentée lors des réunions du groupe permanent « déchets » des 12 et 13 décembre 2005 [1]. Par ailleurs, un modèle de relâchement des combustibles usés en condition de stockage, développé par le CEA, a été présenté par l'Andra [8] et a également fait l'objet d'évaluations de l'IRSN, présentées lors des réunions du groupe permanent « déchets » des 12 et 13 décembre 2005 [1].

En accord avec les prescriptions du PNGMDR 2010-2012, l'Andra poursuit des études sur le comportement à long terme des combustibles usés en conditions de stockage à titre conservatoire dans le cadre du projet PRECCI (Programme de Recherche sur l'Evolution à long terme des Colis de Combustibles Irradiés), menées en collaboration avec le CEA et EDF. Ces études ont notamment pour objectif de « *disposer d'un modèle de relâchement des radionucléides par les crayons de combustibles irradiés en stockage moins majorant que celui retenu pour le Dossier 2005 et permettant de quantifier l'influence de l'environnement* ». L'état d'avancement du modèle de relâchement, développé par le CEA, est présenté par l'Andra dans les documents [2], [3], [4], [5] et [6].

II.1 STRATEGIE DE GESTION DES COMBUSTIBLES EN REACTEUR

La notion de « gestion du combustible » renvoie à la manière d'utiliser les combustibles le plus économiquement possible tout en respectant les impératifs liés à la sûreté d'exploitation des réacteurs. Les options de gestion mises en place varient en fonction des deux paramètres suivants :

- le taux d'enrichissement en ^{235}U pour le combustible UO_2 et/ou la teneur maximale moyenne en plutonium (Pu) pour le combustible MOX,
- la fraction du cœur à renouveler à chaque rechargement.

Ces paramètres permettent ensuite de définir la longueur de cycle d'irradiation et le taux de combustion (ou de décharge) atteint par les assemblages après leur séjour en réacteur, exprimé en MWj/t. Ce dernier paramètre constitue une des données d'entrée importante des études relatives aux modèles de relâchement des combustibles usés. Les taux de combustion des assemblages diffèrent selon la gestion qui est mise en place, l'ensemble de ces gestions mises en place en France sont décrites en Annexe T1.

Bien que la stratégie de gestion des combustibles usés ne suppose pas leur stockage direct en milieu géologique profond, l'Andra présente dans l'Inventaire National 2012 un scénario en cas de non renouvellement du parc

nucléaire actuel, entraînant l'arrêt du traitement des combustibles usés. Ce scénario impliquerait le reclassement en déchets HA d'environ 50 000 assemblages de combustibles de type UOX et 6 000 assemblages de combustibles MOX.

II.2 CONCEPT DE STOCKAGE DIRECT DES COMBUSTIBLES USES

Comme indiqué ci-avant, l'Andra a présenté en 2005 un concept d'alvéole et de colis de stockage de combustibles usés.

Alvéole de stockage

L'alvéole de stockage de combustibles usés est un tunnel horizontal borgne d'environ 2,5 m (colis mono-assemblage) à 3 m (colis de quatre assemblages) de diamètre et de 45 m de longueur totale (cf. Figure II-1). La chaleur produite par les colis est évacuée par conduction passive dans la formation géologique.

Le corps de l'alvéole (environ 35 m de long) est équipé, de la roche vers l'intérieur :

- d'un soutènement métallique constitué de viroles en acier (25 à 30 mm d'épaisseur) perforé ;
- d'une barrière ouvragée argileuse (80 cm d'épaisseur) constituée d'anneaux préfabriqués d'argile gonflante et de sable. Sa fonction principale est de constituer un milieu exclusivement diffusif qui intervient lorsque le conteneur de combustibles usés atteint sa fin de vie ;
- d'un chemisage métallique recevant trois à quatre colis (selon leur puissance thermique) séparés par des intercalaires. Sa fonction principale est de faciliter la mise en place des colis.

La tête de l'alvéole (10 m de long) est constituée d'un chemisage permettant la mise en place des colis. Lorsque la fermeture est décidée, un bouchon métallique de protection biologique est mis en place, puis un noyau d'argile gonflante est introduit et un bouchon de béton est coulé pour assurer un appui mécanique.

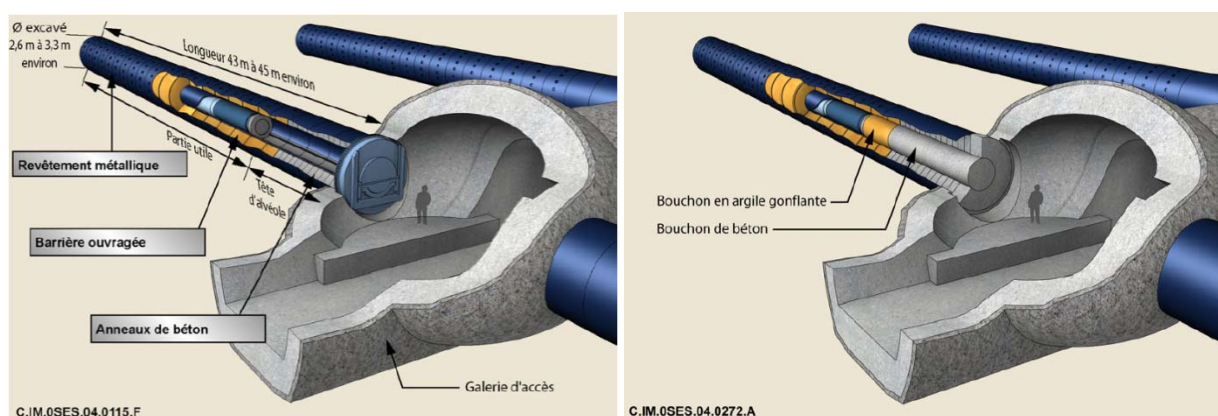


Figure II-1- Alvéole de combustibles usés en configuration d'exploitation (gauche) et scellé (droite)

Colis de stockage

Dans le cas où les combustibles usés ne seraient pas retraités, il est envisagé pour leur stockage de placer les assemblages combustibles dans un conteneur cylindrique constitué d'un corps et d'un couvercle en acier non allié (P235) soudés par faisceau d'électrons (cf. Figure II-2). Les assemblages de type UOX/URE contiennent des pastilles d'oxyde d'uranium UO_2 , et ceux de type MOX contiennent des pastilles d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium $(U,Pu)O_2$. Le nombre d'assemblages par conteneur est fixé à quatre pour les combustibles UOX/URE

pour limiter la charge thermique du colis de stockage et pour la manutention. Un insert interne en fonte (épaisseur minimale de 45 mm) maintient un espacement entre les quatre assemblages combustibles, en vue de garantir la sous-criticité et d'assurer la tenue mécanique du colis à la pression externe. Ce colis de stockage de 1,25 m de diamètre, dont la longueur varie entre 4,5 et 5,4 m, pèse entre 35 et 43 tonnes. Pour les combustibles MOX et certains UOX (dont la réactivité vis-à-vis du risque de criticité serait plus élevée que celle des combustibles usés standards), un seul assemblage est placé par conteneur en raison de leur puissance thermique ou du risque de criticité. Pour les colis à un assemblage, la tenue mécanique du colis de stockage est assurée par l'enveloppe du conteneur, tandis que pour les colis à 4 assemblages, l'insert contribue à la tenue mécanique. La masse de ce colis de stockage mono-assemblage, de 0,62 m de diamètre et de 4,5 à 5,4 m de longueur, est de 8 à 10 tonnes. L'épaisseur de l'enveloppe du conteneur est de 110 mm pour le conteneur à quatre assemblages et de 120 mm pour le conteneur mono-assemblage. Le conteneur de combustibles usés a pour fonction d'assurer un confinement sur le long terme : la durée minimale d'étanchéité à l'eau du conteneur de combustibles usés visée est de 10 000 ans.

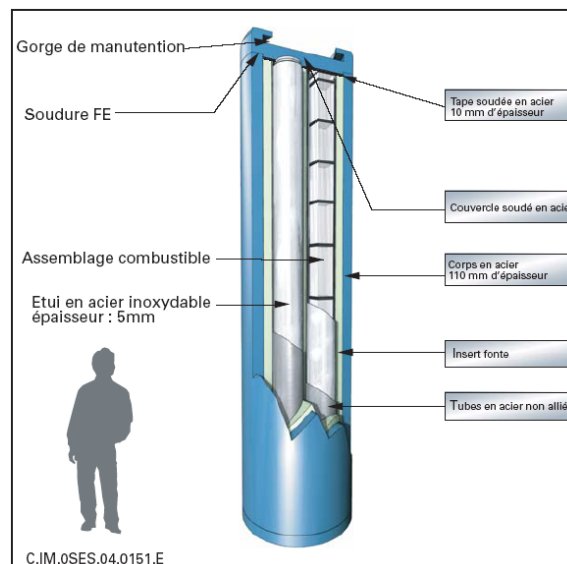


Figure II-2 - Colis de stockage de grand diamètre, 4 assemblages UOX ou URE

II.3 RELACHEMENT DES COMBUSTIBLES EN CONDITIONS DE STOCKAGE

Au sein des assemblages de combustibles usés, les radionucléides sont localisés principalement dans les pastilles d'UOX et de MOX et, d'une façon moindre, dans les matériaux métalliques de structure (gainés des crayons, ressorts, embouts, vis...) ; des gaz de fission sont également présents dans les vides situés à l'intérieur des crayons. L'Andra prend pour hypothèse que la rupture d'étanchéité du conteneur intervient après 10 000 ans de stockage. Ceci conduit à l'arrivée d'eau au contact des pastilles de combustibles usés et au relâchement de radionucléides. Pour décrire ce relâchement, l'Andra a présenté dans le Dossier 2005 trois modèles en fonction de la localisation des radionucléides [8]. Pour ce qui concerne l'activité contenue à l'intérieur des crayons (en dehors des grains de la pastille), l'Andra considère, dès l'arrivée de l'eau au contact du déchet après corrosion du conteneur, un relâchement immédiat, ou IRF (Instant Release Fraction) des radionucléides présents dans les vides entre la pastille et la gaine, entre les pastilles (gap), dans les joints de grains, dans le « rim » (zone périphérique des pastilles soumise au flux neutronique le plus intense et où le taux de combustion est localement élevé), ainsi que dans les amas de Pu. Les radionucléides présents dans les grains de la pastille sont relâchés au fur et à mesure de la dissolution de l'oxyde au contact de l'eau de resaturation. Enfin, pour ce qui concerne l'activité associée aux pièces métalliques de structure (produits d'activation), l'Andra considère qu'elle est relâchée au fur et à mesure de leur corrosion. L'examen de ces trois modèles a été présenté par l'IRSN lors de la réunion du groupe permanent « déchets » des 12 et 13 décembre 2005 [1].

L'évaluation des modèles de relâchement instantané de radionucléides et de dissolution de la pastille de combustibles usés font respectivement l'objet des sections II.3.2 et II.3.3. Le modèle de relâchement de l'activité associée aux pièces métalliques de structure des assemblages n'ayant pas fait l'objet d'une réactualisation de la part de l'Andra depuis le Dossier 2005, celui-ci n'est pas repris dans la présente analyse.

II.3.1 CARACTERISTIQUES DES PASTILLES DE COMBUSTIBLES EN SORTIE DE REACTEUR

Géométrie des pastilles de combustible

La matrice des pastilles UOX et URE est constituée de grains d'uranium d'environ $9 \pm 2,4 \mu\text{m}$. La matrice des pastilles MOX est constituée de grains d'uranium de taille plus faible, de l'ordre de $5,9 \pm 0,9 \mu\text{m}$, et d'amas riches en Pu, dont la taille varie de quelques μm à plusieurs dizaines de μm , eux-mêmes constitués de grains dont la taille peut atteindre $10 \mu\text{m}$ [8]. Les caractéristiques géométriques moyennes des pastilles UOX et MOX sont présentées dans le Tableau II-1.

Caractéristiques	Moyenne sur l'ensemble des pastilles UOX	Moyenne sur l'ensemble des pastilles MOX
Diamètre pastille (mm)	8,192	8,191
Hauteur pastille (mm)	14,16	11,62

Tableau II-1. Caractéristiques géométriques des pastilles UOX et MOX

Influence de l'irradiation en réacteur

Au cours de l'irradiation, la variabilité radiale et axiale de la puissance linéique peut conduire à des gradients de température. A cet égard, il convient de noter que la répartition axiale du taux de combustion en fin d'irradiation est relativement uniforme, tandis que la densité de fission radiale n'est pas uniforme [8]. Ainsi, les températures subies au centre de la pastille sont plus élevées qu'en périphérie, ce qui influence le taux de fracturation et l'état microstructural en sortie de réacteur.

Fracturation de la pastille

En raison du gradient radial de température, la dilatation thermique est plus importante dans la zone centrale qu'à la périphérie de la pastille. La fracturation de la pastille est fonction du taux de combustion jusqu'à 40 GWj.t^{-1} [8].

Etat microstructural des pastilles de combustibles en sortie de réacteur

Sous l'effet de l'irradiation en réacteur, les structures des pastilles de combustibles usés sont modifiées de façon importante. En particulier, les joints de grains sont fragilisés et les tailles de grains sont modifiées.

La microstructure des pastilles UOX peut être décrite selon deux zones concentriques :

- la zone centrale et intermédiaire ($0 < r < 0,96 r_0$), dont les grains conservent leur taille d'origine. Des bulles intragranulaires, ainsi que des bulles micrométriques au niveau des joints de grains, sont observées en zone centrale ($0 < r < 0,5 r_0$) où les températures de fonctionnement en réacteur sont les plus élevées [Ferry, 2005]. En zone intermédiaire, des bulles de taille nanométriques sont observées aux joints de grains,
- la zone périphérique, ou « rim » ($0,96 r_0 < r < r_0$), qui apparaît lorsque le taux de combustion moyen dépasse 40 GWj.t^{-1} . Cette zone complètement restructurée est très poreuse (15 %) et constituée de petits grains infra-micrométriques. Les taux de combustion sont 2 à 3 fois plus élevés dans le rim que dans le reste de la pastille.

La microstructure des pastilles MOX, fabriquées selon le procédé MIMAS à l'usine MELOX, peut être décrite selon deux phases principales :

- une phase « UO₂ » dont le taux de combustion local reste faible, regroupant notamment les petits amas de Pu ($< 10 \mu\text{m}$) et la matrice UO₂. Cette phase constitue environ 90 % de la pastille,
- les amas de Pu ($> 10 \mu\text{m}$), dont le taux de combustion local est élevé.

Inventaire radiologique

Les pastilles de combustibles contiennent des radionucléides sous différentes formes chimiques :

- les gaz de fission constitués par les gaz rares (Kr, Xe) et les produits de fission volatils (¹²⁹I, ¹³⁵Cs, ¹³⁷Cs,...),
- les produits de fission peu volatils, formant des précipités métalliques ou d'oxydes, tels que ⁹⁰Sr, ⁹⁹Tc, ¹⁰⁷Pd,
- les produits d'activation d'impuretés (³⁶Cl et ¹⁴C),
- les actinides et lanthanides, intégrés dans le réseau cristallin des grains de la matrice.

II.3.2 RELACHEMENT INSTANTANE DE RADIONUCLEIDES

Le terme de relâchement instantané, ou IRF, correspond à la somme de deux termes :

- la fraction de radionucléides labiles après la période d'exploitation en cœur du réacteur,
- la fraction de radionucléides devenus labiles avant la perte d'étanchéité du conteneur après 10 000 ans de stockage.

L'IRF dépend principalement des caractéristiques des pastilles de combustibles en sortie de réacteur et de l'évolution de la microstructure du combustible utilisé avant la rupture d'étanchéité du conteneur. En sortie de réacteur, les radionucléides localisés dans les volumes libres (jeu pastille-gaine, joints de grains ouverts) sont susceptibles d'être solubilisés dès la rupture d'étanchéité du conteneur. A ce premier inventaire sont susceptibles d'être ajoutés les radionucléides atteignant ces zones par migration avant la rupture d'étanchéité, ainsi que les radionucléides localisés dans certaines zones fragilisées sous l'effet de l'accumulation d'hélium (He) émis par irradiation alpha. Un précédent modèle a été présenté par l'Andra en 2005 pour l'IRF. Son examen par l'IRSN, présenté lors des réunions du groupe permanent « déchets » des 12 et 13 décembre 2005 [1], avait relevé que la connaissance d'un certain nombre de phénomènes restait parcellaire, tels que la diffusion accélérée par auto-irradiation alpha, la solubilité des amas riches en plutonium (Pu) des combustibles MOX et l'influence du nombre de cycles en réacteur sur la microstructure des combustibles MOX. Depuis le Dossier 2005, l'Andra a engagé des études visant à réduire les incertitudes concernant, d'une part l'effet de l'accumulation d'hélium (He) produit par auto-irradiation alpha sur la microstructure des pastilles de combustible, d'autre part la contribution de la diffusion athermique (ou diffusion accélérée par l'auto-irradiation) au terme IRF, puis à en déduire les conséquences pour le terme IRF des combustibles UOX et MOX. Ces études font l'objet de la présente analyse.

II.3.2.1 CONSEQUENCES DE L'ACCUMULATION D'HE SUR LA MICROSTRUCTURE DES PASTILLES

En appui des études menées sur l'effet de l'accumulation d'hélium (He) sur la microstructure des pastilles de combustibles, l'Andra présente un bilan de connaissances dressé par le CEA, acquises sur le comportement de l'He dans des analogues de combustibles usés (pastilles d'UO₂ dopées ou non en Pu) et sur le mécanisme de relâchement des gaz de fission en conditions de réacteur puis, par analogie, définit un modèle de développement des bulles d'He en conditions de stockage. Ce modèle permet *in fine* de déterminer l'évolution de la microstructure des combustibles, selon les zones restructurées ou non restructurées des pastilles.

Analogues de combustibles usés

Les études sur le comportement de l'He dans les analogues de combustibles usés s'attachent à observer l'impact de l'accumulation d'He sur l'endommagement de pastilles de combustibles [6].

Les études menées sur des pastilles d'UO₂ implantées en He à des teneurs inférieures à 0,6 at%¹ ne révèlent pas de dégâts causés par l'implantation, tandis qu'une étude présentant une implantation de 1,1 at% met en évidence un phénomène d'écaillage du matériau. Toutefois, dans ces études, l'implantation de l'He se limite à la surface des échantillons, qui comprend des grains et des joints de grains dont il est impossible de distinguer le comportement. En outre, ces études ne permettent pas de rendre compte du rôle des bulles de gaz de fission.

¹ Pourcentage atomique

Des études ont également été menées sur des analogues de combustibles usés de type MOX. En particulier, des ruptures de joints de grains ont pu être observées sur des pastilles de $^{238}\text{PuO}_2$ entreposées pendant 25 ans, ainsi que la présence de bulles intragranulaires et de fissures de 10 à 100 nm sur des pastilles de $(\text{U}_{0,9}\text{Pu}_{0,1})\text{O}_2$.

Le CEA relève de façon générale la difficulté de conclure concernant la stabilité des pastilles de combustibles usés au regard de ces seules observations. L'IRSN convient que ces études sont difficiles à mener, compte tenu des conditions d'expérimentation sous rayonnement qu'elles requièrent, et à exploiter, compte tenu de la grande variabilité des conditions d'irradiation des combustibles testées d'une expérience à l'autre.

Mécanisme de relâchement des gaz de fission en réacteur

Le CEA propose une « *approche opérationnelle* », basée sur l'analogie entre les mécanismes de relâchement des gaz de fission des pastilles en réacteur et les mécanismes de relâchement de l'He en conditions d'entreposage et de stockage [6]. Le phénomène de relâchement des gaz de fission des pastilles est très étudié car leur relâchement en réacteur a pour effet d'augmenter la pression interne du crayon et de diminuer la conductivité thermique du jeu pastille-gaine, pouvant entraîner une augmentation de la température du combustible. La transposition de ce mécanisme à l'He est basée sur la comparaison des conditions d'irradiation en réacteur et en stockage (cf. Tableau II-2)

Conditions en réacteur	Conditions en stockage
Courte durée d'irradiation (5-6 ans), T élevée (400 à 1200 °C) à l'intérieur de la pastille	Longue durée avant l'arrivée d'eau, faible T (<200 °C)
Taux de production gaz de fission élevé ($3 \cdot 10^{18} \text{ at} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$)	Taux de production d'He faible ($\leq 9 \cdot 10^{15} \text{ at} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ dans un combustible UOX de $60 \text{ GWj} \cdot \text{t}^{-1}$)
<u>Propriétés des gaz de fission</u> distance diffusion moyenne : 5 µm solubilité max = $3 \cdot 10^{-10} \text{ at} \cdot \text{Xe} / \text{at} \cdot \text{U}$	<u>Propriétés de l'Hélium</u> faible distance de diffusion = 0,15 µm après 10 000 ans Solubilité UO_2 : $7,5 \cdot 10^{-6}$ à $2,7 \cdot 10^{-7} \text{ at} \cdot \text{He} / \text{at} \cdot \text{U}$ selon UO_2 mono ou polycristallin
Dommages créés par fragments de fission ²	Dommages créés par auto-irradiation
Matériau ductile	Matériau fragile

Tableau II-2. Comparaison des conditions de réacteur et de stockage [6]

Les gaz de fission produits en réacteur (Xe et Kr) tendent, du fait de leur faible solubilité dans la matrice UO_2 , à former des bulles intragranulaires de 2 à 100 nm, qui sont partiellement ou totalement détruites par les fragments de fission. Les gaz de fission diffusent de l'intérieur des grains vers les joints de grains par diffusion atomique simple et, à T élevée, via la mobilité des bulles de gaz.

Lorsque la température dépasse 800 °C et la concentration des gaz de fission est suffisante, des bulles intergranulaires se forment aux joints de grains, de 0,1 à 1 µm. Les bulles sont susceptibles de coalescer et de s'interconnecter, formant des réseaux permettant au gaz de s'échapper vers les volumes libres. La percolation du gaz est alors contrôlée par d'une part, le gradient de pression de gaz entre les pores et les volumes libres et d'autre part, la perméabilité du combustible.

² Produits de fission issus de la fragmentation d'un noyau lors de la fission en réacteur

La densité et la taille des bulles intragranulaires dans les pastilles UO₂ dépendent de la température et du taux de combustion : si la température et le taux de combustion augmentent, la taille des bulles augmente et leur concentration diminue.

La pression dans les bulles de gaz de fission est très élevée. Par exemple, la densité de Xénon mesurée (4 à 6 g.cm⁻³) en sortie de réacteur dans des bulles de 4 à 10 nm est proche de la densité solide du Xe, ce qui conduit à des pressions 2 à 3 fois plus élevées que la pression d'équilibre. Cette surpression est en accord avec le mécanisme de croissance des bulles par poussée des boucles de dislocation.

L'IRSN note qu'un grand nombre d'études sur la formation des gaz de fission en réacteur est disponible et forme un état de connaissances étayées.

Mobilité de l'He dans le crayon de combustible

La mobilité des atomes d'He au sein des combustibles usés est contrôlée par ses propriétés de diffusion et de solubilité. Le CEA indique que les processus de diffusion thermique et athermique (ou diffusion accélérée par l'auto-irradiation α , dite D3AI) sont très limités en conditions de stockage. En effet, la distance parcourue par un atome d'He au bout de 10 000 ans avec une valeur haute du coefficient de diffusion athermique, qui décroît au cours du temps de 10⁻²⁵ m².s⁻¹ à environ 10⁻²⁶ m².s⁻¹ après 10 000 ans dans un UOX irradié à 47,5 GWj.t⁻¹, est de l'ordre de 0,15 μ m et la diffusion thermique est peu significative (< 10⁻²⁶ m².s⁻¹) aux températures attendues (< 200 °C). Par ailleurs, la solubilité de l'He dans la matrice UO₂ augmente avec la présence de défauts d'irradiations, de pores ou de joints de grains. Entre 200 et 20 °C, la limite de solubilité de l'He varie entre 0,02 et 0,01 at%. Les faibles propriétés de diffusion et de solubilité favorisent la formation de bulles d'He dès que la pression en gaz est suffisante.

Par analogie avec la formation des bulles de gaz de fission en réacteur, les sites préférentiels de nucléation de bulles sont les défauts créés par l'irradiation en réacteur ou les dommages créés par l'auto-irradiation alpha. Si la distance entre les bulles de gaz de fission est faible comparée à la longueur de diffusion des atomes d'He, l'He peut être piégé. Ainsi, les caractéristiques initiales de la population de bulles intragranulaire de gaz de fission formées en réacteur est susceptible d'évoluer pendant le stockage sous l'effet de l'accumulation d'He. Aussi, un modèle d'évolution de l'He intragranulaire est proposé par le CEA : l'He est relâché aux joints de grains soit par la diffusion de l'He vers ces joints, soit par microfissuration si le seuil de rupture est atteint, alimentant ainsi les bulles intragranulaires. L'He peut par la suite être potentiellement piégé dans ces bulles. Deux scénarios peuvent alors conduire au relâchement de l'He et des gaz de fission intragranulaires :

- soit la contrainte de rupture des joints de grains est atteinte,
- soit la couverture des grains par les bulles est suffisante pour permettre une interconnexion des bulles et un relâchement par percolation.

L'IRSN estime que la démarche globale présentée par l'Andra pour établir un modèle de relâchement de l'He en conditions de stockage, basée sur l'analogie avec le mécanisme de relâchement des gaz de fission en réacteur, est pertinente.

Conséquences sur la microstructure de la pastille de combustibles usés

Le CEA propose deux scénarios de rupture de la pastille de combustibles usés :

- si le grain est de taille 10 fois supérieure à la longueur de diffusion de l'He, celui-ci reste dans le grain et le fragilise par augmentation des contraintes internes (bulle intragranulaire),
- si le grain est de petite taille, l'He diffuse jusqu'aux joints de grains, ce qui génère une augmentation de pression dans les pores (bulle intergranulaire).

Pour définir la pression de bulle critique dans les zones non restructurées, le CEA présente deux approches liées soit à la contrainte de traction à rupture de la pastille, soit aux lois d'élasticité classiques. Le premier critère conduit à la microfissuration totale de la pastille, tandis que le deuxième critère conduit à une rupture locale. Pour ce qui concerne les zones restructurées, le critère proposé par le CEA repose sur la résistance à la rupture des céramiques polycristallines. Il convient toutefois de noter que, contrairement à l'UOX, il n'existe pas de données de ténacité pour le MOX.

Le CEA précise que les principales incertitudes de ce modèle reposent sur les critères de rupture. Ainsi, la valeur de la contrainte de rupture (150 MPa) est déduite d'essais de flexion conduisant à la propagation des fissures préexistantes. Elle paraît donc appropriée pour le calcul de pression critique moyenne, mais pénalisante pour l'estimation du critère de rupture local. Par ailleurs, des microfissures partant des bulles de rim ont pu être observées sur des combustibles à très forts taux de combustion (83 GWj.t^{-1}) à 1800°C (Guérin, 2002). Or, l'application du modèle du CEA conduit à une pression des bulles d'He formées inférieure à la pression critique et ne permet pas de reproduire les observations. Le CEA considère à ce sujet que « *cela ne remet pas en cause les conclusions pour le combustible UOX* ».

L'IRSN note que l'Andra a identifié des incertitudes relatives aux critères de rupture, ce qui est satisfaisant. Toutefois, si un stockage direct des combustibles usés est décidé, il conviendrait d'explicitier les raisons pour lesquelles le modèle proposé ne rend pas compte des observations réalisées sur des pastilles ayant subi des taux de combustion élevés.

Modèle d'évolution de la microstructure des zones non restructurées

Le CEA propose un modèle simplifié pour décrire l'évolution de la microstructure des zones non restructurées, basé sur deux hypothèses :

- l'efficacité du piégeage de l'He dans les bulles est supposée illimitée. En effet, la diffusion thermique d'He est supposée supérieure à celles des gaz de fission et des atomes d'uranium (U). Ainsi, le flux d'He est plus important que celui des lacunes d'U. Le scénario le plus pessimiste est donc supposé, considérant l'arrivée d'atomes d'He sans lacune d'U dans les bulles, i.e. sans changer leur taille, entraînant leur pressurisation,
- le comportement mécanique du matériau est supposé fragile : la diffusion thermique et athermique des atomes d'U [Ferry, 2005] est suffisamment faible pour négliger le fluage des matériaux autour des bulles.

Le CEA indique que l'application du modèle aux combustibles UOX conduit à une pression après 10 000 ans trois fois supérieure à la pression en fin d'irradiation, mais reste un ordre de grandeur inférieur au critère de rupture. Ainsi, la fissuration dans les grains et le relâchement d'He dans les joints de grains des zones non restructurées paraît improbable. Au sein des combustibles MOX, la pression de bulle devient au contraire supérieure à la pression critique pour les bulles de 10 à 50 nm de diamètre après 10 000 ans. Ainsi, une microfissuration des grains

et un relâchement d'He aux joints de grains, et leur possible ouverture, ne peut être exclue pour le combustible MOX. Le CEA précise que ce scénario est très pessimiste puisqu'il considère un puits infini dans de petites bulles sans créer de croissance.

L'IRSN note que les hypothèses présentées par l'Andra maximisent effectivement la pression des bulles intragranulaires et, à ce titre, paraissent conservatives. L'IRSN estime toutefois que, même si les bulles étaient laissées libres de croître, l'espace qu'elles sont susceptibles d'occuper est restreint et une limitation de leur croissance paraît inévitable. Aussi, en l'état des connaissances, il est difficile d'évaluer le degré de conservatisme de l'hypothèse faite.

Evolution de la porosité des zones restructurées

Au sein des zones restructurées, la majeure partie de l'He est relâchée par diffusion dans les pores intergranulaires. L'He généré dans les grains de rim ne provoque pas de fissuration de la matrice UO₂. Toutefois, bien que la pression calculée dans les amas de Pu restructurés reste inférieure à la pression critique, elle repose, comme indiquée ci-avant, uniquement sur des mesures de ténacité de combustibles UOX, et non de combustible MOX.

Si un stockage direct des combustibles usés est décidé, l'IRSN considère qu'il conviendra d'acquérir des données expérimentales concernant la ténacité du MOX pour confirmer l'applicabilité du modèle retenu.

En conclusion, l'IRSN considère que la démarche exposée par l'Andra pour déterminer l'influence de l'accumulation d'He sur la microstructure des pastilles de combustibles usés est globalement conservative. Toutefois, le degré de conservatisme de certaines hypothèses reste difficilement appréciable, notamment pour le combustible MOX. L'IRSN note qu'aucune validation complémentaire n'est prévue à ce jour compte tenu de la difficulté de définir et de mettre en œuvre une validation expérimentale du modèle. L'IRSN considère néanmoins que, si le stockage direct des combustibles usés venait à être décidé, la robustesse du modèle proposé devra être vérifiée.

II.3.2.2 EVALUATION DE L'IRF

Modèle de relâchement instantané présenté en 2005

Comme indiqué précédemment, un premier modèle a été présenté en 2005 pour l'IRF. Le modèle présenté conduisait à une fraction labile de ¹⁴C égale à 10 %, une fraction labile des produits de fission gazeux dans le gap, les pores du rim et les joints de grains de 2,1 à 7,8% pour les combustibles de type UOX et de 33,9 à 62,1% dans les combustibles de type MOX, une fraction labile des autres radionucléides provenant du rim ou des amas de Pu de quelques pourcents (1,8 à 5,4 %) dans le cas des combustibles UOX à faible taux de combustion, à plusieurs dizaines de pourcents (30 à 50%) pour les combustibles MOX. Enfin, la diffusion athermique était supposée générer une fraction labile supplémentaire de 5 à 15% pour tout combustible et tout taux de combustion.

Au stade du Dossier 2005, les valeurs d'IRF présentées par l'Andra concernaient les radionucléides ³H, ¹⁴C, ³⁶Cl, ⁷⁹Se, ⁹⁹Tc, ¹⁰⁷Pd, ¹²⁵Sn, ¹²⁹I, ¹³⁵Cs, ¹³⁷Cs et variaient en fonction du taux de combustion des assemblages. L'Andra retenait ainsi des pourcentages d'activité labile variant en fonction du radionucléide concerné entre 2 et 10 % environ pour les combustibles UOX et entre 5 et 30 % environ pour les combustibles MOX.

Nouveau modèle pour la présente instruction

Dans le dossier transmis, le CEA estime que le relâchement instantané des radionucléides après la rupture d'étanchéité du conteneur de combustibles usés dépend (Tableau II-3):

- des zones du crayon dont la capacité de confinement à long terme n'est pas démontrée et de l'inventaire associé,
- de l'évolution de l'inventaire dans ces zones avant l'arrivée de l'eau dans le crayon.

Les zones du crayon contribuant *de facto* à l'IRF sont les volumes libres du crayon (jeu pastille-gaine, fissures, gap) et les joints de grains ouverts. Le modèle présenté par le CEA sur les effets de l'accumulation de l'He sur la microstructure de la pastille démontre que l'ouverture de la porosité du rim sous l'effet de l'He est très peu probable dans les combustibles UOX. Par ailleurs, les données de lixiviation récentes [6] montrent qu'en conditions oxydantes les grains de rim se dissolvent plus lentement que le reste de la pastille. Ces éléments conduisent le CEA à considérer que le rim ne contribue pas à l'IRF.

Influence du coefficient de diffusion athermique

De façon analogue à la mobilité de l'He, les radionucléides sont susceptibles de migrer au sein du crayon sous l'effet de la diffusion thermique, athermique ou mixte. A cet égard, les faibles températures du stockage conduisent à rendre négligeable leur diffusion thermique [6]. Par ailleurs, une nouvelle estimation du coefficient de diffusion athermique a été proposée par [Ferry et al., 2005], trois ordres de grandeur plus faible que celui utilisé pour le précédent modèle d'IRF présenté en 2005. En outre, le CEA indique que de récentes études expérimentales sur des disques d'UO₂ menées dans l'objectif de simuler les effets de l'irradiation alpha confirment cette nouvelle estimation, qui conduit à considérer que la mobilité des produits de fission en conditions de stockage, et donc leur contribution à l'IRF, est négligeable. Cependant, les données récentes acquises par [Pipon et al., 2006 et 2007] montrent que les produits d'activations d'impuretés, ¹⁴C et ³⁶Cl sont plus mobiles que les gaz de fission et contribuent à l'IRF à hauteur d'une fraction de 5 % de l'inventaire relâché depuis les grains vers les joints de grains, calculée à partir de la valeur majorante du coefficient de diffusion athermique.

Zones	Type de combustible	IRF 2004 Argumentaire et RN concernés	€ IRF 2009	Pertinence	Commentaires
Volumes libres (plenum, fissures,...)	UOX et MOX	RN gazeux et volatils directement accessibles, valeurs issues des données expérimentales	Oui	Réaliste	Mise à jour des inventaires sur la base de nouvelles données de lixiviation et des relâchements de gaz de fission (FGR) en fonction du taux de combustion
Joints de grains fermés	UOX	On ne peut démontrer la stabilité des joints de grains. Ils sont donc considérés comme ouverts à l'arrivée de l'eau. Tous RN gazeux et volatils (C, Cl, Se, I, Cs) + métaux précipités (Tc, Pd, Sn)	Oui	Conservatif	La stabilité des joints de grains ne devrait pas évoluer avant l'arrivée de l'eau. La vitesse d'accessibilité des joints de grains n'étant pas connue, de manière conservatrice, on tient compte de tout l'inventaire présent aux joints de grains, fermés ou ouverts. Cependant, cette fraction reste faible.
	MOX	Idem UOX	Oui	Réaliste ?	La stabilité des joints de grains sous l'effet de l'accumulation d'He dans la pastille n'est pas démontrée (cf. § 3.3)
Pores des zones HBS	UOX	RN gazeux et volatils	Non	Réaliste	L'ouverture de la porosité du rim, sous l'effet de l'He, est très peu probable
	MOX	RN gazeux et volatils	Oui	Réaliste ?	L'ouverture de la porosité des zones restructurées reste envisageable
Grains des zones HBS	UOX	Leur faible taille conduit à une dissolution rapide des grains du rim. Tous RN	Non	Réaliste	Dans les conditions oxydantes, les données récentes de lixiviation indiquent que les grains du rim se dissolvent plus lentement que le reste de la pastille
	MOX	Idem UOX	Non	Réaliste	Idem UOX (quelle surface spécifique pour ces zones ?)
Grains	UOX et MOX	Non	Non	Réaliste	Relâchement par la dissolution de la pastille (quelle surface spécifique pour le MOX ?)
Gaine	UOX et MOX	La couche interne et externe de zircone. Les RNs concernés sont ¹⁴ C, ³⁶ Cl, ⁵⁹ Ni, ⁹³ Zr et ⁹⁴ Nb	Oui	Conservatif	Impact négligeable par rapport aux autres contributions (sauf peut être pour le ¹⁴ C)

Tableau II-3. Contribution des différentes zones du cylon de CU à l'IRF [6]

Estimation de l'IRF pour le combustible UOX

Ainsi que précisé ci-avant, la principale évolution du terme source de l'IRF pour les combustibles UOX est la non-contribution du rim. De façon conservatrice, le CEA considère toutefois que tout l'inventaire compris dans les joints de grains, ouverts ou fermés, contribuent à l'IRF.

Pour ce qui concerne les produits de fission volatils (^{129}I , ^{135}Cs et ^{137}Cs) les valeurs proposées correspondent à la fraction des gaz de fission relâchée en réacteur. A cet égard, l'IRSN rappelle que peu de données sont disponibles pour des taux de combustion au-delà de 50 GWj.t^{-1} et rappelle que le projet européen MICADO³ concluait que de larges incertitudes demeuraient concernant l'estimation de la fraction de gaz de fission relâchée en réacteur.

Pour ce qui concerne les produits de fission peu volatils, susceptibles de former des précipités métalliques ou oxydes aux joints de grains (^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{107}Pd), la valeur proposée correspond aux données de lixiviation dans la littérature [Johnson et al., 2005].

Pour ce qui concerne les produits d'activation d'impuretés (^{14}C et ^{36}Cl), la valeur d'IRF majorante retenue en 2005 pour le ^{14}C est inchangée. La valeur proposée par l'Andra pour le ^{36}Cl correspond à 3 fois la fraction de gaz de fission relâchée. L'Andra précise que ces valeurs pénalisantes sont liées à l'incertitude sur la mobilité du ^{36}Cl au sein de la pastille de combustible. Par ailleurs, l'Andra précise que l'inventaire total en ^{14}C et ^{36}Cl reste mal connu. L'IRSN souligne que les résultats du projet européen MICADO (2010) corroborent ce constat et relève que l'incertitude associée à l'inventaire des radionucléides peut atteindre un facteur 3. Toutefois, les valeurs qui sont considérées pour le ^{14}C et le ^{36}Cl dans les évaluations de performance du projet MICADO paraissent suffisamment élevées pour que leur sous-estimation soit peu probable.

Les estimations de l'IRF sont rapportées dans le Tableau II-4. En comparaison avec les valeurs présentées au stade du Dossier 2005, l'IRSN constate que les valeurs d'IRF sont globalement inchangées pour la plupart des radionucléides, excepté pour le ^{36}Cl .

TC	40	45	55	60
FGR	0,3 (1)	0,3 (1,1)	2,4 (3,7)	3,4 (5,0)
^{14}C	10	10	10	10
^{36}Cl	3	3,3	11	15
^{79}Se	0,3 (1)	0,3 (1)	2,4 (3,7)	3,4 (5)
^{90}Sr	0,1 (0,3)	0,1 (0,3)	0,1 (2,4)	0,1 (3,4)
^{99}Tc	0,1 (0,3)	0,1 (0,3)	0,1 (2,4)	0,1 (3,4)
^{107}Pd	0,1 (0,3)	0,1 (0,3)	0,1 (2,4)	0,1 (3,4)
^{126}Sn	0,01 (0,3)	0,01 (0,3)	0,01 (2,4)	0,01 (3,4)
^{129}I	0,3 (1)	0,3 (1,1)	2,4 (3,7)	3,4 (5)
^{135}Cs	0,3 (1)	0,3 (1,1)	2,4 (3,7)	3,4 (5)
^{137}Cs	0,3 (1)	0,3 (1,1)	2,4 (3,7)	3,4 (5)

Tableau II-4. Estimations moyennes et pénalisantes (entre parenthèses) de l'IRF(t=0) en % de l'inventaire total, pour chaque combustible UOX en fonction du taux de combustion TC (GWj.t^{-1})

³ Model uncertainty for the mechanism of dissolution of spent fuel in nuclear waste repository - Projet européen du 6e PCRD sur l'influence des incertitudes relatives au relâchement des radionucléides des combustibles usés sur la sûreté globale d'un stockage géologique.

L'Andra relève que les incertitudes qui subsistent conduisent à maintenir des valeurs d'IRF conservatives pour le ^{36}Cl . Des travaux menés actuellement au sein du projet PRECCI visent à évaluer de manière plus précise l'inventaire en chlore au sein du combustible. Par ailleurs, le projet européen « FIRST Nuclides » dédié à l'acquisition de données sur l'IRF des combustibles usés a démarré en janvier 2012 pour trois ans avec l'objectif d'acquérir des données complémentaires sur l'IRF de combustibles UOX de haut taux de combustion et de réduire les incertitudes relatives à l'IRF, notamment pour les radionucléides d'intérêt tels que ^{129}I , ^{79}Se , ^{135}Cs , ^{14}C . Ceci est satisfaisant.

L'IRSN souligne que les études réalisées ont permis de réduire les incertitudes concernant le coefficient de diffusion athermique et que les résultats présentés permettent de considérer que le rim ne contribue pas à l'IRF. L'IRSN note que des incertitudes sur l'inventaire du ^{14}C et du ^{36}Cl , ainsi que sur la mobilité du ^{36}Cl , demeurent. Ces incertitudes ont conduit l'Andra à réévaluer la valeur de l'IRF du ^{36}Cl . L'IRSN considère que les incertitudes sont correctement couvertes en l'état des connaissances et que des études expérimentales complémentaires sont en cours, ce qui est satisfaisant.

Bien que la performance globale du stockage soit peu sensible à l'IRF, l'IRSN considère que l'Andra devra présenter une évaluation d'impact du stockage prenant en compte la modification de la valeur d'IRF du ^{36}Cl en support à la DAC.

Ce point a fait l'objet de l'engagement E2.1 de la part de l'Andra (cf. Annexe A2).

Estimation de l'IRF pour les combustibles MOX

De façon similaire à la détermination des zones du crayon contribuant à l'IRF pour les combustibles UOX, l'Andra considère pour les combustibles MOX que l'inventaire compris dans les volumes libres et dans les joints de grains, ouverts ou fermés, contribuent à l'IRF. Par ailleurs, l'Andra considère également que l'inventaire des radionucléides localisés dans les amas de Pu contribue à l'IRF. Toutefois, à la différence du modèle présenté en 2005, la fraction d'inventaire présente dans les grains des amas de Pu n'est pas prise en compte, ce qui exclut les actinides de l'IRF (Tableau II-5).

Pour ce qui concerne les produits de fission volatils (^{129}I , ^{135}Cs et ^{137}Cs), les valeurs proposées correspondent à la fraction des gaz de fission présente dans les volumes libres, les joints de grains et les pores des amas de Pu restructurés. Pour ce qui concerne les produits de fission peu volatils (^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{107}Pd), l'IRF correspond à l'inventaire susceptible d'être présent dans les pores des amas de Pu. En raison du peu de données de lixiviation disponibles pour le combustible MOX, elle est prise égale, « *de manière conservative, à l'inventaire des gaz de fission* ».

Enfin, l'estimation de l'IRF des produits d'activation d'impuretés (^{14}C et ^{36}Cl) est déterminée selon la même démarche que pour les combustibles UOX, en tenant compte également de la contribution provenant des pores des amas de Pu. Ainsi, la valeur d'IRF proposée pour l'IRF du ^{36}Cl des combustibles MOX est également réévaluée et correspond à 3 fois la fraction de gaz de fission relâchée. A cet égard, l'IRSN rappelle, ainsi que précisé ci-avant pour les combustibles UOX, que l'incertitude associée à l'inventaire de ces radionucléides peut atteindre un facteur 3.

TC	40	45	55	60
FGR	2 (6)	3,2 (7,7)	5,6 (14,1)	6,8 (16,9)
¹⁴ C	30 (35)	30 (40)	30 (45)	30 (45)
³⁶ Cl	26 (31)	30 (40)	37 (52)	40 (55)
⁷⁸ Se	22 (31)	23 (38)	25 (49)	27 (52)
⁹⁰ Sr	20 (25)	20 (30)	20 (35)	20 (35)
⁹⁹ Tc	20 (25)	20 (30)	20 (35)	20 (35)
¹⁰⁷ Pd	20 (25)	20 (30)	20 (35)	20 (35)
¹²⁶ Sn	20 (25)	20 (30)	20 (35)	20 (35)
¹²⁹ I	22 (31)	23 (38)	25 (49)	27 (52)
¹³⁵ Cs	22 (31)	23 (38)	25 (49)	27 (52)
¹³⁷ Cs	22 (31)	23 (38)	25 (49)	27 (52)

Tableau II-5. Estimations moyennes et pénalisantes (entre parenthèses) de l'IRF(t=0) en % de l'inventaire total, pour chaque combustible MOX en fonction du taux de combustion TC (GWj.t⁻¹)

L'Andra prévoit le développement d'un modèle analytique intégrant les cinétiques de gonflement des bulles d'hélium et permettant de calculer l'évolution de la population de bulles d'hélium au cours du temps, en termes de taille et de densité. Les valeurs d'IRF ne pourront être revues que si ce modèle permet de réduire de manière suffisante les marges de conservatisme actuelles et de démontrer ainsi la stabilité des joints de grain et surtout des pores des amas Pu restructurés au cours du temps. Seule la démonstration de la stabilité de ces derniers permettra un gain significatif sur l'IRF des MOX puisque les amas restructurés contribuent actuellement à près de 80 % de l'IRF.

L'IRSN note les incertitudes relevées par l'Andra sur le terme IRF en raison du manque de données sur la lixiviation du MOX et de l'absence de mesures de la ténacité du MOX. Par ailleurs, l'IRSN souligne que les incertitudes relevées au stade du Dossier 2005 concernant l'influence du nombre de cycles en réacteur sur le terme d'IRF des combustibles MOX ne sont pas pris en compte dans le modèle présenté par l'Andra.

II.3.2.3 CONCLUSION SUR L'IRF

De façon globale, l'IRSN constate que les études menées ont permis une acquisition importante de connaissances, en particulier concernant les effets de l'accumulation d'He sur la microstructure de pastilles de combustibles usés ainsi que concernant l'influence de la diffusion athermique sur l'IRF.

Les valeurs d'IRF présentées pour l'UOX paraissent en bon accord avec cette acquisition de connaissances. A cet égard, l'IRSN note que les radionucléides localisés dans le rim ne contribuent plus à l'IRF. Pour autant, en comparaison avec les valeurs présentées au stade du Dossier 2005, l'IRSN constate que les valeurs d'IRF sont globalement inchangées pour la plupart des radionucléides, excepté pour le ³⁶Cl.

Pour ce qui concerne le combustible MOX, à la différence du modèle présenté en 2005, l'IRSN note que la fraction d'inventaire présente dans les grains des amas de Pu n'est pas prise en compte, ce qui exclut les actinides de l'IRF. Par ailleurs l'IRSN relève le manque de données expérimentales concernant la lixiviation et la ténacité du MOX. Dans le cas où un stockage de combustibles usés venait à être décidé, des études expérimentales seraient nécessaires pour compléter ces connaissances.

II.3.3 DISSOLUTION DE LA MATRICE

Lors de la rupture du conteneur, supposée intervenir après 10 000 ans de stockage selon le scénario retenu par l'Andra, l'eau porale entre en contact avec les pastilles de combustible, puis est soumise à l'irradiation alpha.

Cette irradiation conduit à la génération d'espèces oxydantes et réductrices à l'interface eau/matrice par décomposition radiolytique de l'eau. La matrice des combustibles est alors soumise à un phénomène de dissolution, dont la cinétique est contrôlée par les équilibres chimiques à l'interface entre l'eau de resaturation et la matrice UO_2 ou $(\text{U},\text{Pu})\text{O}_2$ ⁴. Ces équilibres chimiques sont principalement influencés par les réactions de radiolyse de l'eau, ainsi que par les réactions électrochimiques entre la matrice UO_2 et la solution d'eau porale. Le modèle de dissolution de la matrice de combustible proposé par l'Andra a évolué d'une approche purement radiolytique au stade du Dossier 2005, vers une approche couplant les phénomènes de radiolyse et les réactions électrochimiques entre les espèces générées par la radiolyse et la matrice d' UO_2 . Cette dernière a conduit l'Andra à mener de nouvelles études en vue :

- de préciser l'inventaire des espèces radiolytiques susceptibles d'être produits par radiolyse de l'eau porale,
- de déterminer le potentiel électrochimique à l'interface entre la matrice d' UO_2 et l'eau porale,
- de mener une analyse de sensibilité sur les principales hypothèses retenues dans le modèle.

II.3.3.1 METHODOLOGIE RETENUE

Rappel sur le modèle présenté en 2005

Le modèle de dissolution de la matrice présenté par l'Andra en 2005 considérait principalement deux processus chimiques : la dissolution radiolytique de la matrice d' UO_2 par les produits oxydants issus de la radiolyse de l'eau d'une part, et la dissolution lente de cette même matrice par solubilisation chimique d'autre part. Le premier processus était considéré comme prépondérant lors de l'arrivée d'eau au contact de la matrice et se décomposait en trois étapes :

- une première étape de production d'espèces, oxydantes et réductrices, par radiolyse de l'eau,
- une seconde étape d'oxydation de la matrice de combustible,
- une troisième étape de dissolution de la matrice.

Les vitesses de dissolution obtenues selon le type de combustible étaient de $2,35 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{j}^{-1}$ pour un combustible de type MOX G1, $4,86 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{j}^{-1}$ pour un combustible de type MOX G4 et $0,59 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{j}^{-1}$ pour un combustible de type UOX G1. Le modèle proposé conduisait ainsi à un relâchement des radionucléides durant 50 000 à 100 000 ans.

Les principales incertitudes relevées par l'IRSN lors de l'examen du Dossier 2005 [1] concernaient le rendement radiolytique à température élevée d'une part, et la prise en compte d'une composition représentative de la solution d'eau porale d'autre part. En effet, le modèle proposé tenait peu compte des conditions d'environnement, en supposant simplement une température fixe, un pH neutre et un milieu oxydant.

Evolutions depuis 2005

L'Andra a indiqué au cours de l'instruction que, jusqu'en 2006, les principales études menées portant sur l'altération de la matrice UO_2 du combustible irradié ont visé à quantifier les effets de la radiolyse alpha de l'eau

⁴ Dans la suite du rapport, le terme « matrice UO_2 » se rapporte à la fois à la matrice d' UO_2 des combustibles UOX ou $(\text{U},\text{Pu})\text{O}_2$ des combustibles MOX

sur la dissolution oxydante de l'UO₂ dans des systèmes simples (eau pure, eau carbonatée) afin de comprendre les mécanismes d'altération mis en jeu (contrôle par la radiolyse ou la solubilité) et qu'il apparaissait nécessaire d'étudier l'incidence des conditions d'environnement sur ces mécanismes d'altération (matériaux d'environnement, chimie des eaux, produits de corrosion des conteneurs, hydrogène, ...).

La nouvelle approche proposée aujourd'hui dans le rapport présenté par l'Andra [2] consiste en une approche électrochimique appliquée au système UO₂²⁺/UO₂ en milieu acide non complexant, puis étendue à une eau représentative des conditions environnementales. Conceptuellement, le modèle de dissolution proposé par l'Andra repose sur les hypothèses suivantes:

- la radiolyse alpha de l'eau conduit à la production d'un terme source d'espèces oxydantes,
- un équilibre électrochimique s'impose alors entre la solution d'eau porale et la matrice UO₂,
- cet équilibre impose une surtension⁵ qui s'applique à UO₂ et permet de calculer la vitesse de dissolution de la matrice d'UO₂,
- la spéciation de l'uranium en phase aqueuse permet de définir les espèces secondaires susceptibles de précipiter.

Le dossier fourni par l'Andra traite essentiellement des trois premiers points.

Le modèle électrochimique présenté par l'Andra permet de relier la surtension par rapport à la tension d'équilibre avec une densité de courant, elle-même directement reliée à une vitesse de corrosion (ou d'oxydation) du métal UO₂ par la relation suivante :

$$j_0 = n \cdot F \cdot k_0 \cdot [H^+]^a \cdot [U^{VI}]^b$$

Les vitesses de dissolution de la matrice UO₂ sont ainsi calculées « dans les conditions redox attendues en stockage pour les différents types de combustibles en fonction de leur activité alpha » et sont confrontées aux résultats d'expériences de lixiviation menées en parallèle dans des systèmes se rapprochant des conditions de stockage (eau de site, couplage eau de site/hydrogène/matériaux d'environnement) afin de vérifier la robustesse du modèle.

L'IRSN considère que la prise en compte des conditions d'environnement physico-chimiques dans le modèle de dissolution de la matrice UO₂ est satisfaisante.

II.3.3.2 MODELE DE DISSOLUTION DE LA MATRICE DE COMBUSTIBLE

Les études présentées par l'Andra concernent principalement les calculs radiolytiques et électrochimiques réalisés en vue de déterminer la surtension applicable à la matrice d'UO₂.

II.3.3.2.1 Calcul du terme source

Comme évoqué précédemment, le calcul du terme source est basé sur l'activité émise par les différents types de combustibles usés et sur un calcul cinétique de radiolyse.

Calcul de l'activité des combustibles usés

⁵ On appelle surtension la différence entre le potentiel électrochimique d'équilibre à l'électrode et le potentiel qui lui est réellement appliqué

Le document [5] présenté par l'Andra indique l'évolution de l'activité alpha émise selon les types de combustibles (Figure II-3), fondée sur les données fournies par la base Catalog. L'évolution de l'activité alpha est similaire pour les 13 types de combustibles de la base, avec un facteur 30 entre le combustible le plus et le moins actif en sortie de réacteur, réduit à un facteur 8 au bout de 10 000 ans. Le combustible de type MOX G1 est dans la moyenne supérieure du lot et est considéré comme combustible de référence.

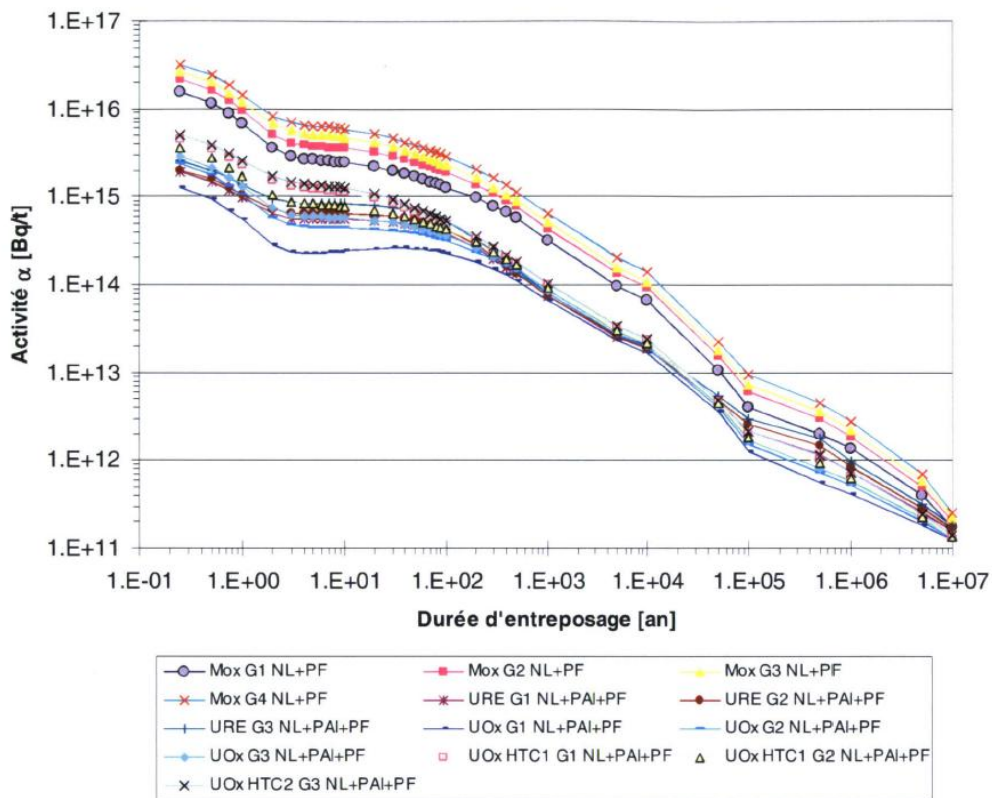


Figure II-3. Evolution de l'activité alpha selon les types de combustibles de la base Catalog.

L'IRSN relève que les combustibles provenant de la base Catalog, ainsi que les caractéristiques retenues pour calculer l'évolution de l'activité massique alpha dans les assemblages de combustibles usés, sont représentatifs de la gestion du combustible actuellement en place sur le parc des 58 réacteurs.

Calcul cinétique

Les données d'entrée prises en compte dans le calcul cinétique sont similaires à celles prises en compte dans le calcul réalisé en support au modèle de dissolution proposé dans le Dossier 2005, en particulier pour ce qui concerne les équations cinétiques considérées [Poinssot et al., 2005] : une épaisseur de radiolyse de 40 μm correspondant au parcours d'une particule α dans l'eau, une épaisseur de diffusion de 200 μm pour les espèces moléculaires et 40 μm pour les espèces radicalaires telles que $\text{OH}\cdot$. Les calculs sont menés en considérant une eau pure en premier lieu, puis une eau carbonatée en second lieu. Les schémas cinétiques de radiolyse de l'eau ainsi que les rendements radiolytiques considérés sont ceux établis dans le cadre du projet européen SFS (Spent Fuel Stability under repository conditions) et utilisés sur le plan international dans le cadre du projet MICADO. L'IRSN souligne que des incertitudes sur les valeurs de rendement ont été relevées dans le cadre du projet européen MICADO, pouvant mener à des variations des concentrations en H_2O_2 calculées, de l'ordre de 30%. A cet égard, l'Andra précise qu'il n'y a pas d'étude de sensibilité programmée sur ces données d'entrée.

Les résultats du calcul cinétique mettent en évidence une différence, selon le type de combustible de la base Catalog, d'un facteur 3 sur les teneurs en H_2 , O_2 et H_2O_2 , ainsi qu'une variation de l'ordre de 10% pour le pH. La prise en compte de la présence de carbonates modifie significativement les concentrations en espèces radiolytiques et conduit à la formation d'ions oxalates et formiates, mais à des concentrations insuffisantes pour modifier de façon significative la prédominance des complexes hydroxydes à pH neutre. Ainsi, à pH neutre, les complexes d'hydroxydes ($\text{UO}_2(\text{OH})_2$ et $\text{U}(\text{OH})_4$) sont majoritaires.

L'IRSN considère que les calculs réalisés par l'Andra et les incertitudes prises en compte sur les équilibres de complexation de l'uranium sont en bon accord avec l'état actuel des connaissances. Toutefois, si le stockage direct des combustibles usés était décidé, l'IRSN considère qu'une analyse de sensibilité, a minima qualitative, permettant d'évaluer l'influence des incertitudes sur les rendements radiolytiques, devrait être présentée.

II.3.3.2.2 Calcul électrochimique

Le calcul des potentiels électrochimiques du couple $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2$ et de la solution d'eau porale est nécessaire en vue de déterminer la surtension applicable pour le calcul de la vitesse de dissolution de la matrice d' UO_2 .

Détermination des constantes électrochimiques du couple $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2$

Les constantes électrochimiques du couple $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2$ sont déterminées sur la base d'études expérimentales en milieu acide complexant dans un premier temps, puis dans une eau représentative des conditions environnementales du site de stockage souterrain dans un second temps. Pour rappel, l'oxydation de la matrice UO_2 est, d'un point de vue électrochimique, assimilable à une réaction anodique. L'Andra mesure le courant à l'anode afin de déterminer le potentiel d'équilibre entre l' UO_2 et la solution d'équilibre, en reliant le courant et le potentiel selon la relation :

$$j = j^* \exp(\alpha^* E)$$

où j^* et α^* sont respectivement les constantes de vitesse conditionnelle et le coefficient d'échange de charge conditionnel déterminés expérimentalement. Les paramètres électrochimiques pour le couple $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2$ ont été déterminés expérimentalement dans différents milieux (acide complexant, non complexant, carbonaté, chloré et sulfaté). Leur traitement statistique permet pour chacun des paramètres électrochimiques de définir une valeur

d'incertitude, de l'ordre de 10% en milieu non complexant ou carbonaté, et de l'ordre de 15 % en milieu chloré ou sulfaté.

Ces éléments n'appellent pas de remarque de la part de l'IRSN.

Détermination du potentiel électrochimique de la solution après irradiation

Les calculs préliminaires d'équilibres acido-basiques permettent à l'Andra de conclure que la solution contient, après radiolyse α , majoritairement les espèces OH^- , H^+ et H_2O_2 . Les calculs électrochimiques sont menés avec le code « Phreeqc », en considérant que la solution est en permanence à l'équilibre thermodynamique. Plusieurs cas ont été traités par l'Andra :

- dans le cas de l'eau pure, l' OH^- est le principal oxydant,
- dans le cas d'une eau carbonatée, puis d'une eau représentative du Callovo-Oxfordien, la production en OH^- étant plus faible que dans l'eau pure, l' O_2 recombinaison est considéré comme le principal oxydant.

L'Andra a réalisé une analyse de sensibilité à la composition chimique de l'eau du Callovo-Oxfordien en tenant compte:

- d'une variation de la teneur en carbonates (multipliée ou divisée par 2 par rapport à la valeur de référence considérée),
- d'un effet du fer (diminution du potentiel lorsque la teneur en fer augmente), ainsi que du calcium et du magnésium, qui jouent également sur le potentiel en raison de leur impact sur la teneur des carbonates en solution,

Par ailleurs, l'Andra présente également une étude de sensibilité aux longueurs de diffusion des différentes espèces.

L'ensemble des études menées conduisent l'Andra à proposer, pour une composition d'eau représentative du Callovo-Oxfordien et pour des concentrations d'espèces radiolytiques supposées varier uniformément dans une plage de 15%, une valeur de plus forte probabilité du potentiel électrochimique de la solution égale à $36,4 \pm 10$ mV/ESH, 100 ans après la rupture du conteneur.

L'IRSN considère que le modèle électrochimique développé par l'Andra répond favorablement aux remarques émises par l'IRSN lors de l'analyse du Dossier 2005, pour ce qui concerne l'acquisition de connaissances sur l'influence des conditions d'environnement sur la dissolution des combustibles usés. L'IRSN considère que le modèle de dissolution présenté par l'Andra permet de mieux rendre compte des équilibres chimiques en jeu à l'interface entre l'eau porale et la matrice UO_2

Estimation de la vitesse de dissolution

Au moyen du modèle électrochimique présenté ci-dessus, l'Andra estime la vitesse de dissolution moyenne d'un combustible usé de type MOX G1, considéré comme référence, à $2,4 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{j}^{-1}$, très proche de la valeur obtenue pour le même type de combustible avec le modèle présenté par l'Andra au stade du Dossier 2005.

L'IRSN souligne qu'un certain nombre d'incertitudes sur les modèles de dissolution des matrices de combustibles relevées dans le cadre du projet MICADO n'ont pas fait l'objet des études présentées par l'Andra, en particulier l'hétérogénéité du taux de combustion à l'échelle de la pastille et du colis de combustibles usés qui pourrait influencer la vitesse de dissolution retenue.

Pour ce qui concerne les hétérogénéités du taux de combustion à l'échelle de la pastille et du colis de combustibles usés, l'Andra indique que celles-ci ne sont pas prises en compte dans le modèle qui suppose une activité homogène. L'Andra précise toutefois que ce point sera traité de façon spécifique dans les calculs de performances qui seront menés, soit par la sélection d'un combustible dont les caractéristiques seront majorantes, soit par un calcul de sensibilité permettant de couvrir cette incertitude. De façon globale, l'Andra indique mener, à chaque évolution du modèle, une étude de sensibilité portant sur les données d'entrée dont le niveau de connaissances est jugé insuffisant. Cette démarche est satisfaisante.

II.3.3.3 CONCLUSION SUR LE MODELE DE DISSOLUTION

L'IRSN estime que les études présentées par l'Andra ont permis d'acquérir une quantité significative de connaissances. En particulier, l'IRSN considère que le modèle électrochimique développé par l'Andra répond favorablement aux remarques émises par l'IRSN lors de l'analyse du Dossier 2005, notamment pour ce qui concerne l'influence des conditions d'environnement physico-chimiques sur la dissolution des combustibles usés. L'IRSN note que ce modèle sera de plus complété et confronté à des données expérimentales relatives à l'altération de la matrice UO₂ dans différents milieux.

En tout état de cause, et en l'état actuel des connaissances, les éléments présentés par l'Andra concernant le relâchement des combustibles usés ne sont pas de nature à remettre en cause la faisabilité d'un stockage de combustibles usés telle qu'évaluée lors de l'examen du Dossier 2005, dès lors qu'un tel stockage viendrait à être décidé.

III CONCLUSION

S'agissant du modèle de relâchement des combustibles usés, l'examen de l'IRSN a porté sur le modèle de relâchement instantané de radionucléides (IRF) et sur le modèle de dissolution de la matrice UO₂. L'IRSN considère que le modèle présenté par l'Andra constitue un progrès et qu'il est en adéquation avec l'état des connaissances actuel. Les valeurs de relâchement obtenues au moyen de ce nouveau modèle sont globalement similaires à celles qui avaient été retenues dans le Dossier 2005. Les principales différences identifiées concernent les valeurs de relâchement instantané du ³⁶Cl, réestimées à la hausse, et l'absence de relâchement instantané des actinides contenus dans les grains des amas de plutonium des combustibles MOX. L'IRSN considère que ces différences n'ont qu'un impact très faible sur l'impact radiologique du stockage tel qu'estimé dans le Dossier 2005. En conséquence, les conclusions de l'IRSN, à l'issue de l'examen de ce même Dossier, sur la faisabilité d'un stockage de combustibles usés dans la formation du Callovo-Oxfordien ne sont pas modifiées.

REFERENCES

- [1] Rapport IRSN/DSU n° 106
- [2] Bilan sur le développement d'un modèle opérationnel de relâchement des radionucléides par les combustibles usés des réacteurs d'EDF en conditions de stockage. Andra/DG/DIR/11-0345
- [3] Etat d'avancement du MOP Altération des CU en conditions de Stockage. Jean Radwan - janvier 2011. Note CEA DPC / SECR 11-01 indice A
- [4] MOP Altération des CU en conditions de Stockage. Jean Radwan - décembre 2011. NT DPC/SECR 11-043 indice A
- [5] Etat d'avancement du Modèle Opérationnel d'Altération des CU en conditions de stockage. Jean Radwan - décembre 2009. Note CEA DPC/SECR/09-055 Indice A
- [6] Modèle d'évolution opérationnel des combustibles usés en système fermé. Conséquences sur le relâchement instantané des radionucléides (IRF). Cécile Ferry - Octobre 2009. Note DPC / SECR 09-032 indice A
- [7] Tome Architecture et gestion du stockage géologique. Andra C.RP.ADS.04.0001
- [8] Référentiel de comportement des colis de déchets à haute activité et à vie longue. Andra C.RP.ASCM.04.0017.A

Références bibliographiques

- Ferry C., Poinssot C., Cappelaere C., Desgranges L., Jégou C., Miserque F., Piron J.P., Roudil D., Gras J.M., 2006. Specific outcomes of the research on the spent fuel long-term evolution in interim dry storage and deep geological disposal. J. Nucl. Mat. 352, 246-253.
- Johnson L.H., Ferry C., Poinssot C., Lovera, P., 2005. Spent fuel radionuclide source-term model for assessing spent fuel performance in geological disposal. Part I: Assessment of the instant release fraction. J. Nucl. Mat. 346, 56-65.
- Micado, Final activity report. Project Micado. Model uncertainty for the mechanism of dissolution of spent fuel in nuclear waste repository. Mars 2010
- Pipon Y., 2006. Diffusion thermique et sous irradiation du chlore dans le dioxyde d'uranium. Thèse Université Claude Bernard-Lyon I.
- Pipon Y., Toulhoat N., Moncoffre N., 2007. Chlorine diffusion in uranium dioxide : Thermal effects versus radiation enhanced effects. Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.985, 77-82.
- Poinssot C., Ferry C., Lovera P., Jegou C., Gras JM., 2005. 2005. Spent fuel radionuclide source term model for assessing spent fuel performance in geological disposal. Part I1: Matrix alteration model and global performance. Journal of Nuclear Materials 346, 66-77

ANNEXES

ANNEXE A1 - LETTRE ASN CODEP-DRC-2012-045908 DU 29 AOUT 2012



**Direction des déchets,
des installations de recherche et du cycle**

REPUBLIQUE FRANCAISE

Paris, le 29 août 2012

N/Réf. : CODEP-DRC-2012-045908
Affaire suivie par : Marc OLIVIER/ Lydie EVRARD
Tél : 01 43 19 70 15 / 70.01
Fax : 01 43 19 71 66
Mél : marc.olivier@asn.fr / lydie.evrard@asn.fr

Le Directeur de l'Autorité de sûreté nucléaire
à
Monsieur le Président du Groupe Permanent
d'experts pour les déchets

Objet : Projet de stockage Cigéo – Examen des études remises depuis 2009

Réf. :

- 1/ Programme industriel de gestion des déchets (PIGD) et ses évolutions depuis le dossier 2009 ;
- 2/ L'étude remise par l'Andra dans le cadre du PNGMDR, relative aux études sur le comportement à long terme des combustibles usés en conditions de stockage.
- 3/ Résultats de la sismique 3D réalisée en 2010 et leur prise en compte dans le modèle conceptuel de site, dossier reçu en mars 2012 ;

La loi de programme du 28 juin 2006, codifiée dans le code de l'environnement et relative à la gestion durable des matières et des déchets radioactifs, prévoit la poursuite des études et recherches sur le stockage réversible en couche géologique profonde « de sorte que, au vu des résultats des études conduites, la demande de son autorisation prévue à l'article L. 542-10-1 du code de l'environnement puisse être instruite en 2015 »

Le même article L.542-10-1 du code de l'environnement prévoit que le dépôt de la demande d'autorisation de création du centre soit précédé d'un débat public sur la base d'un dossier réalisé par l'Andra.

www.asn.fr
6, place du Colonel Bourgoin • 75572 Paris cedex 12
Téléphone 01 40 19 86 00 • Fax 01 40 19 86 69

L'ASN souhaite prendre position, en préalable au début du débat public prévu par la loi, sur les sujets suivants :

- Le programme industriel de gestion des déchets (PIGD) et ses évolutions, document transmis par l'Andra en février 2012 ;
- Le rapport remis par l'Andra en décembre 2011, dans le cadre du plan national de gestion des déchets et matières radioactifs (PNGMDR), relatif aux études sur le comportement à long terme des combustibles usés en conditions de stockage ;
- Les résultats de la sismique 3D réalisée en 2010 et leur prise en compte dans le modèle conceptuel de site¹, dossier transmis par l'Andra en mars 2012.

J'ai l'honneur de demander l'avis du groupe permanent d'experts que vous présidez sur les dossiers précités en égard en particulier à

- L'examen de la pertinence des données de base (volume et typologie des colis, chroniques de stockage) retenues par l'Andra pour constituer l'inventaire des déchets fourni dans le dossier de PIGD en considérant également les réserves éventuellement retenues dans cet inventaire pour les déchets dont la filière définitive de stockage n'est pas encore arrêtée ;
- L'examen des résultats des études sur le comportement des combustibles en formation géologique profonde et leur incidence éventuelle sur la faisabilité de leur stockage au regard des options de conception présentées dans le « dossier 2005 argile », examiné par le groupe permanent lors des séances des 12 et 13 décembre 2005 ;
- Les résultats de sismique 3D au regard de la confirmation des caractéristiques favorables pour un stockage géologique de la zone reconnue, compte tenu des techniques employées, ainsi que leur prise en compte dans le modèle conceptuel de site.

Je vous prie de bien vouloir convier la division territoriale de Châlons-en-Champagne et la direction des déchets, des installations de recherche et du cycle aux travaux menés par le groupe permanent d'experts que vous présidez

Il serait souhaitable que le groupe permanent d'experts se réunisse au plus tard la première semaine de février 2013.

Le directeur général de l'ASN



Jean-Christophe NIEL

¹ Le modèle conceptuel du milieu géologique du site Meuse/Haute-Marne fournit une représentation des différents composants du milieu géologique, de leur organisation spatiale et de leurs propriétés.

ANNEXE A2 - LETTRE D'ENGAGEMENT ANDRA DC/DIR/13-0020 DU 22 JANVIER 2013



Châtigny-Malabry, le 22 JAN. 2013

Monsieur Pierre-Franck CHEVET
Président de l'Autorité de Sécurité Nucléaire
6, place du Colonel Bourgois
75572 PARIS CEDEX 12

La directrice générale

Tél. 01 46 11 80 00

Affaire suivie par : Sylvie VOINIS

V/Réf :

N/réf : DC/DIR/13-0020

Objet : Instruction des documents relatifs au PIGD, aux résultats des études sur le comportement des combustibles usés en formation géologique profonde ainsi qu'aux résultats de sismique 3D : Engagements de l'Andra.

Monsieur le président,

Dans le cadre de l'instruction des documents cités en objet, vous trouverez en annexe à la présente les engagements que l'Andra propose de prendre sur les trois thématiques suivantes : PIGD, comportement des combustibles usés en formation géologique profonde, sismique 3D. Ces engagements ont fait l'objet d'échanges avec l'IRSN.

Le CEA a confirmé auprès de l'Andra la mise en cohérence du PIGD avec sa stratégie de gestion des combustibles usés lors de la prochaine révision du PIGD. L'engagement E.1.3 traduit cette confirmation.

Vous en souhaitant bonne réception, je vous prie d'agréer, Monsieur le président, l'expression de mes salutations distinguées.

Marie-Claude DUPUIS

Annexe : Engagements de l'Andra.

www.andra.fr

AGENCE NATIONALE POUR LA GESTION DES DÉCHETS RADIOACTIFS
Siège social : 1-7, rue Jean-Henri Durrès, Châtigny-Malabry Cedex - RCS Nanterre 379 899 000

AUT H E N T I F I C A T I O N G R D
(4638886-02SC-4X2B-B514-6808C1E0A645)

ENGAGEMENTS ANDRA

1. Engagements relatifs au PIGD

Le PIGD constitue la donnée d'entrée pour les études de conception industrielle qui précise les déchets à prendre en charge dans Cigéo et leur chroniques de réception. Une première version du PIGD a été établie en collaboration avec les producteurs de déchets pour les études d'esquisse du projet Cigéo. Le PIGD sera mis à jour en 2013 en vue des études d'avant-projet industriel de Cigéo.

E.1.1 Cette nouvelle version justifiera les marges prises afin d'améliorer la lisibilité de l'inventaire du PIGD et de mieux apprécier leur conservatisme.

E.1.2 Cette nouvelle version précisera les hypothèses retenues pour l'évaluation des quantités de déchets graphites comptabilisées en réserve.

E.1.3. L'inventaire du PIGD sera mis en cohérence avec la stratégie de gestion des combustibles usés retenue par le CEA. Ainsi, les déchets ultimes HA et MAVL résultant du traitement/recyclage des combustibles usés du CEA Civil et de la propulsion navale seront intégrés dans l'inventaire avec les incertitudes associées.

Le projet Cigéo doit répondre à l'objectif fixé par la loi du 28 juin 2006 qui précise que "les déchets radioactifs ultimes ne pouvant pour des raisons de sûreté nucléaire ou de radioprotection être stockés en surface ou en faible profondeur font l'objet d'un stockage en couche géologique profonde". En conséquence :

E.1.4 La démonstration de sûreté du stockage présentée dans le dossier en support à la demande d'autorisation de création de Cigéo prendra en compte l'ensemble des déchets du PIGD y compris les réserves.

E.1.5 L'Andra poursuivra, conformément aux orientations définies par le PNGMDR, les études sur un scénario de stockage des combustibles usés, afin de vérifier que les concepts de stockage retenus pour Cigéo restent compatibles avec l'hypothèse du stockage direct de combustibles usés si ceux-ci étaient un jour considérés comme des déchets.

2. Engagement relatif au comportement des combustibles usés

E.2.1 L'Andra présentera, dans l'étude faisant l'objet de l'engagement E1.5, une évaluation d'impact du stockage prenant en compte la modification de la valeur d'IRF du ¹³⁷Cs.

3. Engagements relatifs à la sismique 3D

E.3.1 L'Andra remettra avant la fin du premier semestre 2013 un rapport présentant et justifiant la méthode retenue pour la conversion des données sismiques « temps double » en profondeur, ainsi que l'ensemble des cartes en isohypses des interfaces lithologiques interprétées qui en découlent.

E.3.2 Dans le dossier accompagnant la DAC, l'Andra vérifiera le caractère enveloppe du spectre sismique retenu pour la phase après-fermeture vis-à-vis de séismes physiquement plausibles à l'aplomb de la ZIRA dont le foyer se situerait à moins de 10 km de profondeur.

E.3.3 L'Andra présentera, dans le dossier accompagnant la DAC, un modèle conceptuel du milieu géologique du site de Meuse/Haute-Marne, prenant en compte les résultats de traitement et d'analyse de l'acquisition sismique 3D en 2010 sur la ZIRA obtenus entre mars 2012 et la constitution du dossier de la DAC, notamment sur les points suivants :

- analyse des propriétés globales de transport des corps récifaux du Bajocien et rôle dans le modèle hydrogéologique,
- interprétation des anomalies sismiques identifiées :
 - + dans l'Oxfordien calcaire à l'aplomb du cours de l'Orge,
 - + sous les corps récifaux du Bajocien inférieur,
 - + dans le Trias au Nord de la ZIRA,
- identification et quantification des incertitudes résiduelles (existence éventuelle de failles mineures, potentialités de propagation vers le Callovo-Oxfordien).

L'Andra tiendra compte de ces incertitudes pour définir les reconnaissances qui seront réalisées lors du creusement, et pour la stratégie d'implantation de l'installation souterraine de Cigéo. Conformément à sa démarche générale de sûreté, la démonstration de sûreté présentée par l'Andra en appui à la demande d'autorisation de création prendra en compte les incertitudes résiduelles identifiées.

ANNEXE T1 - GESTIONS DU COMBUSTIBLE

La notion de « gestion du combustible » renvoie à la manière d'utiliser le combustible le plus économiquement possible, tout en respectant les impératifs liés à la sûreté d'exploitation. Une gestion de combustible se caractérise notamment par les deux paramètres suivants :

- le taux d'enrichissement en ^{235}U pour le combustible UO_2 et/ou la teneur maximale moyenne en Pu total pour le combustible MOX,
- la fraction du cœur à renouveler à chaque rechargement.

Ces paramètres permettent ensuite de définir la longueur de cycle d'irradiation et le taux de combustion (ou de décharge) atteint par les assemblages après leur séjour en réacteur, exprimé en MWj/t. Ce dernier paramètre constitue une des données d'entrée importante des études relatives aux modèles de relâchement des combustibles usés.

En préalable à une présentation synthétique des gestions mises en œuvre sur les trois paliers du parc nucléaire français, il est important de rappeler la stratégie actuelle d'EDF concernant ces gestions. Cette stratégie, qui a beaucoup évolué ces dix dernières années, répond aux principaux objectifs suivants :

- l'accroissement de la production nucléaire avec la mise en œuvre, entre 2003 et 2009, des nouvelles gestions Parité MOX (palier 900 MWe), ALCADÉ (palier N4) et GALICE (un seul réacteur du palier 1300 MWe). Pour ce faire, EDF a dû qualifier des assemblages combustibles plus performants (irradiation maximale et temps de séjour augmentés). Il est important de noter que si l'objectif majeur de la gestion GALICE était d'augmenter le taux de combustion moyen de décharge, l'orientation stratégique d'EDF n'est plus, aujourd'hui, l'accroissement des taux de combustion. La nouvelle stratégie d'EDF pour la gestion du combustible en cœur privilégie l'ajustement réactif des longueurs des campagnes (ex : souplesse dans l'exploitation au-delà de 2015) et l'accroissement du productible (ex : projet Augmentation de Puissance 1300 au-delà de 2017) ;
- la sécurité des approvisionnements du combustible, en diversifiant les fournisseurs. Des assemblages combustibles de conception Westinghouse sont introduits de manière générique dans certains réacteurs des paliers 900 MWe et 1300 MWe ;
- la cohérence du cycle du combustible, en maîtrisant la boucle de recyclage et la cohérence du cycle du combustible en adaptant le flux MOX et URE aux besoins (volumes annuels de combustible traité de Plutonium, d'URT, de MOX et d'URE pouvant être chargés en réacteurs ...). En particulier, l'augmentation de l'irradiation moyenne des combustibles traités à La Hague conduit à dégrader la qualité isotopique du Pu et de l'URT obtenus à l'issue du retraitement. Ainsi, il sera nécessaire de compenser cette dégradation par une augmentation de la teneur en U^{235} des assemblages URE en gestion GARANCE URE, afin de maintenir leur équivalence énergétique avec de l'UNE 3,7% ainsi que par une augmentation de la teneur moyenne en Pu des assemblages MOX en gestion Parité MOX en ciblant là aussi l'équivalence énergétique avec de l'UNE 3,7%. A noter que ces évolutions ont fait l'objet d'une information à l'ASN dès 2009 mais que leur mise en œuvre n'interviendra pas avant 2015.

Il s'agit maintenant de présenter les gestions mises en œuvre sur les différents paliers. Il sera précisé, le cas échéant, les évolutions d'ores et déjà programmées par EDF. Cette synthèse donne une image de l'exploitation actuelle des cœurs, tout en sachant que peu d'évolutions sont prévues à court et moyen terme.

Pour chaque gestion, à l'exception des gestions récentes ALCADÉ et GALICE, les taux de combustion moyen et maximal au déchargement qui figurent dans les tableaux sont issus du retour d'expérience et correspondent à la valeur maximale sur la période 2003-2009 (cf. tableaux en annexe). Pour mémoire, le taux de combustion maximal autorisé (en valeur moyenne assemblage) est de 52 GWj/t quelle que soit la gestion considérée, sauf en gestion GALICE pour laquelle ce taux de combustion s'élève à 62 GWj/tU.

I. Palier 900 Mwe

1. Palier 900 CP0 - Gestion CYCLADES

La gestion CYCLADES UNE 4,2 %, généralisée depuis 2000, est mise en œuvre sur les 6 réacteurs du palier CP0 (centrales de BUGEY et FESSENHEIM).

Gestion	CYCLADES	
Type de combustible	UNE	
Teneur en ²³⁵ U	4,2 %	
Nombre d'assemblages par recharge	52 dont 28 avec 12 crayons gadoliniés (8 % de gadolinium) à support U enrichi à 2,5 %	
Taux de combustion de décharge (GWj/t)	<i>Irradiation moyenne</i>	<i>Irradiation maximale</i>
	47,2	51,7

2. Palier 900 CPY - Gestions GARANCE

Les deux gestions suivantes sont encore en vigueur en 2012 :

la gestion UNE 3,7 %, généralisée à partir de 1994 et qui ne concerne actuellement plus que les réacteurs 3 et 4 de la centrale du BLAYAIS,

la gestion URE équivalent à UNE 3,7 % qui concerne les 4 réacteurs de la centrale de CRUAS. Une évolution est à prévoir à l'horizon 2017 avec une gestion dite « URE NT » (augmentation de la teneur en U5 de 4,10 % à 4,25 % maximum pour compenser la dégradation du vecteur isotopique).

Gestion	GARANCE UNE ou URE	
Type de combustible	UNE	URE
Teneur en ²³⁵ U	3,7 %	4,1 %
Taux de combustion de décharge (GWj/t)	<i>Irradiation moyenne</i>	<i>Irradiation maximale</i>
	45,7	51,7

3. Palier 900 CPY - Gestion Parité MOX

A ce jour, 22 réacteurs sur les 28 du palier CPY ont intégré la gestion Parité MOX. EDF envisage à court terme la poursuite de ce déploiement sur les réacteurs 3 et 4 de la centrale du BLAYAIS, ce qui permet, selon EDF, d'assurer de façon robuste l'équilibre des flux de plutonium entre le traitement du combustible usé et le chargement de combustible MOX. A terme, seuls les 4 réacteurs de CRUAS devraient rester en gestion GARANCE URE, les 24 autres réacteurs étant exploités en gestion Parité MOX. Les principales caractéristiques de la gestion Parité MOX sont les suivantes :

Gestion	Parité MOX			
Type de combustible	UNE		MOX	
Teneurs en ²³⁵ U / Pu	3,7 %		8,65 % Pu sur ²³⁵ U à 0,25 %	
Nombre d'assemblages par recharge	28		12	
Type de gestion	24 assemblages 4 cycles 4 assemblages 3 cycles		Quart	
Taux de combustion de décharge (GWj/t)	<i>Irradiation moyenne</i>	<i>Irradiation maximale</i>	<i>Irradiation moyenne*</i>	<i>Irradiation maximale*</i>
	45,6	51,7	45,4	47,9

* : Valeurs issues du retour d'expérience des années 2011 et 2012 en raison de la mise en œuvre récente de cette gestion

Afin de maintenir l'équivalence énergétique avec le combustible UO₂ 3,7 % de la gestion Parité MOX, il est prévu, au plus tôt à partir de 2015, une évolution progressive de la teneur moyenne en Pu du combustible MOX. Ce nouveau produit, appelé MOX NT 2012, sera caractérisé à terme par une teneur moyenne maximale de 9,54 %.

II. Palier 1300 MWe

1. Gestion GEMMES

La gestion GEMMES UNE 4 % est généralisée depuis 1996 sur le palier 1300 MWe. Elle est déployée sur tous les réacteurs de ce palier à l'exception du réacteur 2 de la centrale de Nogent, soit au total sur 19 réacteurs.

Gestion	GEMMES	
Type de combustible	UNE	
Teneur en ²³⁵ U	4,0 %	
Nombre d'assemblages par recharge	64 dont 36 avec 12 crayons gadoliniés (8 % de gadolinium) à support U à 0,715 %	
Taux de combustion de décharge (GWj/t)	<i>Irradiation moyenne</i> 47,1	<i>Irradiation maximale</i> 51,8

2. Gestion GALICE

Cette gestion autorise un taux d'épuisement maximal du combustible de 62 GWj/t, soit une augmentation d'environ 10 GWj/t par rapport à la gestion GEMMES. Le déploiement de la gestion GALICE, qui date de 2010, est et restera limité à un seul réacteur, le réacteur 2 de NOGENT. Les principales caractéristiques de cette gestion sont les suivantes :

Gestion	GALICE	
Type de combustible	UNE	
Teneur en ²³⁵ U	4,5 %	
Nombre d'assemblages par recharge	56 dont 36 avec 12 crayons gadoliniés (8 % de gadolinium) à support U enrichi à 2,5 %	
Taux de combustion de décharge ** (GWj/t)	<i>Irradiation moyenne</i> 55	<i>Irradiation maximale</i> <62

** : Valeurs

prévisionnelles car la gestion GALICE n'a pas encore atteint l'équilibre en raison de sa mise en œuvre récente (à partir de 2008)

III. Palier N4

La gestion ALCADÉ a pour objectif l'amélioration de la disponibilité des tranches N4 en allongeant les campagnes combustibles à 17 mois par rapport à la première gestion mise en place au démarrage et la réduction des flux annuels de combustible à retraiter. Cette gestion est déployée sur les 4 réacteurs du palier N4. Ses principales caractéristiques sont données dans le tableau ci-dessous.

Gestion	ALCADE	
Type de combustible	UNE	
Teneur en ²³⁵ U	4,0 %	
Nombre d'assemblages par recharge	68 dont 36 avec 12 crayons gadoliniés (8 % de gadolinium) à support U enrichi à 2,5 %	
Taux de combustion de décharge *** (GWj/t)	<i>Irradiation moyenne</i>	<i>Irradiation maximale</i>
	46	<52

*** : Valeurs prévisionnelles car la gestion ALCADÉ n'a pas encore atteint l'équilibre en raison de sa mise en œuvre récente (à partir de 2008)

