

Fontenay-aux-Roses, le 24 juillet 2018

Monsieur le Président de l'Autorité de sûreté nucléaire

**Avis/IRSN N°** 2018-00207

**Objet :** Comportement physico-chimique des fûts d'enrobé bitumineux.

**Réf.** Saisine ASN CODEP-DRC-2018-04606 du 29 janvier 2018

Par lettre citée en référence, vous sollicitez l'avis de l'IRSN sur les notes relatives au comportement physico-chimique des fûts d'enrobé bitumineux transmises par le CEA en juin 2016 ainsi qu'en juin et décembre 2017 et en particulier sur la capacité du programme d'études mis en œuvre par le CEA à rendre compte des phénomènes en jeu à l'échelle réelle en situation d'incendie. A ce titre, vous demandez d'examiner notamment la pertinence des plans d'expériences, la qualité des résultats expérimentaux obtenus et la justesse des phénomènes physiques considérés et des modélisations analytiques et numériques retenues. Vous demandez en outre que soit évalué l'apport de ces résultats eu égard aux éléments nécessaires pour la démonstration de la sûreté du stockage des fûts d'enrobés bitumineux.

## I. Contexte et enjeux

Les fûts d'enrobé bitumineux (FEB) sont issus du traitement, dans les installations du CEA/Marcoule depuis 1966 et d'ORANO/La Hague depuis 1989, de déchets liquides radioactifs par ajouts de sels de coprécipitation puis bitumage des boues obtenues. Outre ces boues de coprécipitation, des déchets liquides organiques issus des usines de La Hague ont également été bitumés à Marcoule entre 1976 et 1987 (plus de 5 000 FEB). A ce jour, un peu plus de 60 000 FEB sont entreposés dans l'INBS du CEA/Marcoule, soit dans les casemates de la station de traitement des effluents liquides (STEL) en phase de reprise<sup>1</sup>, soit dans l'entreposage intermédiaire polyvalent (EIP) après mise en surfût. 45 % d'entre eux relèvent de la catégorie de déchets dite de moyenne activité à vie longue (MA-VL)<sup>2</sup>. ORANO entrepose également près de 10 000 FEB de catégorie MA-VL sur le site de La Hague. L'ensemble de ces FEB de catégorie MA-VL sont compris dans l'inventaire de référence des déchets destinés à être stockés en formation géologique profonde dans l'installation actuellement étudiée par l'Andra (projet Cigéo).

**Adresse courrier**  
BP 17  
92262 Fontenay-aux-Roses  
Cedex France

**Siège social**  
31, av. de la Division Leclerc  
92260 Fontenay-aux-Roses  
Standard +33 (0)1 58 35 88 88  
RCS Nanterre B 440 546 018

---

<sup>1</sup> Les casemates constituent l'entreposage d'origine des FEB. Les FEB qui y sont entreposés sont en cours de reprise, de reconditionnement (mise unitaire en surfût) et de transfert vers l'EIP. Ces opérations ont commencé en 2000 et devraient durer jusqu'en 2048.

<sup>2</sup> Les autres FEB (55%) relèvent de la catégorie dite de faible activité à vie longue (FA-VL).

Différentes périodes successives de production se distinguent pour les FEB entreposés dans l'INBS du CEA/Marcoule, suivant le traitement chimique des déchets liquides par coprécipitation mis en œuvre et le procédé d'enrobage employé (variabilité de la teneur et de la composition en sels notamment). Le niveau de connaissance des conditions industrielles de production des FEB varie selon ces périodes, les FEB n'étant produits suivant un plan d'assurance de la qualité que depuis 1995.

Les FEB présentent un potentiel de réactions chimiques exothermiques, par réactions d'oxydo-réduction entre sels ou par réactions sel/bitume, qui peuvent être déclenchées suite à un apport d'énergie thermique externe lié par exemple à une situation d'incendie. Ce potentiel pourrait conduire par emballement de ces réactions<sup>3</sup> à une pyrolyse (au-delà de 200°C), voire à une inflammation (au-delà de 300°C) de l'enrobé bitumineux. Ce phénomène, s'il n'est pas maîtrisé, est susceptible d'induire une dissémination importante des radionucléides contenus dans le FEB. La connaissance de la réactivité des FEB à la suite d'un apport d'énergie thermique externe constitue donc un élément essentiel à prendre en compte dans la démonstration de sûreté des différentes étapes de gestion de ces colis.

Ce sujet a fait l'objet d'un programme d'études quadripartite entre l'Andra, ORANO, le CEA et EDF, dont les résultats ont notamment été examinés en 2016 dans le cadre de l'instruction de la stratégie de gestion des déchets radioactifs anciens et de démantèlement de l'INBS du CEA/Marcoule, puis en 2017, dans le cadre de l'instruction du dossier d'options de sûreté (DOS) de Cigéo. Ce programme visait à compléter les connaissances sur le comportement des enrobés bitumineux lors d'une élévation de température au moyen d'une démarche « multi-échelle », qui comprenait notamment des essais dits à petite échelle (échantillons d'environ 500 mg) et à moyenne échelle (échantillons d'environ 2 kg) sur des enrobés bitumineux de synthèse.

Les essais à petite échelle avaient pour objectif d'évaluer la réactivité chimique des FEB selon leur composition pour chacune de leur période de production. A cette fin, le CEA a :

- défini les domaines de variabilité des compositions des FEB ;
- construit des plans d'expériences afin d'établir les données d'entrée (composition des échantillons à synthétiser à partir de la connaissance des compositions des FEB) et de sortie nécessaires à l'interprétation des essais ;
- synthétisé des mélanges de sels correspondant aux compositions à étudier (sans radionucléides), fabriqué par extrusion des enrobés bitumineux de ces mélanges (enrobés de synthèse) et prélevé des échantillons de 500 mg (plus d'une centaine) ;
- analysé la réactivité chimique de ces échantillons par microcalorimétrie.

Ensuite, afin de caractériser la réactivité des enrobés en fonction des valeurs de paramètres d'intérêt obtenues par l'interprétation des thermogrammes issus des essais de microcalorimétrie, comme les températures de début de réactions exothermiques ainsi que la puissance et l'énergie dégagées par ces réactions, le CEA a établi des modèles correspondant à des lois de mélanges qui permettent d'évaluer ces paramètres en fonction d'une composition donnée.

L'étude à moyenne échelle visait à observer les réactions exothermiques activées par un échauffement externe et leur capacité à déclencher un emballement thermique, localisé ou

---

<sup>3</sup> C'est-à-dire dans le cas où des réactions déclenchées à une température donnée dégageraient suffisamment d'énergie pour augmenter la température et déclencher d'autres réactions énergétiques et ainsi de suite.

généralisé au sein de la matrice bitumineuse. Cette étude a consisté en la mise en œuvre et l'interprétation d'essais de montée en température, par paliers jusqu'à 300°C, d'échantillons cylindriques de matrices bitumineuses de 2 kg (8 échantillons de compositions moyennes de l'ensemble des FEB). Les résultats d'évolution locale de température ont permis de conduire une modélisation des transferts thermiques en prenant en compte les paramètres liés à l'exothermicité potentielle déterminés par les essais à petite échelle.

Lors des examens de 2016 et 2017, l'IRSN a estimé que la démarche d'acquisition des connaissances de la réactivité thermique des enrobés bitumineux, par une approche « multi-échelle », combinant des plans d'expériences et des modélisations, était pertinente. Toutefois, compte tenu de la grande variabilité des résultats observés dans le cadre des essais à petite échelle et des informations disponibles sur les résultats de ces essais, l'IRSN a considéré que les thermogrammes issus des essais de microcalorimétrie devaient être ré-analysés pour permettre de statuer sur la température critique au-delà de laquelle l'exothermicité des réactions est significative. Par ailleurs, l'IRSN a observé que les expériences avaient été réalisées sur des enrobés non vieillis par irradiation et que la modélisation qui en découlait ne considérait pas la microstructure d'un enrobé irradié, ce qui remettait en cause la représentativité et la modélisation de ces essais. En réponse, le CEA a transmis des compléments d'études en décembre 2016 et 2017 présentant respectivement les effets de l'auto-irradiation sur le comportement en situation d'incendie d'un enrobé bitumineux et une nouvelle interprétation des essais de microcalorimétrie à petite échelle afin d'identifier les redémarrages réels de réactions exothermiques. Par ailleurs, dans le cadre des actions menées au titre du plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs, le CEA a transmis en juin 2017 une note décrivant l'ensemble des résultats disponibles sur le comportement des FEB en vue de disposer des données nécessaires à l'évaluation de leur comportement physico-chimique et thermique pendant la phase réversible du stockage et au-delà.

Conformément à votre saisine citée en référence, ces éléments ainsi que les compléments apportés par le CEA au cours de l'instruction ont fait l'objet d'une évaluation par l'IRSN. De cette évaluation, l'IRSN retient les principaux points suivants.

## **II. Effet de l'auto-irradiation sur le comportement thermique des enrobés bitumineux**

Dès la phase d'entreposage, l'irradiation interne des FEB entraîne la production de dihydrogène de radiolyse menant à un gonflement de la matrice bitumineuse, phénomène observé sur des fûts produits avant 1995 à la STEL de Marcoule. Cette population de bulles de radiolyse peut avoir une incidence sur la conduction de la chaleur dans les FEB. En outre, l'irradiation induit, par réticulation des chaînes carbonées notamment, un durcissement de la matrice bitumineuse se traduisant en particulier par une hausse de sa viscosité, décalant vers les hautes températures ses points de changement d'état (transition vitreuse, liquéfaction, mise en place d'un régime de transfert de chaleur convectif). Les effets de l'irradiation interne sur le comportement en situation d'incendie des FEB doivent donc être évalués, du fait de leur influence potentielle sur les mécanismes de transfert de chaleur en leur sein.

### Production de gaz de radiolyse

La production d'hydrogène par radiolyse est évaluée par le CEA en fonction des spectres radiologiques des familles<sup>4</sup> de FEB considérées et des rendements radiolytiques estimés des espèces radiolysables présentes. A l'issue de ces calculs, le CEA retient que le terme source maximal en hydrogène est de 10 L/an/colis. L'IRSN relève que les hypothèses prises pour ces calculs considèrent des spectres radiologiques pénalisants, ce qui est satisfaisant pour une évaluation conservatrice de la production d'hydrogène de radiolyse. Lors de l'instruction, le CEA a complété ses études en tenant compte de l'hydrogène produit par radiolyse de l'eau résiduelle demeurant dans les enrobés bitumineux à l'issue de leur production et de l'eau reprise<sup>5</sup> lors des différentes phases de gestion des FEB (entreposage et phase d'exploitation du stockage). Le CEA conclut que ces études ne modifient pas sensiblement les débits d'hydrogène de radiolyse déjà évalués, ce qui n'appelle pas de remarque de la part de l'IRSN. **S'agissant des résultats issus de ces calculs, l'IRSN retient en particulier que le débit maximal annuel d'hydrogène estimé par FEB permet de respecter le critère d'acceptation des colis primaires dans Cigéo défini à ce jour par l'Andra (10 NL/an/colis primaire)<sup>6</sup>.**

### Evolution de la viscosité liée à l'irradiation interne

L'étude transmise par le CEA en décembre 2016 vise notamment à établir une loi de rhéo-vieillessement, à savoir une évaluation de l'évolution de la viscosité de l'enrobé bitumineux liée à son auto-irradiation. Le CEA a dans un premier temps procédé à l'évaluation de la dose totale intégrée reçue par FEB pour plusieurs familles représentatives de la production totale de FEB sur une durée séculaire. Dans un second temps, le CEA a soumis un échantillon d'enrobé de synthèse à une irradiation externe correspondant à un débit de dose de 100 Gy/h pour reproduire l'irradiation sur un temps plus court afin de mesurer l'augmentation de la viscosité de l'enrobé liée à la dose intégrée. Les résultats présentés par le CEA montrent une augmentation de la viscosité de 20 MPa.s à 60 MPa.s consécutive à une augmentation de la dose totale intégrée de 0 à 1 MGy.

L'IRSN observe que la loi de rhéo-vieillessement a été établie jusqu'à une dose totale intégrée maximale de 1 MGy, ce qui ne correspond pas à une durée séculaire pour une partie des FEB. En effet, cette dose totale intégrée ne permet pas de couvrir les FEB produits à partir de 1995 (jusqu'à 3,4 MGy sur une durée séculaire), au nombre de 4 000 environ. Outre un inventaire non couvert exhaustivement, l'IRSN considère que l'évaluation des caractéristiques physicochimiques des FEB devrait être réalisée pour une dose totale intégrée représentative des durées d'intérêt pour la gestion des FEB incluant la phase d'exploitation du stockage. A cet égard, le CEA a évalué au cours de l'instruction la dose totale intégrée sur une période de l'ordre de 200 ans, correspondant au délai attendu entre la production la plus ancienne de FEB et la fin de la phase d'exploitation prévue à ce stade du projet Cigéo. De cette évaluation, l'IRSN retient que la loi de rhéo-vieillessement établie jusqu'à une dose totale intégrée de 1 MGy apparaît adaptée aux FEB les plus anciens considérés dans

---

<sup>4</sup> Afin de couvrir la variabilité radiologique des domaines de composition industriels produits à la STEL de Marcoule, différents spectres radiologiques  $\alpha$  et  $\beta$  ont été retenus pour le calcul du terme source d'hydrogène de radiolyse, suivant une catégorisation en trois familles (définies selon la date de production, respectivement comprises entre 1979 et 1986, 1987 et 1994 et à partir de 1995 correspondant à la fabrication selon un suivi « qualité produit »).

<sup>5</sup> Le phénomène de reprise par les FEB de l'humidité ambiante est lié au caractère hygroscopique des sels conditionnés, et se traduit par la formation d'une couche d'eau en surface de la matrice bitumineuse, avec une diffusion osmotique de cette eau au sein de la matrice.

<sup>6</sup> NL = Normo litre : volume occupé par un gaz dans des conditions normales de température et de pression.

l'étude. En revanche, l'IRSN relève que, pour les FEB produits à partir de 1995, la dose intégrée maximale à retenir pour une durée de 200 ans est de 4,5 MGy et que pour cette dose, la viscosité serait, selon la loi de rhéo-vieillessement établie, de 14 100 MPa.s. Or, comme précisé par le CEA, le retour d'expérience montre que cette valeur ne peut être atteinte compte tenu de la fracturation du bitume à une valeur plus faible. Selon les éléments transmis par le CEA, la loi de rhéo-vieillessement établie n'apparaît donc pas adaptée pour déterminer une valeur de viscosité à retenir pour un enrobé bitumineux produit à partir de 1995.

En conclusion, pour une période de 200 ans, l'IRSN considère que la loi de rhéo-vieillessement établie jusqu'à 1 MGy permet une estimation raisonnable de l'évolution de la viscosité de la majorité des FEB produits avant 1995. **En revanche, pour les autres FEB, l'IRSN estime que le CEA devra compléter son programme expérimental en vue d'acquérir des connaissances sur l'évolution microstructurale de ces mêmes enrobés bitumineux pour une dose totale intégrée représentative des durées d'intérêt pour la gestion des FEB (incluant la phase d'exploitation du stockage) et sur cette base, définir et justifier la valeur de viscosité à considérer le cas échéant dans le cadre des études de sûreté.** Ce point fait l'objet de la recommandation R1 en annexe au présent avis.

#### Influence de l'irradiation sur les mécanismes de transfert de chaleur au sein des FEB

Dans son étude transmise en décembre 2016, le CEA indique que la rétention des bulles de dihydrogène formées par radiolyse, de nature à modifier les échanges thermiques par conduction au sein de l'enrobé, dépend de la vitesse de migration des bulles, elle-même étroitement corrélée à la viscosité de cet enrobé.

Pour les besoins de ses études sur la migration des bulles de gaz de radiolyse, le CEA s'est donc intéressé à l'influence de la température sur la viscosité de l'enrobé en situation d'incendie. A cet égard, le CEA indique que, si la dose reçue par l'enrobé tend à augmenter sa viscosité, cette même viscosité diminue de façon beaucoup plus importante avec la température. De ses études, le CEA retient que les bulles de gaz de radiolyse s'échappent de l'enrobé bitumineux à partir de 80°C et, compte tenu de la chute de la viscosité avec la température, disparaissent entièrement à 110°C. Dans la mesure où le CEA estime que cette température est inférieure aux températures de déclenchement de réactions exothermiques (cf. paragraphe « Caractérisation de la réactivité des enrobés bitumineux par microcalorimétrie ») et aux températures de référence pour les changements de caractéristiques physiques de l'enrobé bitumineux, le CEA conclut au découplage entre la présence de bulles de radiolyse susceptible d'influer les mécanismes de transfert de chaleur dans l'enrobé bitumineux et les phénomènes de réactions exothermiques en situation d'incendie.

En complément, le CEA a évalué la diffusivité d'un enrobé bitumineux avec une teneur de 10 % de dihydrogène en volume à  $1,3 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  en utilisant l'équation de Maxwell qui permet de calculer un coefficient de diffusivité thermique en fonction de la proportion d'inclusions de fluide dans un solide, ici l'hydrogène gazeux dans un enrobé bitumineux. De cette évaluation, le CEA estime que la variation de la diffusivité induite par l'hydrogène de radiolyse est négligeable et conserve la valeur de  $1,2 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  qui a été déterminée sur la base des essais dits à moyenne échelle mettant en œuvre des enrobés bitumineux de synthèse non irradiés.

L'IRSN convient que l'élévation de la température est de nature à restaurer les propriétés initiales de conductivité thermique des FEB altérées par la présence de bulles de radiolyse. En revanche, l'IRSN

relève que les études portant sur la migration des bulles de gaz de radiolyse en fonction de la température ne prennent pas en compte une viscosité conservatrice correspondant à une auto-irradiation de 200 ans pour les FEB produits à partir de 1995. En conséquence, l'IRSN considère que l'argument selon lequel toutes les bulles de gaz de radiolyse disparaissent à 110°C n'est pas justifié pour cette famille de FEB.

Par ailleurs, l'évaluation de la variation de diffusivité en présence de 10 % d'hydrogène de radiolyse en volume obtenue via l'équation de Maxwell ne dispose pas, à la connaissance de l'IRSN, d'une validation expérimentale sur le système enrobé bitumineux/hydrogène. La teneur de 10 % apparaît de surcroît faible au regard de celles évaluées pour les calculs de gonflement présentés par ailleurs par le CEA (cf. paragraphe 'Gonflement des FEB sous irradiation').

Enfin, l'IRSN constate que les effets directs de l'irradiation interne sur certaines propriétés physiques des FEB gouvernant les mécanismes de transfert de chaleur en leur sein, telles que la densité, la capacité calorifique et la conductivité thermique, n'ont pas été évalués. Or, l'IRSN estime qu'il ne peut être exclu que le vieillissement sous irradiation des FEB conduise à l'atteinte d'états microstructuraux modifiant considérablement ces propriétés (fracturation notamment). **Ces propriétés physiques constituant des paramètres de premier ordre à prendre en compte dans le cadre des modélisations de propagation thermique interne des FEB en cas d'incendie, l'IRSN estime que le CEA devra évaluer leur évolution en fonction du vieillissement des enrobés bitumineux tenant compte de l'irradiation et, sur cette base, définir l'état microstructural enveloppe à considérer dans le cadre des études de sûreté relatives aux installations concernées. Dans cette optique, l'opportunité de prélever des échantillons sur fût réel pour consolider la connaissance de l'état microstructural des FEB après un vieillissement sous irradiation devra être examinée par le CEA. Ce point fait l'objet de la recommandation R2 en annexe au présent avis.**

### III. Réactivité thermique des enrobés bitumineux

Comme décrit précédemment, la réactivité thermique d'échantillons d'enrobés bitumineux de synthèse a été étudiée expérimentalement par microcalorimétrie afin de recueillir des paramètres nécessaires aux modélisations de transfert de chaleur au sein d'un enrobé bitumineux (températures de début de réactions exothermiques, puissances et énergies émises).

#### Représentativité des échantillons d'enrobés bitumineux de synthèse

Afin de réaliser des échantillons d'enrobés bitumineux de synthèse représentatifs, au sens de leur composition chimique, de l'ensemble des FEB entreposés sur les sites du CEA/Marcoule et de La Hague, le CEA a défini les domaines de variabilité des compositions des FEB par période de production selon deux approches :

- pour les premières périodes de production, une approche reposant sur les bilans de production des installations productrices de FEB, ainsi que sur les caractérisations réalisées dans le cadre des opérations de reprise et de reconditionnement des FEB entreposés dans les casemates 1 et 2 de la STEL ;
- pour les dernières périodes de production, une approche prenant en considération uniquement les bilans de production des installations productrices de FEB.

L'IRSN considère que la démarche de définition des domaines de variabilité de compositions des FEB permet dans le principe d'exploiter au mieux les connaissances disponibles et fournit en conséquence

un cadre utile pour apprécier la réactivité thermique des FEB et définir des paramètres à considérer dans les études de sûreté.

Néanmoins, l'IRSN estime que la méthode employée ne peut pas garantir que les domaines de compositions retenues soient représentatifs de la totalité de l'inventaire des FEB. Cette réserve est liée en premier lieu à la variabilité importante des caractéristiques des FEB en termes de composition et d'hétérogénéités dans les fûts liée à leur fabrication et/ou leur vieillissement (agrégation/sédimentation des sels) dont les informations disponibles ne permettent pas de rendre pleinement compte. En effet, l'IRSN rappelle qu'une proportion importante de ces FEB a été produite avant 1995 sans disposition d'assurance de la qualité, ce qui ne permet pas de disposer d'une information complète et fiable sur les conditions industrielles de leur production. En outre, s'agissant des caractérisations réalisées dans le cadre des opérations de reprise et de reconditionnement des FEB entreposés dans les casemates 1 et 2 de la STEL, l'IRSN relève, d'une part qu'elles n'ont pas été réalisées dans l'optique de caractériser leur réactivité chimique<sup>7</sup>, d'autre part qu'elles reposent sur des mesures réalisées sur un faible nombre de FEB, de l'ordre de 1 % de la population totale, et à partir d'une seule prise d'échantillon de 10 g par FEB. Sur ce dernier point, l'IRSN souligne qu'une prise d'échantillon limitée ne permet pas de rendre compte d'hétérogénéités des FEB susceptibles de modifier localement leur réactivité. En particulier, une surconcentration locale en sels dans l'enrobé bitumineux pourrait conduire à un dégagement d'énergie et de puissance supérieures à celles déterminées lors des essais par microcalorimétrie sur des échantillons d'enrobés de synthèse homogènes et prises en compte dans les modélisations réalisées par la suite (cf. paragraphe 'Modélisation des transferts thermiques').

**En tout état de cause, l'IRSN considère que l'accès à la connaissance détaillée de la composition chimique réelle des FEB et de leurs hétérogénéités est très complexe et comporte une part d'incertitude irréductible. Pour autant, une campagne de caractérisation sur des fûts réels, qui viserait à assurer avec un niveau de confiance accrue que les FEB sont compris dans les domaines de variabilité de composition retenues, peut constituer un élément important dans le cadre de la démonstration de sûreté de la gestion définitive des FEB. Ce point est repris dans la suite du présent avis.**

Enfin, l'IRSN rappelle que plus de 5 000 FEB issus du traitement de déchets liquides organiques ont été produits à la STEL de Marcoule, mais n'ont pas été considérés dans la démarche de définition des domaines de composition des FEB. Il conviendrait en conséquence de préciser leurs compositions et leur réactivité chimique en cas d'échauffement externe. Ce point fait l'objet de la recommandation R3 en annexe au présent avis.

#### Caractérisation de la réactivité des enrobés bitumineux par microcalorimétrie

Dans son étude de décembre 2017, le CEA présente une réinterprétation des thermogrammes précédemment acquis fondée sur l'identification des valeurs des paramètres supplémentaires suivants :

- la température en dessous de laquelle les réactions exothermiques sont considérées non significatives, à savoir celles pour lesquelles la puissance est inférieure à 0,5 mW/g. Cette

---

<sup>7</sup> Ces caractérisations ont pour objectifs initiaux d'améliorer les connaissances des radionucléides non mesurables et de constituer un spectre en toxiques chimiques et en espèces complexantes afin d'alimenter le référentiel de connaissance de l'Andra.

température, ci-après dite de « déclenchement de réactions exothermiques », est à distinguer de la température relevée dans les précédentes études qui correspondait à la détection des premières fluctuations de puissance sur le thermogramme ;

- la puissance et les énergies dégagées entre différents intervalles de température.

**L'IRSN considère que ces paramètres supplémentaires permettent effectivement d'évaluer la température de déclenchement des réactions exothermiques pour chaque essai et d'apprécier les niveaux d'énergie libérée sur différents intervalles de température.**

Des nouvelles interprétations présentées dans cette étude, l'IRSN relève que la température de déclenchement de réactions exothermiques se situe autour de 150°C pour la plupart des échantillons testés. Toutefois, pour certaines compositions chimiques du domaine exploré, des températures de déclenchement de réactions exothermiques proches ou inférieures à 100°C ont été relevées :

- une température de 88°C, confirmée par un essai de reproductibilité (91°C), pour une composition typique de FEB produits entre 1971 et 1978,
- une température de 104°C pour une composition typique de FEB produits entre 1978 et 1995.

En se fondant sur ces nouveaux résultats obtenus par la réinterprétation des thermogrammes, le CEA a développé des modèles correspondant à des lois de mélanges établies pour chacune des périodes de production des FEB afin d'évaluer les paramètres d'intérêts en fonction d'une composition donnée. Il apparaît que les résultats relatifs aux enrobés de synthèse de composition typique des FEB produits entre 1971 et 1978 ne permettent pas d'établir une loi de mélange valide compte tenu de leur dispersion. Les résultats simulant les FEB produits entre 1978 et 1995 permettent en revanche au CEA d'établir une telle loi de mélange. Cette loi de mélange fait apparaître une température minimale de 104°C pour le déclenchement de réactions exothermiques. S'agissant des paramètres énergétiques, les énergies et puissances maximales dégagées par les réactions exothermiques, telles que déduites des lois de mélange, sont respectivement de 91 J/g et de 4 mW/g sur la plage 50 - 200°C. Il est à noter que l'énergie maximale mesurée lors des plans d'expériences a été identifiée pour une température dépassant 150°C. **Ces résultats n'appellent pas de remarque de l'IRSN qui retient en particulier que la possibilité de déclencher des réactions exothermiques pouvant conduire à un emballement peut raisonnablement être considérée comme très faible en dessous d'une température de l'ordre de 100°C pour les compositions d'enrobé bitumineux prises en compte dans le cadre des plans d'expériences.**

Toutefois, afin de pouvoir valoriser cette température de déclenchement dans les études de sûreté, il conviendrait que le CEA évalue l'incertitude associée à sa détermination. A cet égard, le CEA a réalisé cinq essais de reproductibilité pour une composition donnée d'enrobé bitumineux, de la constitution de l'enrobé de synthèse à la caractérisation de sa réactivité par microcalorimétrie afin de quantifier l'incertitude liée à la mise en œuvre du dispositif expérimental. Le CEA estime ainsi l'incertitude globale obtenue sur l'énergie du pic de réaction à 20 % environ. **Bien que ces essais de reproductibilité permettent d'appréhender les niveaux d'incertitudes associées à la caractérisation de la réactivité thermique des enrobés bitumineux de synthèse, l'IRSN estime nécessaire que le CEA présente une méthodologie permettant d'évaluer les incertitudes associées à la mise en œuvre et à l'interprétation des plans d'expériences (préparation des échantillons, mesure par microcalorimétrie, traitement mathématique des thermogrammes et élaboration des**

lois de mélange) pour chacun des paramètres d'intérêt y compris la température de déclenchement. Ce point fait l'objet de la recommandation R4 en annexe au présent avis.

#### Modélisation des transferts thermiques

Les premières modélisations réalisées par le CEA mettent en œuvre des calculs de calibration sans prise en compte d'énergie d'origine chimique liée aux réactions exothermiques. Ces calculs ont été reproduits par l'IRSN afin d'apprécier la pertinence de la géométrie considérée et l'influence du paramètre de diffusivité thermique<sup>8</sup>. Des résultats de ces calculs, l'IRSN estime que la géométrie retenue pour la modélisation est adaptée aux besoins de l'étude. **S'agissant de la diffusivité, les résultats montrent une forte sensibilité de l'élévation de la température à ce paramètre, ce qui confirme la nécessité d'évaluer les propriétés physiques gouvernant les transferts de chaleur au sein de l'enrobé bitumineux en regard de ses évolutions microstructurales possibles pour un vieillissement incluant l'irradiation conformément à la recommandation R2 précitée.**

Dans un second temps, le CEA a réalisé des modélisations prenant en compte le déclenchement de réactions exothermiques entre 75°C et 175°C, avec des énergies dégagées comprises entre 45 J/g et 195 J/g et des puissances comprises entre 6 mW/g et 150 mW/g. Pour les différentes combinaisons de ces paramètres modélisées par le CEA, les résultats ne montrent pas d'excursion de température qui provoquerait l'inflammation de l'enrobé bitumineux (au-delà de 300°C). Par ailleurs, seule la configuration la plus pénalisante considérée par le CEA, à savoir une température minimale de déclenchement des réactions exothermiques de 100 °C associée à une énergie libérée de 195 J/g (supérieure d'un facteur 2 à celle déterminée par les plans d'expériences), conduisent à l'atteinte de la température de pyrolyse de l'enrobé (au-delà de 200°C). Le CEA conclut donc au maintien de la fonction de confinement des matières radioactives des enrobés bitumineux.

L'IRSN convient que les résultats de modélisation de la propagation de chaleur au sein de l'enrobé bitumineux, qui tiennent compte de valeurs majorées des paramètres d'intérêt déterminés par les essais, montrent l'existence de marges par rapport à la température de pyrolyse de l'enrobé. **Toutefois, compte-tenu des difficultés d'accéder à la connaissance de la composition réelle et de l'état microstructural des FEB ainsi qu'évoqué précédemment, il n'est pas possible de conclure que le conservatisme des hypothèses retenues dans ces calculs couvre l'ensemble des FEB.** Ce point est repris dans les conclusions du présent avis.

En outre, l'IRSN rappelle que la fonction de confinement dans un enrobé bitumineux se base sur le piégeage des radionucléides dans les sels de coprécipitation ; une réaction chimique de ces sels ou leur décomposition thermique peut entraîner une libération des radionucléides de l'enrobé bitumineux. A cet égard, le CEA a indiqué au cours de l'instruction que la température à ne pas dépasser pour garantir la fonction de confinement d'un FEB à l'issue de sa production est *a minima* celle du procédé de bitumage (160°C) dans la mesure où le retour d'expérience sur les opérations de bitumage montre que lors de sa fabrication, l'enrobé est confinant vis-à-vis des radionucléides qu'il contient, ce dont l'IRSN convient.

---

<sup>8</sup> La diffusivité est fonction de la densité, de la capacité calorifique et de la conductivité thermique du matériau.

#### IV. Phénomènes de gonflement des FEB

Outre l'analyse des éléments ayant trait à la réactivité thermique des FEB, vous demandiez, dans votre saisine citée en première référence, l'examen par l'IRSN des éléments transmis par le CEA sur le gonflement des FEB lié à leur irradiation interne, phénomène observé sur certains FEB en entreposage et les mécanismes de reprise en eau des FEB à long terme. De cette évaluation, l'IRSN retient les principaux points suivants.

##### Gonflement des FEB sous irradiation

Dans sa note de décembre 2016, le CEA calcule le gonflement des FEB en fonction de la production de gaz de radiolyse et de la loi de rhéo-vieillessement déterminée par le CEA (cf. *supra*). A l'issue de ces calculs, le CEA retient que le gonflement maximal de l'enrobé bitumineux est de 70%. L'évaluation de ce gonflement dépend de la loi de rhéo-vieillessement dont l'IRSN rappelle qu'elle n'est pas adaptée pour des doses totales intégrées supérieures à 1 MGy susceptibles d'être délivrées pour les périodes d'intérêt pour la gestion des FEB produits après 1995. Toutefois, l'IRSN convient que la production d'hydrogène de radiolyse intervient essentiellement dans les premières décennies de la production d'un FEB, période pour laquelle cette loi est adaptée. Par conséquent, les incertitudes liées à l'évolution microstructurale des FEB au-delà de 100 ans n'ont que peu d'incidence pour l'évaluation enveloppe du gonflement des FEB.

S'agissant des résultats issus de ces calculs, le CEA indique, suite à la réalisation de calculs préliminaires, que le taux de gonflement maximal de l'enrobé bitumineux évalué n'est pas de nature à remettre en cause la résistance mécanique des colis de stockage retenus à ce stade dans le cadre du projet Cigéo. **En tout état de cause, l'IRSN estime que l'absence d'impact d'un gonflement des FEB induit par radiolyse devra être confirmé dans le dossier de demande d'autorisation de création (DAC) de Cigéo en tenant compte des choix de dimensionnement des colis de stockage et des exigences de sûreté qui leur sont associées.**

##### Mécanismes de reprise en eau des FEB à long terme

La mise à la pression atmosphérique des argilites du Callovo-Oxfordien lors du creusement des galeries et alvéoles entraîne une désaturation des ouvrages de Cigéo durant sa phase d'exploitation. A long terme, le stockage se resature jusqu'à l'atteinte d'un équilibre hydrostatique au bout de plusieurs dizaines de milliers d'années. Ce phénomène conduit à une reprise en eau des FEB à long terme qui pourrait en particulier se traduire par un gonflement de la matrice bitumineuse du fait de la formation de poches de solutions salines consécutives à la diffusion de l'eau dans la matrice. Afin d'évaluer ses effets potentiels sur la roche hôte, des essais de gonflement sous eau d'enrobé de synthèse ont été réalisés à volume contraint dans une solution représentative des conditions de l'environnement cimentaire des alvéoles de stockage. Ils amènent à ce stade à considérer une pression de gonflement s'exerçant sur les ouvrages d'un alvéole de 20 MPa, alors que la pression lithostatique de la roche sur la galerie est évaluée à environ 12 MPa. Toutefois, le CEA précise que les essais réalisés jusqu'à présent sont enveloppes dans la mesure où ils ne prennent pas en compte une expansion des boues bitumées dans les vides résiduels de l'alvéole de stockage, qui conduirait à une diminution de la pression de gonflement s'exerçant sur ses ouvrages. A cet égard, le CEA indique que des études sont en cours afin de quantifier l'impact potentiel de la pression de gonflement des enrobés bitumineux sur le comportement mécanique des argilites du Callovo-Oxfordien en champ

proche des alvéoles de stockage en tenant compte des conditions opérationnelles de l'environnement de stockage. En tout état de cause, l'IRSN estime que l'Andra devra tenir compte de ces études dans le dossier accompagnant la DAC de Cigéo dans le cas où celui-ci contiendrait le stockage de FEB. Par ailleurs, à l'instar des échantillons d'enrobés synthétisés dans le cadre des essais par microcalorimétrie, l'IRSN s'interroge sur la représentativité de ceux synthétisés dans le cadre des essais de gonflement sous eau eu égard à la composition réelle des FEB produits et des incertitudes associées. Les études remises à échéance de la DAC de Cigéo devront apporter des éléments de réponse en ce sens.

#### V. Conclusion

De l'évaluation réalisée, l'IRSN souligne que la nouvelle analyse produite par le CEA complète utilement l'évaluation du comportement thermique des FEB en cas d'incendie. Elle consolide notamment la détermination des valeurs de paramètres d'intérêt comme la température de déclenchement de réactions exothermiques et l'énergie maximale susceptible d'être dégagée pour les domaines de compositions des essais. L'IRSN estime que les résultats découlant de cette nouvelle analyse constituent une base pertinente à considérer en tant que de besoin dans le cadre de la démonstration de sûreté des différentes étapes de gestion des FEB (reprise, transport, entreposage, stockage).

S'agissant de Cigéo, l'IRSN estime notamment qu'il peut être retenu, comme apport essentiel de la nouvelle analyse effectuée, que la possibilité de déclencher des réactions exothermiques pouvant conduire à un emballement peut raisonnablement être considérée comme très faible en dessous d'une température de l'ordre de 100 °C et qu'une énergie de l'ordre de 90 J/g est une valeur majorante de l'exothermicité des enrobés qui peut être utilisée dans le cadre de la démonstration de la maîtrise des risques liés à l'incendie.

Toutefois, l'IRSN considère que la détermination de la composition chimique réelle des FEB comporte une part d'incertitude irréductible. De ce fait, la démarche utilisée, aussi pertinente soit elle, ne peut pas apporter la démonstration de l'exclusion du risque d'emballement. Il convient également de tenir compte de cette limite méthodologique dans la démonstration de sûreté.

Sur ce point, l'IRSN concluait dans son rapport concernant le DOS que « *si la qualité du programme expérimental quadripartite est reconnue par l'IRSN, les résultats qui en découlent ne permettent pas de justifier une valeur « seuil » de température fiable en-deçà de laquelle tout risque d'emballement de réactions exothermiques dans les colis d'enrobés bitumineux est exclu, compte-tenu de la variabilité des contenus des colis de déchets bitumés et de leurs évolutions possibles sur des durées de l'ordre de la centaine d'années* ». Le présent examen confirme cette position qui conduisait l'IRSN à considérer que les concepts présentés par l'Andra n'apportaient pas de garanties suffisantes dans le DOS par rapport à cette possibilité d'emballement exothermique et de sa propagation.

Néanmoins, les compléments apportés par le CEA apportent des éléments nouveaux sur les conditions d'éligibilité des FEB à Cigéo. A cet égard, l'IRSN considère que des évolutions de conception des alvéoles MAVL de Cigéo peuvent faire usage de ces nouveaux éléments en vue de démontrer que le risque d'emballement d'un FEB en situation d'incendie est très faible. Il appartient à l'Andra, si elle

en fait usage, de définir ces évolutions et d'apporter la démonstration de la très faible probabilité du risque d'emballement des FEB en situation d'incendie. Dans ce cadre, l'IRSN estime qu'à minima trois conditions sont nécessaires :

- retenir comme base de conception, une température seuil de 100°C en peau de colis primaire et une valeur maximale d'énergie de 91 J/g afin de disposer pleinement des marges de sûreté eu égard à la variabilité des contenus des FEB ;
- démontrer au moyen d'un programme de caractérisation dédié que les FEB sont compris dans les domaines de variabilité de composition retenus. Ceci fait l'objet de la recommandation R5 en annexe au présent avis ;
- prévoir les dispositions qui permettent, après extinction d'un incendie, de surveiller l'état thermique des FEB.

Par ailleurs, l'absence de possibilité d'exclure le risque d'emballement nécessite de définir et de considérer un scénario d'emballement et de perte de confinement d'un FEB dans un colis de stockage afin d'identifier les dispositions nécessaires pour limiter les conséquences de ce scénario et pour garantir l'absence de propagation de l'emballement aux colis de stockage voisins.

Enfin, compte-tenu des difficultés posées par la démonstration de la sûreté du stockage des FEB en cas d'incendie, l'IRSN estime que la recherche d'une solution de neutralisation de la réactivité des FEB doit se poursuivre en parallèle, d'autant plus s'il apparaît, après caractérisation, que certains FEB ne sont pas éligibles pour un stockage dans l'installation Cigéo.

Pour le Directeur général, par ordre

Jean-Marc Peres

Directeur général adjoint

**Recommandations**

L'IRSN recommande que le CEA :

- R1. complète son programme expérimental en vue d'acquérir les connaissances nécessaires sur l'évolution microstructurale des FEB produits après 1995 pour une dose totale intégrée représentative des durées d'intérêt pour la gestion des FEB (en distinguant la phase d'entreposage de la phase d'exploitation du stockage) et, sur cette base, définit et justifie la valeur de viscosité à considérer dans le cadre des études de sûreté.
- R2. évalue l'évolution des propriétés physiques des enrobés bitumineux gouvernant les mécanismes de transfert de chaleur en leur sein (densité, capacité calorifique et conductivité thermique) en fonction de leur vieillissement, notamment par les phénomènes d'irradiation (réticulation des chaînes carbonées, durcissement, fracturation...) pour une dose totale intégrée représentative des durées d'intérêt pour la gestion des FEB (incluant la phase d'exploitation du stockage) et, sur cette base, définit l'état microstructural enveloppe à considérer dans le cadre des études de sûreté relatives aux installations concernées. Dans cette optique, l'opportunité de prélever des échantillons sur fût réel pour consolider la connaissance de l'état microstructural des FEB après un vieillissement sous irradiation devra être examinée par le CEA.
- R3. précise la composition chimique des FEB issus du traitement de déchets liquides organiques en provenance de La Hague produits à la STEL de Marcoule et évalue leur réactivité potentielle en cas d'échauffement externe.
- R4. présente une méthodologie permettant d'évaluer les incertitudes associées à la mise en œuvre et à l'interprétation des plans d'expériences (préparation des échantillons, mesure par microcalorimétrie, traitement mathématiques des thermogrammes et élaboration des lois de mélange) pour chacun des paramètres d'intérêt y compris la température de déclenchement.
- R5. démontre au moyen d'un programme de caractérisation dédié que les FEB sont compris dans les domaines de variabilité de composition retenus afin de s'assurer de leur éligibilité à Cigéo.