

ÉTUDES RELATIVES AU STOCKAGE DE MATIÈRES RADIOACTIVES QUI SERAIENT REQUALIFIÉES EN DÉCHETS POINT D'ÉTAPE

Virginie Wasselin, Bérengère Cordier, Jean-Charles Robinet, Claudine Barkate Andra

Réunion du GT PNGMDR 15
Décembre 2021

Plan de la présentation

- **Contexte des études**
- **Origine et caractéristiques des matières**
- **Démarche mise en place**
- **Comportement des matières en stockage**
- **Analyse des modes de gestion des matières**
- **Conclusions et perspectives**

Contexte des études

- **La démarche pour étudier les filières de gestion possibles a démarré dans le cadre du PNGMDR 2010-2012.** Les différents acteurs (producteurs, Andra) ont travaillé sur des options de stockage des matières
- **A titre conservatif, le PNGMDR 2016-2018 (articles 4, 7 et 18) a demandé à l'Andra de poursuivre les études de faisabilité du stockage des matières Uapp, URT et thorifères,** dans le cas où celles-ci seraient classées en tant que déchets radioactifs et précisé que **les propriétaires des matières contribuent au pilotage et assurent le financement de cette étude.**
Propriétaires : EDF (URT), Orano (Uapp, URT et thorifères) et Solvay (thorifères).
- **Dans le cadre du Vème PNGMDR, « l'Andra, en lien avec les propriétaires de ces matières, définira, avant le 31 décembre 2023, des scénarios de stockage de l'uranium appauvri, de l'uranium de retraitement et des matières thorifères, qui devront être développés de manière cohérente avec la stratégie de gestion des déchets FA-VL ».**

Origine et gestion des matières : Th, Uapp et URT



Origine des matières

- **Matières thorifères Solvay:**
 - Issues du processus d'extraction des terres rares à partir de la monazite jusqu'en septembre 1994
 - Terres rares utilisées pour la catalyse de dépollution automobile, les poudres de polissage et les luminophores

- **Matières thorifères Orano**
 - Issues des opérations de séparation de l'uranium présent dans les gisements d'uranothorianite de Madagascar

- **Uranium appauvri**
 - Issu de l'enrichissement de l'hexafluorure d'uranium UF_6

- **Uranium de retraitement**
 - Issu du traitement des combustibles irradiés REP et UNGG

Matières thorifères

➤ Matières thorifères (Solvay) à fin 2018* :

- environ 6300 tML de thorium
- Sous forme de nitrates et d'hydroxydes bruts
- Conditionnés en fûts Inox ou PE – Une partie HBTh en vrac

■ Entreposés en bâtiments dédiés sous régime ICPE sur le site de La Rochelle

➤ Matières thorifères (Orano) à fin 2018* :

- environ 2300 tML de thorium
- Sous forme de nitrates
- Conditionnés dans des fûts

■ Entreposés sur le site CEA de Cadarache (ICPE MMB)



*source inventaire national

DISEF/SFF/21-0094

Uranium appauvri

➤ Uranium appauvri entreposé par ORANO à fin 2018* :

- Environ 318 000 tonnes d'Uranium appauvri
- Sous forme d' U_3O_8
- Conditionnés dans des conteneurs DV70
- Entreposés sur 3 niveaux essentiellement sur 2 sites:

- **Tricastin**

- • ICPE mise en service en 1995
- Capacité 159 000 tonnes

- **Bessines**

- • ICPE mise en service en 1998
- Capacité 199 000 tonnes



*source inventaire national

DISEF/SFF/21-0094

Uranium de retraitement

➤ Propriétaires EDF et ORANO

URT entreposé par ORANO à fin 2018* :

- Environ 31 500 tonnes d'URT
- Sous forme d' U_3O_8
- Conditionnés en fûts
- Entreposés sur 4 niveaux essentiellement sur le site du Tricastin:

■ INB 178 (parcs uranifères du Tricastin)



*source inventaire national
DISEF/SFF/21-0094

Démarche mise en place



Démarche mise en place

➤ Pour définir une solution de stockage pour les matières, il faut :

- **Éléments d'entrée** : quels inventaires et volumes ? quelles chroniques ? quels conditionnements?
- **Caractéristiques pour les sites d'accueil et les concepts** : roches hôtes, profondeurs, barrières géologiques ou technologiques

➤ Construction de différents scénarios qui seront comparés sur le plan sûreté, environnement, économie... pour identifier les solutions de stockage et partager avec les parties prenantes

Première étape réalisée

→ Analyse des données d'entrée fournies par les propriétaires de matières afin de consolider leurs caractéristiques chimiques et radiologiques nécessaires au choix et à l'étude des scénarios retenus.

- Les **matières thorifères** sont principalement composées de ^{232}Th et ^{230}Th , en équilibre progressif avec leurs descendants
- les **matières uranifères** sont principalement composées d' ^{238}U en équilibre progressif avec ses descendants sur des durées de quelques années à quelques millions d'années
- L'URT comporte également la présence de traces de **produits de fission et d'activation** mais dont les niveaux d'activité sont très faibles (**quelques centièmes à quelques Bq/g**)

⇒ Les périodes radioactives de l' ^{238}U et du ^{232}Th qui sont, respectivement, de **4,5 milliards d'années** et de **14 milliards d'années** :

Question de l'échelle de temps sur laquelle le stockage doit être étudié compte tenu de l'absence de décroissance radioactive, qui se pose aussi pour les déchets

→ Demande de la V^{ème} édition du PNGMDR d'un développement de manière cohérente avec la stratégie de gestion des déchets FA-VL

Seconde étape en cours

- Analyse des paramètres permettant la définition d'une filière de gestion au regard de différents objectifs de protection de l'homme et de l'environnement en déclinaison d'une doctrine nationale, et de fonctions de sûreté à court et long terme

→ Ces paramètres ne seront pas nécessairement identiques pour chacune des matières

- **Comportement des matières en stockage (Analyses phénoménologiques)**
- Concepts envisagés : sites et architectures
- **Traitements et conditionnement envisageables et à exclure**
- Analyse exploratoire des conditions d'évolution du stockage
- Scénarios d'évaluation en après fermeture
- Scénarios d'Intrusions Humaines Involontaires

Quelle filière pour les matières qui seraient requalifiées en déchets ?

- Les études en cours prennent en compte les filières de gestion de déchets de l'Andra qui existent aujourd'hui :
 - Des centres en exploitation dans l'Aube pour les déchets TFA et FMA-VC
 - Des filières en projet : définition des options techniques et sûreté d'un stockage à faible profondeur pour les déchets FA-VL, Cigéo pour les déchets HA / MA-VL
- Les études passées ont montré **que les enjeux des matières se rapprochent de ceux des déchets FA-VL**
 - Focus sur les travaux FA-VL
 - Un site est identifié, sur la communauté Vendevre-Soulaines, pour recevoir une partie de ces déchets avec une priorité pour les déchets de graphite et radifères selon l'ASN
 - Pour le gestion de la totalité des déchets FAVL, des études d'un ou plusieurs autres stockages de sub-surface restent à lancer
 - Ce site n'a en outre pas vocation à prendre des matières notamment pour des raisons de capacité volumique du site
- **Pas d'étude qui vise à stocker des matières dans un des centres ou un projet avancé de l'Andra**

Comportement des matières en stockage



Comportement des matières en stockage

- Analyse phénoménologique du comportement des matières en stockage, comportement des radionucléides au sein des systèmes de stockage, principalement liés à :
 - La **stabilité des substances en conditions de stockage**, qui va dépendre de leur forme chimique, des conditions physico-chimiques dans lesquelles elles sont placées ;
 - Au **comportement en solution des radionucléides** une fois relâchés des colis, notamment leur solubilité et spéciation au sein du stockage (à proximité des matières, au sein des colis et dans les composants du stockage...).
 - La **mobilité intrinsèque des radionucléides** dans les différents composants du stockage et la formation géologique environnante.

- **Dans le cadre d'un stockage de matières, le comportement de l'uranium et du thorium depuis leur relâchement des substances qui les contiennent jusqu'à la biosphère constitue un des éléments clé de la performance du stockage et de la démonstration de sûreté.**

Les autres éléments, dont différents radionucléides en partie produits par filiation (radium, actinium...), sont également à considérer, notamment au regard de leur comportement dans le milieu géologique et dans les composants du stockage.

Comportement des matières thorifères en stockage



Stabilité des matières

- Hydroxydes bruts de thorium : Intrinsèquement peu solubles mais avec une solubilité sensible à la teneur en carbonates du milieu
- Nitrates de thorium : Solubles au contact de l'eau



Comportement du thorium

- Pour des conditions argileuses ou cimentaires, la solubilité du thorium est faible sur une large gamme de compositions chimiques
- La présence de sels sulfate et/ou nitrate est un paramètre identifié comme augmentant la solubilité du thorium dans l'eau



Rétention du thorium

- Pour les matériaux cimentaires et les matériaux argileux, de fortes valeurs de rétention sont reportées dans la littérature et travaux antérieurs

Comportement des matières uranifères en stockage

➤ Stabilité des matières

- La stabilité long terme d'U3O8 reste à étudier dans les conditions géochimiques du stockage (argileuse ou cimentaire).

➤ Comportement de l'uranium en conditions environnementales naturelles

- **Sensible aux conditions redox**, l'uranium peut être présent sous des degrés d'oxydation +IV ou +VI
- **Paramètres majeurs affectant sa chimie** : le potentiel rédox (Eh) et le pH du système, la concentration en ions carbonate et calcium à pH>7;
- **Autres paramètres influant** :
 - ✓ la concentration aqueuse en silice, affectant principalement la précipitation potentielle de phases solides.
 - ✓ La présence d'ions phosphates sur la solubilité et la complexation de l'uranium dans les conditions proches de la neutralité mais également des ions fluorure et sulfate à pH<6.

➤ Rétention de l'uranium

- **En milieu argileux**, la rétention est liée à son degrés d'oxydation fonction des conditions géochimiques du système, variables selon la proximité des argiles avec la surface,
- **En milieux cimentaires**:
 - ✓ Fonction de l'état de dégradation (carbonatés << sains/altérés)

Toxiques chimiques et autres RN

- Pour les toxiques chimiques et autres radionucléides contenus dans les matières, seront exploitées :
 - les nombreuses connaissances acquises sur le comportement des toxiques chimiques et des radionucléides pour les différents stockages en projet et en exploitation ;
 - les caractérisations faites sur le site de la communauté de communes de Vendevre-Soulaines.

- Pour le Radium, les études montrent :
 - une faible sensibilité du radium aux conditions d'oxydoréduction;
 - une rétention importante en milieux argileux et cimentaires.

- Pour la plupart des actinides/lanthanides contenus dans les matières :
 - des données existent et témoignent d'une forte rétention en milieux argileux et cimentaires.



Analyse des modes de gestion des matières

- Traitements/conditionnements
- Architecture de stockage

Analyse des modes de gestion des matières

➤ Afin d'explorer le champ des possibles pour définir les options de gestion des matières, une étude paramétrique des différentes options a été réalisée au regard des fonctions de sûreté pour un stockage à faible profondeur :

- Fonction F1 : « **Isoler les déchets de l'homme et de la biosphère compte tenu des phénomènes d'érosion climatiques et des activités humaines banales** »,
- Fonction F2 « **Limiter le transfert des radionucléides susceptibles de migrer sous forme de solutés vers la biosphère** » :
 - F2.1 : Limiter la circulation de l'eau,
 - F2.2 : Limiter le relâchement des radionucléides et des toxiques chimiques au plus près des déchets,
 - F2.3 : Retarder et atténuer la migration des substances radioactives et toxiques relâchées hors des alvéoles de stockage,
- F3 « **Limiter l'exhalaison de gaz radioactifs à la surface du sol** ».

➤ Et au regard de l'objectif de préservation des caractéristiques favorables de la roche hôte

- la stabilité mécanique des colis et ouvrages,
- les éventuelles perturbations physico-chimiques apportées par les colis,
- les suppressions potentielles en cas d'émission de gaz par les colis ou les matériaux du stockage.

Analyse des modes de gestion des matières

Ces paramètres sont notamment :

- **Le traitement des matières**, qui correspond aux possibilités connues et envisageables à ce stade de modification des caractéristiques des matières en vue d'optimiser leur volume, leur comportement au sein du stockage, leur réactivité chimique... ;
- **Le conditionnement des matières**, comprenant la possibilité de prévoir une matrice de blocage des matières et l'enveloppe du colis, qui pourrait être envisagé à ce stade, permettant d'optimiser le volume des déchets, limiter les interactions entre les matières et le milieu... ;
- **L'architecture du stockage**, qui comprend le milieu géologique et la nature de la roche hôte considérés, la profondeur d'implantation, les techniques de réalisation compte tenu des connaissances actuelles (stockage en terrassement grande masse ou en galeries souterraines, depuis la surface ou à flanc de coteau), la présence et la nature de la couverture, la nature des composants ouvrages, le mode de remplissage des vides résiduels du stockage.

Matières thorifères : les hydroxydes



Considérant :

- l'analyse phénoménologique du comportement des matières thorifères en stockage ;
- l'étude des traitements possibles des hydroxydes de thorium, transmis par Solvay en décembre 2017 au PNGMDR (procédés Valor+, traitement thermique).



Deux scénarios seront étudiés :

1. le **traitement thermique** des matières, puis une **cimentation à cœur** des matières,
2. le **traitement thermique** des matières, puis un **conditionnement** des matières introduites en vrac dans un conteneur en matériau cimentaire,

Pour ces deux scénarios, **un stockage à faible profondeur en formation argileuse.**

Matières thorifères : les nitrates



Considérant :

- **l'analyse phénoménologique du comportement des matières thorifères en stockage**
- **l'étude des traitements possibles des nitrates de thorium, transmise par Solvay en décembre 2017 au PNGMDR (Reconcentration/solidification à 140°C, insolubilisation des nitrates en phosphates de thorium, transformation des nitrates cristallisés en nitrates coulés)**



Trois scénarios seront étudiés, en stockage à faible profondeur en milieu argileux :

- 1. la transformation des nitrates en phosphates** (pour préserver les propriétés physico-chimiques de l'environnement des déchets et de limiter la mobilité du thorium), suivi d'un **conditionnement en conteneur béton avec éventuel enrobage;**
- 2. Sur-conditionnement des colis métalliques dans des colis en matériaux cimentaires, avec un éventuel enrobage par matrice cimentaire** (pour améliorer la capacité de confinement et la robustesse du colis à stocker). Un stockage à l'écart des matières uranifère pourra être analysé par la suite;
- 3. Transvasement des matières actuellement contenues en conteneur polyéthylène** (pour supprimer la présence de matériaux organiques dans le stockage).

Les composants ouvragés du stockage pourront également être adaptés pour améliorer les propriétés de rétention du stockage pour les scénarios 2 et 3.

Des études complémentaires seront nécessaires pour évaluer finement l'impact des nitrates.

Matières uranifères : Uapp

- Considérant les trois paramètres : traitement / conditionnement/ architecture de stockage:
- Traitement** : aucun traitement n'est envisagé à ce stade par Orano
 - Conditionnement** : stockage direct des DV70 (conteneur métallique d'entreposage), sans ou avec blocage, ou reconditionnement de l'Uapp en conteneur béton
 - Architectures de stockage** : faible profondeur en milieu argileux, concept par terrassement ou en galerie
- Deux scénarios seront étudiés, en stockage à faible profondeur en milieu argileux:
1. **Stockage direct** des conteneurs DV70
 2. **Stockage après sur-conditionnement** en conteneur béton

Matières uranifères : URT

- Considérant les trois paramètres : traitement / conditionnement/ architecture de stockage:
- Traitement** : aucun traitement n'est envisagé à ce stade par Orano et EDF;
 - Conditionnement** : stockage direct des fûts, ou reconditionnement en colis en matériaux cimentaires, ou sur-conditionnement en conteneur en matériaux cimentaires;
 - Architectures de stockage** : faible profondeur en milieu argileux, concept par terrassement ou en galerie, avec possibilité de complément par matériaux cimentaires pour accroître les propriétés de confinement
- Deux scénarios seront étudiés, en stockage à faible profondeur en milieu argileux :
1. **Stockage direct des fûts d'URT**
 2. **Stockage des fûts sur-conditionnés en conteneur en matériaux cimentaires**

Suites des études...

➤ Une modélisation des transferts des radionucléides par l'eau en évolution normale, sur le long terme, en considérant :

- le mode de colisage, susceptible d'apporter un confinement complémentaire ;
- des barrières ouvragées envisagées dans les concepts de stockage;
- l'évolution dans le temps des concentrations volumiques des radionucléides dans le stockage.

Les paramètres géochimiques seront définis sur la base des connaissances acquises sur le site de la Codecom de Venduvre-Soulaines. Les travaux en cours sur FAVL seront aussi pris en compte (exigences de sûreté, techniques constructives...)

➤ Une évaluation de l'impact en cas d'intrusion humaine involontaire, en considérant :

- les cas d'un stockage avec érosion, conduisant à la mise à nu du stockage;
- les conséquences d'un forage pour les stockages peu sensibles à l'érosion où une mise à nu n'est pas considérée;

➤ Suite à ces évaluations et l'appréciation de leurs conséquences, **une itération sur les principaux paramètres sera faite** : profondeur d'implantation du stockage, conditionnement, barrières ouvragées...