

IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Faire avancer la sûreté

Caractérisation des déchets dans le cadre du démantèlement des UNGG

virginie.wasselin-trupin@irsn.fr

GP DEM

ANCCLI

**30/05/2018
ASN/Montrouge**

Caractérisation initiale de l'installation à démanteler

■ Donnée d'entrée importante pour l'évaluation de sûreté

- radioprotection
- filières de gestion des déchets radioactifs

■ Nécessite d'identifier :

- l'inventaire en radionucléides (radionucléides à vie courte, vie longue)
- la localisation des radionucléides dans l'installation (activation, contamination)

■ Problème métrologique pour déterminer l'inventaire radiologique:

- de nombreux radionucléides sont non mesurables par les techniques classiques de mesures radiologiques

Classification française des déchets radioactifs

	Déchets dits à vie très courte contenant des radioéléments de période < 100 jours	Déchets dits à vie courte dont la radioactivité provient principalement de radionucléides de période < 31 ans	Déchets dits à vie courte dont la radioactivité provient principalement de radionucléides de période > 31 ans
Très faible activité (TFA) (~ 100 Bq.g ⁻¹)	Gestion par décroissance radioactive	TFA Recyclage ou stockage dédié en surface (Centre industriel de regroupement, d'entreposage et de stockage de l'Andra (Cires))	
Faible activité (FA) (~ 10 ⁶ Bq.g ⁻¹)		FMA-VC Stockage de surface (centre de stockage des déchets de faible et moyenne activité de l'Aube (CSA)) à l'exception de certains déchets tritiés et certaines sources scellées	FA-VL Filières à l'étude dans le cadre de l'article 3 de la loi du 28 juin 2006 codifiée
Moyenne activité (MA) (~ 10 ⁹ Bq.g ⁻¹)			HA/MA-VL Filières à l'étude dans le cadre de l'article 3 de la loi du 28 juin 2006 codifiée
Haute activité (HA) (>10 ⁹ Bq.g ⁻¹)	Cette catégorie de déchets n'existe pas		

- Les déchets à vie très courte sont envoyés en entreposage de pour décroissance avant d'être stockés
- Les déchets TFA et FMA-VC sont stockés dans des installations de surface dédiées
- Les déchets FA-VL et HA/MA-VL sont aujourd'hui entreposés, dans l'attente d'être stockés dans des centres de stockages souterrains

Quels radionucléides rechercher pour la gestion des déchets ?

■ Fonction des matériaux utilisés dans l'installation

- Radionucléides produits par activation des matériaux

■ Fonction de la classification radiologique des déchets et des stockages existants

- Au moins les radionucléides importants pour le stockage

e.g. RN of interest for near surface disposal : long lived RN

- activation products : ^{10}Be , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{93}Mo , ^{93}Zr , ^{94}Nb , $^{108\text{m}}\text{Ag}$,
- fission products : ^{79}Se , ^{99}Tc , ^{107}Pd , $^{121\text{m}}\text{Sn}$, ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}Cs , ^{151}Sm .

Quelle méthodologie à envisager?

- Une caractérisation radiologique optimisée doit être recherchée en lien avec les objectifs industriels et sanitaires de gestion des déchets.
- Les variables permettant de différencier les catégories de déchets, d'un point de vue radiologique, sont l'activité totale et le spectre radiologique.
- La physique sous-jacente (contamination/activation) doit être connue ce qui implique une bonne connaissance de la provenance du déchet et de l'historique de fonctionnement de l'installation d'où il provient.

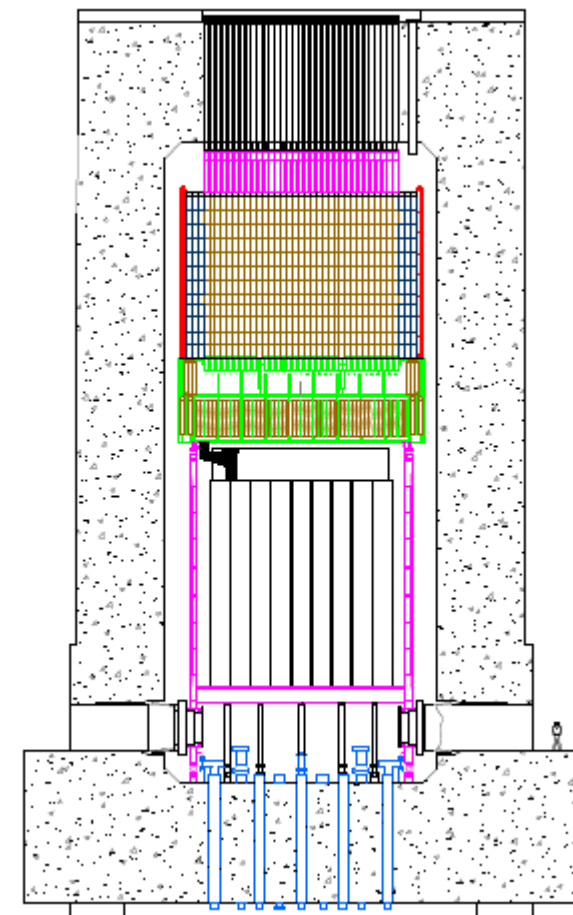
Exemple d'un réacteur UNGG

- Quels radionucléides?

- Activation des matériaux

- Béton
- Graphite
- Acier

- Détermination de l'activité des produits d'activation pour chaque type de matériau par calcul



Détermination de l'inventaire radiologique

“Cas idéal”

■ Calcul d'activation

- Composition chimique du matériau : impuretés
- Spectres énergétiques des neutrons et fluence associée : zonage
- Historique d'irradiation des matériaux

■ Caractérisation d'échantillons

- Validation des calculs



détermination de l'activité totale et d'un spectre type

L'exemple des graphites FAVL

22 000 tonnes de déchets de graphite de faible activité ($<10^6\text{Bq/g}$)

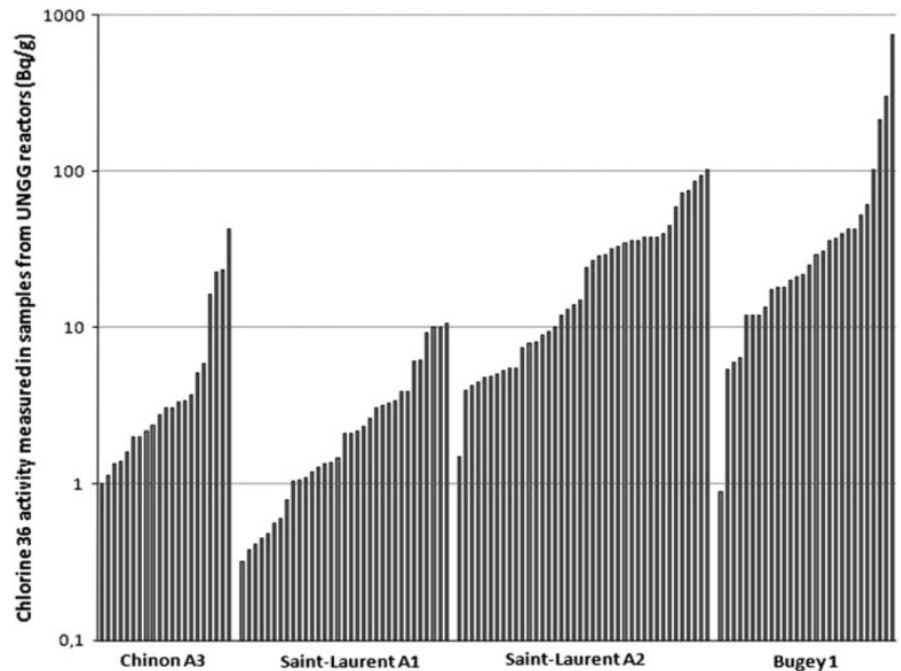
Graphite activé provenant des réacteurs UNGG (EDF, CEA)

Ces graphites étaient de très haute pureté, la source de radioactivité provient de l'activation neutronique des impuretés.

Le problème métrologique:

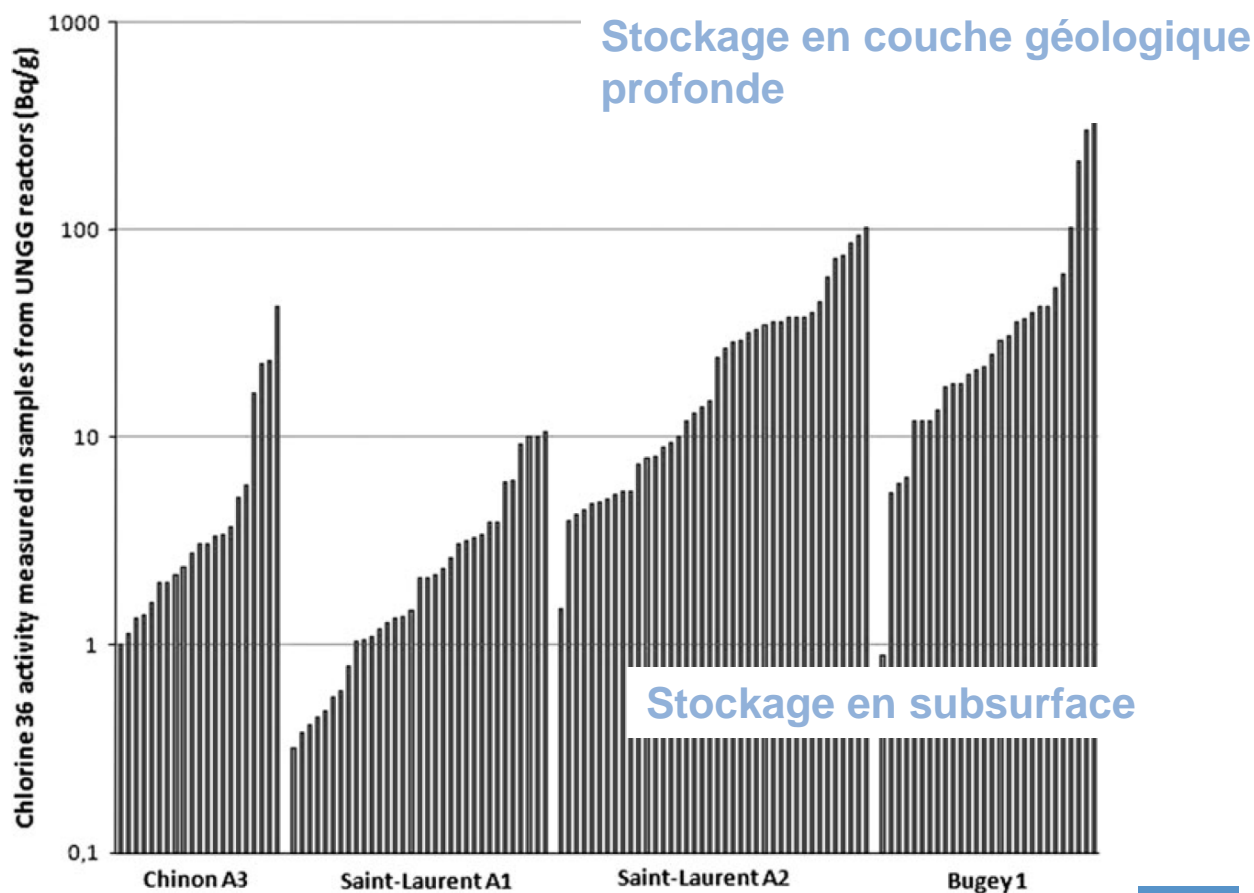
Sur le même échantillon d'un gramme, les mesures sont très dispersées (du TFA au MA!!)

Certains radionucléides sont non mesurables



Caractérisation du graphite activé

- Résultats des mesures destructives sur échantillons ne sont pas pertinents
 - Valeurs de concentration en ^{36}Cl sont très dispersées par exemple

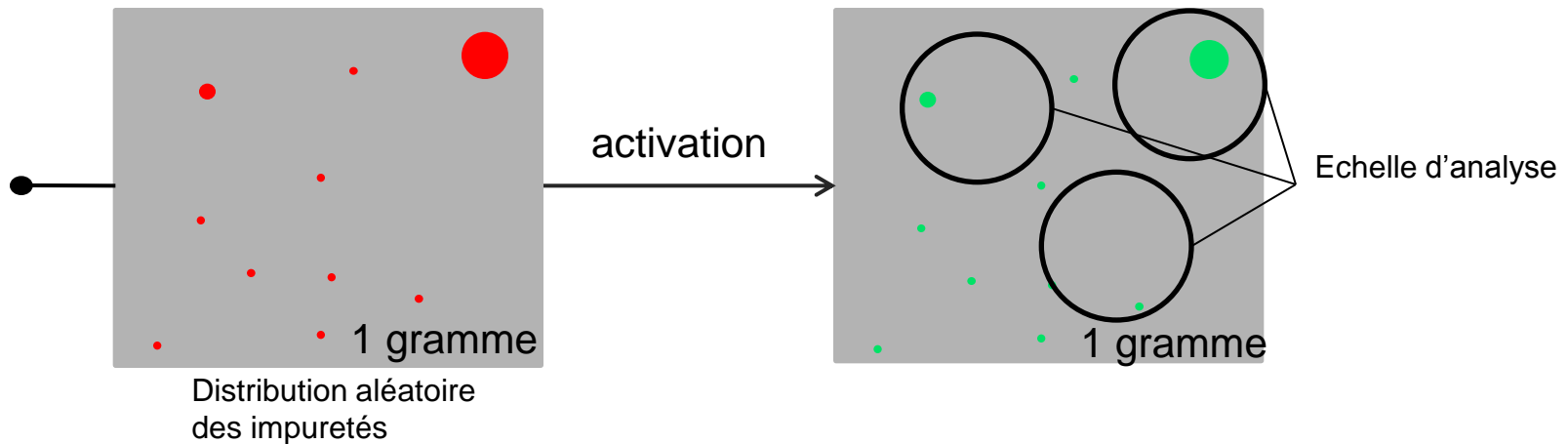


Caractérisation du graphite activé

- Prendre **seulement en considération les valeurs les plus élevées** n'est pas satisfaisant pour la conception et le dimensionnement d'un stockage
- Prendre une moyenne géométrique ou arithmétique des valeurs ne serait pas représentatif de la réalité physique du processus d'activation des impuretés
- Des **calculs d'activation** sont nécessaires mais le contenu en impuretés n'est pas connu
- **Une méthode inverse** pour trouver le contenu en impuretés le plus proche de la réalité est nécessaire, en utilisant l'ensemble des mesures radiologiques disponibles

L'exemple des graphites FA

Pourquoi ces mesures radiologiques sont-elles si incertaines?



Toutes les mesures reflètent la réalité. C'est la réalité locale qui est très incertaine.

L'exemple des graphites FA

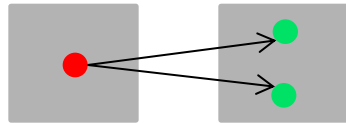
- L'enjeu est de concevoir une filière de gestion en limitant la quantité de becquerels fictifs, avec l'élaboration d'un inventaire raisonnablement conservatif et une cohérence physique maîtrisée.
- Un simple traitement statistique des données expérimentales ne suffirait pas à les raccorder à une réalité physique.
- Le recours à des outils de calcul scientifique permettant la modélisation de l'activation des impuretés apparaît nécessaire.
- PROBLEME: les teneurs initiales en impuretés ne sont pas accessibles par la mesure chimique: un calcul direct d'activation ne peut pas être mis en place.
- SOLUTION proposée par EDF: méthode inverse visant à identifier un jeu de teneurs en impuretés d'origine qui explique au mieux, via des calculs d'activation, l'ensemble des mesures radiologiques qui doivent toutes être considérées comme réalistes.

Reconstitution de l'inventaire

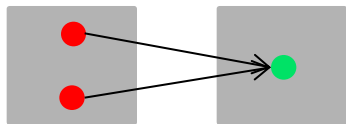
Etape 1

Identification analytique

Impureté \leftrightarrow RN



$\{...\}Ni \rightarrow ^{60}Co$ 9%
 $\{...\}Ni \rightarrow ^{59}Ni$ 100%



90% $\{...\}Co \rightarrow ^{60}Co$
 9% $\{...\}Ni \rightarrow ^{60}Co$
 1% $\{...\}Fe \rightarrow ^{60}Co$

Construction d'un ensemble de matrices d'activation

Impuretés \leftrightarrow RN (52 x144)

Etape 2

Ajustement itératif par minimisation d'un fonction C/M

Activation

$\ln(C/M)$

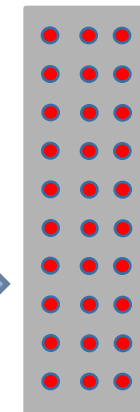
$$\sum_i \mu_i^2 = \sum_i \left(\frac{1}{N_i} \sum_{j=1}^{j=N_i} \ln \frac{C_{ij}}{M_{ij}} \right)^2$$

Teneurs en impuretés

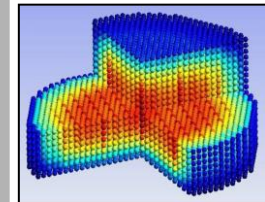
Obtention d'un vecteur de teneurs en impuretés optimisé et considéré homogène dans l'ensemble du graphite -> **réalité physique**

Etape 3

Calcul réacteur



DARWIN



TRIPOLI

Historique de flux

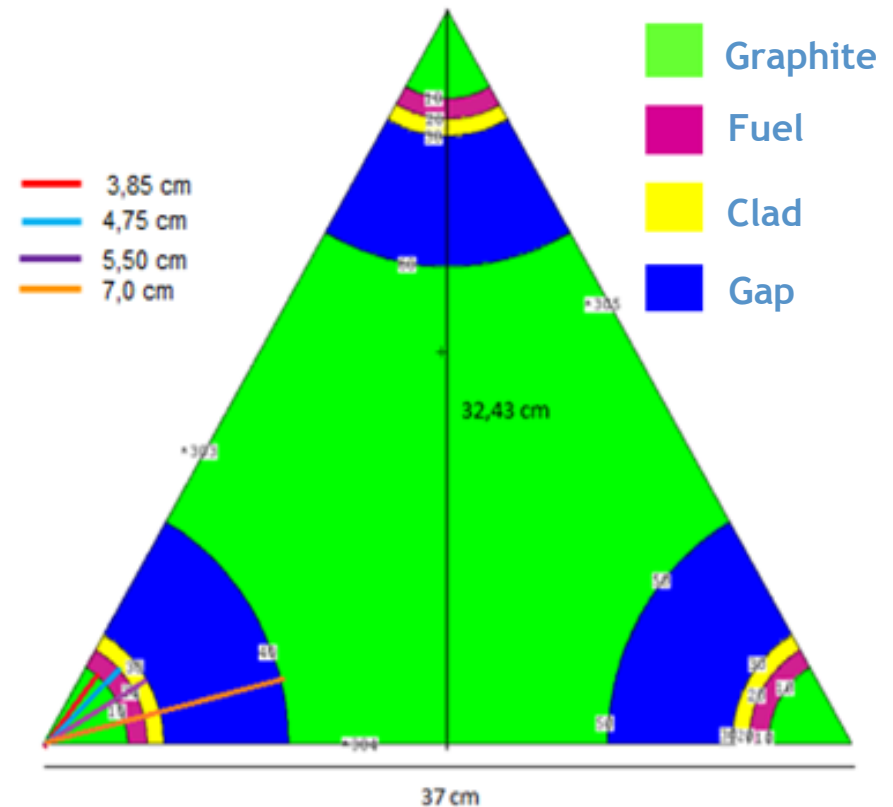
Reconstitution de l'inventaire

- Pour les radionucléides ayant pu être identifiés et ajustés, un inventaire est accessible, associé à une incertitude et un intervalle de confiance.
- Pour les radionucléides non mesurables, une corrélation est réalisée sur la base d'un radionucléide mesurable en lien avec les connaissances physiques disponibles.
- L'inventaire ainsi reconstitué et dont l'incertitude est maîtrisée permet d'engager des décisions industrielles.
- Il demeure nécessaire de lier la précision attendue avec les objectifs radiologiques de la gestion du déchet.
- **La cohérence physique de ce type de méthode doit être démontrée**

Etudes théoriques de l'IRSN

- Etudes analytiques en parallèle de la méthode mathématique afin d'apprécier son niveau de cohérence physique.

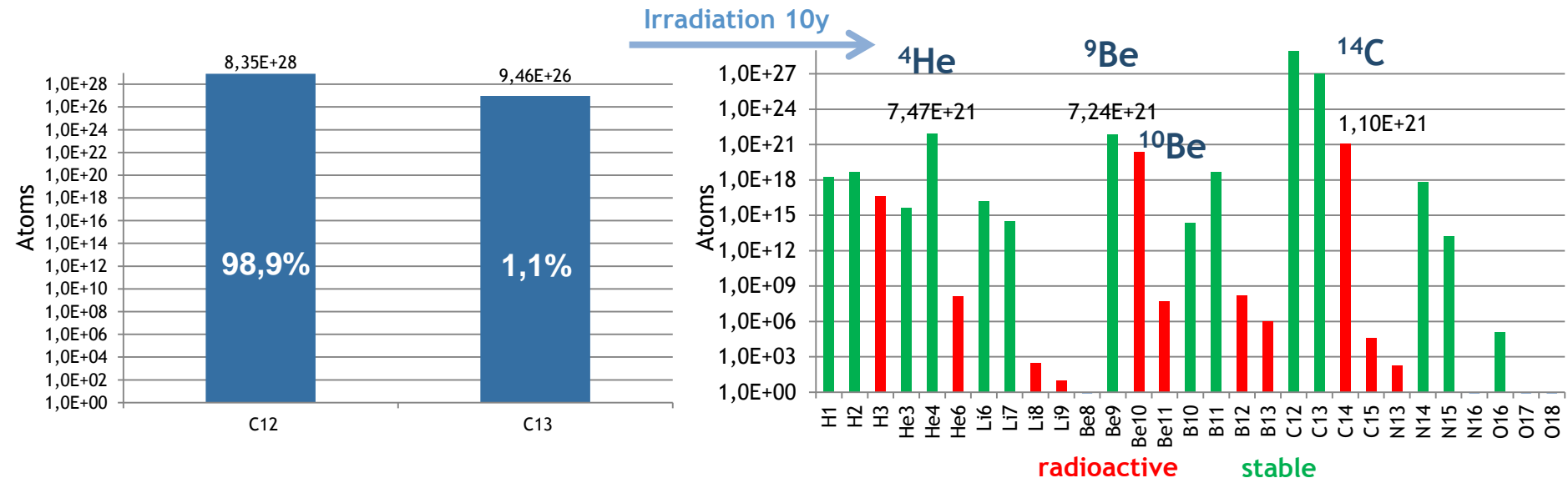
Fuel	^{238}U 99,3% ^{235}U 0,7%
Cooling fluid	CO_2
Graphite	^{12}C 98,88% ^{13}C 1,12%
Clad	Alliage Mg-Zr Mg 99,5% Zr 0,5%



Test-1: $^{12}\text{C} + ^{13}\text{C}$

« Cooling » = pure depletion, no neutronic flux

- Premier test: carbone naturel absolument pur irradié 10 ans et refroidi 10 000 ans 1m^3 (1685kg), $\phi = 10^{13}\text{n/cm}^2/\text{s}$

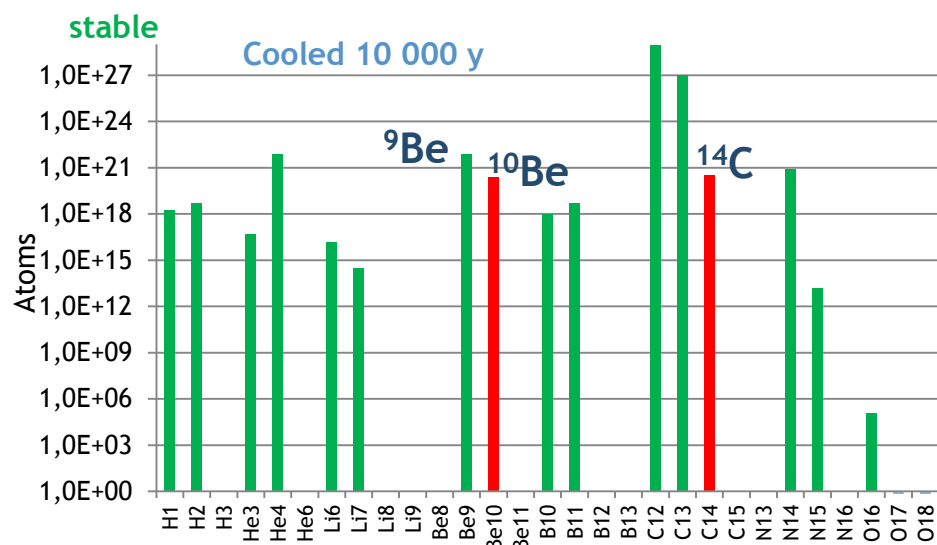
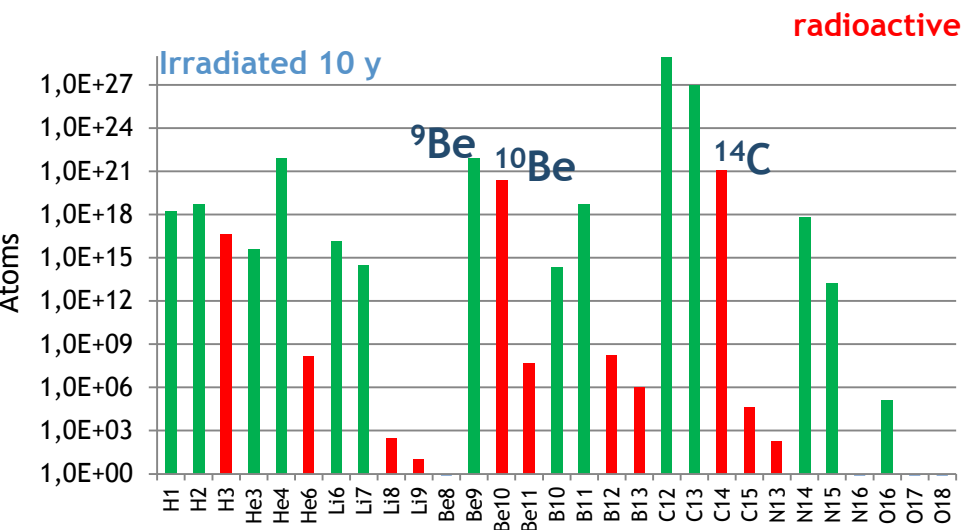


Observations:

L'activation neutronique produit des éléments stables à ne pas négliger

Test-1: $^{12}\text{C}+^{13}\text{C}$

- Après 10 000 ans



Observations:

Des toxiques chimiques demeurent et doivent être intégrés à la nocivité du déchet, même s'il est très faiblement radioactif

A reverse method for the determination of the radiological inventory of irradiated graphite at reactor scale

Grégory Nicaise*, Bernard Poncet**

*Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, 31, avenue de la Division Leclerc 92260 Fontenay-aux-roses, France

** EDF CIDEN, 154 Avenue Thiers, CS 60018, 69458 Lyon cedex 06, France

En conclusion, que montre l'exemple des graphites FAVL

- Il est nécessaire de disposer d'un grand ensemble de mesures, même dispersées, pour opérer des modèles statistiques.
- La physique sous-jacente de contamination ou d'activation doit être connue.
- A ce titre, il est nécessaire de bien connaître l'historique d'exploitation de l'installation d'où proviennent ces déchets.
- Des moyens de calcul scientifique doivent être disponibles pour modéliser cette physique et apprécier le niveau de caractérisation finale.
- Les études théoriques permettent de juger de la cohérence physique de la méthode mais aussi de soulever le problème de la toxicité chimique du déchet.