

Le stockage des déchets nucléaires en site profond

H.Nifenecker

Conseiller Scientifique

Laboratoire de Physique Sub-atomique et de cosmologie (IN2P3/UJF)

et

G.Ouzounian

Délégué Régional Ile-de-France de l'ADEME,
anciennement Adjoint au

Directeur Scientifique de l'ANDRA

Alors que le stockage des produits chimiques toxiques qui ont, pour beaucoup, une durée de vie infinie ne donne lieu qu'à peu de débats ou à des débats très localisés, le stockage des déchets radioactifs pose clairement un problème d'acceptabilité pour la société civile et vient sérieusement compliquer le débat sur la politique énergétique. Dans le cas des produits chimiques, le choix implicite qui est fait est clairement celui de la dilution et les limites expérimentales des mesures (au mieux 10^{10} atomes) donnent la possibilité d'« oublier » assez rapidement le problème (Seveso). Au contraire la capacité propre à la radioactivité de mesurer atome par atome permet de faire des suivis sur de longues périodes et semble rendre le débat plus difficile. Quelques soient les opinions des uns et des autres sur le nucléaire, force est de constater que plus de 30 ans de production électronucléaire ont eu lieu, et que les déchets se sont accumulés. Notre responsabilité de scientifiques est certainement de rechercher et de proposer des solutions pour une gestion propre et sûre de ces déchets, sans pour autant occulter d'autres formes de débats sur les choix énergétiques futurs. Or le principal argument contre un choix de l'énergie nucléaire est le problème que poserait la gestion des déchets nucléaires. En particulier la grande durée de vie de certains de ces déchets constituerait un défi quasi insurmontable. Il est devenu courant de mettre sur un même pied de dangerosité les effets du réchauffement climatique entraîné par l'émission de gaz à effet de serre et ceux associés à la dispersion des déchets nucléaires. En général, toutefois, ces raisonnements, pour péremptores qu'ils soient, ne sont appuyés d'aucun argument quantitatif. Nous avons l'ambition de donner ici un ordre de grandeur des dangers associés à la gestion à long terme des déchets nucléaires. On distingue traditionnellement trois types de gestion correspondant aux trois axes de la loi de 1991

1. La transmutation-incinération
2. Le stockage en site profond
3. L'entreposage en surface

L'entreposage en surface, voire en sub-surface ne peut être, à l'évidence, une solution de long terme puisque, supposant une surveillance continue, elle reposerait sur l'assurance de la stabilité de notre civilisation sur un échelle de temps en rapport avec la durée de vie des radio-nucléides contenus dans les déchets, et donc, largement plus grande que l'échelle historique. La transmutation-incinération est théoriquement possible¹. Elle demande toutefois à être démontrée à un coût raisonnable. Il n'est pas évident qu'elle traite tous les radio-nucléides avec une efficacité suffisante permettant de supprimer la nécessité d'un stockage en site profond, même si les quantités en jeu devraient être considérablement réduites. Par ailleurs, les opérations de séparation des radioéléments puis de transmutation seraient elles-mêmes génératrices de déchets dont il faudra aussi assurer l'élimination. Le stockage en site profond doit donc être considéré comme la stratégie de référence, et c'est sur elle que porte le reste de cette contribution.

Nous décrivons schématiquement, tout d'abord, ce que pourrait être un site de stockage souterrain. Nous exposerons ensuite les principes sur lesquels reposent les calculs de diffusion des éléments radioactifs au travers des couches géologiques et donnerons les résultats de tels calculs dans le cas particulier de l'argile. Bien entendu il reste nécessaire de valider les calculs théoriques de façon la plus réaliste possible. Les études expérimentales en laboratoire souterrain ont été décrites par l'un d'entre nous dans

le bulletin de la SFP de juillet 1999².

Modèle de site de stockage souterrain.

Pour pouvoir quantifier les risques associés à un stockage souterrain nous utiliserons les données géologiques correspondant aux conditions du futur laboratoire d'études de l'Est de la France. Ceci ne présage en rien d'une décision sur l'emplacement d'un éventuel site définitif de stockage.

S'agissant d'un scénario de référence nous nous placerons dans le cas d'un stockage direct, sans retraitement, des combustibles irradiés. Les combustibles irradiés (colis) sont, eux-mêmes, protégés par un système de barrière ouvragée. Le site de stockage proprement dit est situé à environ 500 m de profondeur au milieu d'une couche d'argile Callovo-Oxfordien d'une épaisseur de 130 m. La couche d'argile est très peu perméable et représente la principale barrière de rétention des radioéléments de très longue durée de vie.

L'eau est à la fois le principal facteur de vieillissement des colis de déchets radioactifs et du relâchement consécutif des radioéléments qu'ils contiennent, et le vecteur de leur transport dans la barrière géologique. Au cours du premier millénaire l'eau pénétrera lentement dans les barrières ouvragées pour venir au contact des colis. Dès lors la corrosion puis l'altération conduira à un relâchement progressif des radioéléments dans l'eau. Typiquement on estime de manière conservatrice pour les calculs d'évaluation de sûreté que le processus de dissolution dure 10^6 ans pour les combustibles irradiés. Une fois dissous dans l'eau les radioéléments seront transportés par diffusion à travers la couche d'argile. Au sortir de celle-ci il est supposé qu'ils se disperseront rapidement dans les couches calcaires et qu'ils se retrouveront dans la nappe aquifère utilisée par un groupe humain critique, celui qui serait le plus exposé aux rejets. La règle fondamentale de sûreté (RFS) demande que la dose engagée pour cette population n'excède, normalement, à aucun moment du futur une limite de 0.25 mSv/an, soit le dixième de la dose délivrée par l'irradiation naturelle. Rappelons que les risques de cancer associés à une telle dose seraient comparables à ceux entraînés par la consommation d'un paquet de cigarette par an¹³.

Avant de présenter les résultats de calculs, il nous semble utile de rappeler les principes physiques de la diffusion des radioéléments dans une couche d'argile ce qui permet de situer l'importance des paramètres à prendre en compte et de révéler les lois d'échelle pertinentes.

Principes de la diffusion des radioéléments dans les couches géologiques

L'application du principe de précaution conduit à vérifier que le confinement assuré par la couche d'argile serait suffisant à lui seul. Dans cette couche les mécanismes de transport sont essentiellement diffusifs. On suppose que les radioéléments sortant de la couche d'argile sont immédiatement disponibles pour la consommation. On fait ainsi un calcul pessimiste. Il faut, toutefois, remarquer que ce type de calcul fait l'hypothèse d'une couche homogène à l'échelle des échantillons de mesures. La présence de fissures dans la couche joueraient le rôle de courts circuits. Une façon simple d'en tenir compte serait de remplacer l'épaisseur réelle de la couche par une épaisseur effective. On conçoit l'importance que revêt alors la caractérisation précise des propriétés de la couche in situ comme permettront de le faire les installations du laboratoire souterrain.

Modèle physique de la diffusion dans la couche d'argile.

Les radioéléments étant supposés transportés par l'eau, en présence de phénomènes de sorption et de désorption, on peut se représenter le transport élémentaire comme ayant lieu le long de capillaires. La coordonnée relevante pour suivre ce transport est la direction perpendiculaire à la couche d'argile. A l'échelle de la longueur élémentaire on peut définir les pertes et les gains en radioéléments :

- Les pertes sont dues à :

ⁱ Cette dose est proche de un Dari. Le Dari est l'unité proposée par G.Charpak et R.L.Garwin est correspond à l'irradiation interne due à la présence de radioéléments dans le corps humain. Le Dari est donc le minimum absolu de l'irradiation que pourrait subir un être humain.

- La décroissance radioactive : $-\lambda\rho_d(x,t)$ où λ est le taux de désintégration radioactive et $\rho_d(x,t)$ est la densité linéaire des radioéléments dissous
- La sorption par les parois : $-w_s\rho_d(x,t)$ où w_s est le taux de sorption
- Les radioéléments entraînés hors du volume par l'eau : $-\nu\rho_d(x,t)$ où ν est une vitesse de transportⁱⁱ
- Les gains sont dus à :
 - La désorption par les parois : $w_d\rho_s(x,t)$ où w_d est le taux de désorption, $\rho_s(x,t)$ est la densité linéaire des radioéléments adsorbés sur les parois.
 - Les radioéléments entraînés dans le volume par l'eau : $\frac{\nu}{2}(\rho_d(x-\Delta,t) + \rho_d(x+\Delta,t))$ où Δ est une longueur effective de transport.

Il faut remarquer que, dans le cas d'une solubilité limitée des radioéléments, w_s et w_d dépendent de la densité volumique des radioéléments considérés.

L'évolution de la densité de radioéléments dissous ou adsorbés peut alors être décrite par le système :

équation 1

$$\frac{d\rho_d(x,t)}{dt} = \nu\Delta \frac{d^2\rho_d(x,t)}{dx^2} - \lambda\rho_d(x,t) - w_s\rho_d(x,t) + w_d\rho_s(x,t)$$

$$\frac{d\rho_s(x,t)}{dt} = -\lambda\rho_s(x,t) + w_s\rho_d(x,t) - w_d\rho_s(x,t)$$

On posera $D_0 = \nu\Delta$, constante de diffusion caractéristique du transport de l'eau dans les capillaires. Les

temps caractéristiques de décroissance radioactive λ^{-1} , supérieurs à 1000 ans et de diffusion $\frac{x^2}{D_0}$, de

l'ordre de l'année pour un parcours de 1 cm, sont très supérieurs à ceux de sorption et désorption qui sont de l'ordre de la seconde. Il s'ensuit que l'équilibre de sorption peut être considéré comme réalisé et, donc, que :

équation 2

$$\rho_d(x,t) = \frac{w_d}{w_d + w_s} \rho(x,t) \text{ }^{\text{iii}}$$

d'où l'équation pour $\rho(x,t)$:

équation 3

$$\frac{d\rho(x,t)}{dt} = D_0 \frac{w_d}{w_d + w_s} \frac{d^2\rho(x,t)}{dx^2} - \lambda\rho(x,t)$$

et des équations identiques pour $\rho_d(x,t)$ et $\rho_s(x,t)$ La constante de diffusion

$D = D_0 \frac{w_d}{w_s + w_d} = \frac{D_0}{R}$, où R est un facteur de retard qui peut être très grand, caractérise donc la

diffusion du radioélément.

Connaissant le profil de la densité du radioélément dans la couche, il est, évidemment, important d'en

ⁱⁱ Il faut aussi tenir compte de la diffusion de surface des radioéléments. La vitesse de transport ν doit donc être considérée comme une vitesse effective

ⁱⁱⁱ Du fait de la diffusion et de la décroissance radioactive l'équilibre de sorption n'est pas rigoureux. On ne peut donc appliquer directement l'équation 2 à l'équation 1 sans précaution car le terme de sorption-désorption devient de l'ordre des autres termes.

déduire le courant sortant. Ce courant est proportionnel au courant d'eau dans le capillaire, avec une constante de proportionnalité qui n'est autre que la concentration du radioélément concerné dans la phase aqueuse. Il s'ensuit qu'en appliquant la loi de Fick, le courant de radioélément peut s'écrire :

équation 4

$$J(x, t) = -D_0 \frac{d\rho_d(x, t)}{dx}$$

Ici le courant est exprimé en fonction de la densité de radioélément dissoute. Cette expression est particulièrement commode lorsque cette densité est limitée par le solubilité de l'élément considéré. Au contraire lorsque l'élément est soluble il est plus judicieux d'exprimer le courant en fonction de la densité totale du radioélément.

Solution schématique du problème de diffusion à travers la couche d'argile

La solution de l'équation 3, dans un milieu semi-infini défini par une interface à $x=L$, et pour N noyaux, permet d'obtenir le courant à l'interface :

équation 5

$$J(L, t) = \frac{N}{2\sqrt{\pi Dt}} \frac{L}{t} e^{-\frac{L^2}{4Dt}} e^{-\lambda t}$$

Dans le cas de noyaux stables ($\lambda=0$), le flux passe par un maximum pour un temps:

équation 6

$$\tau_S = \frac{L^2}{6D}$$

qui peut être considéré comme un retard à la sortie des radioéléments. La largeur de la distribution des temps de sortie est proche de :

équation 7

$$\Delta\tau = \frac{L^2}{4D} = 1.5\tau_S$$

On voit donc que la couche d'argile a le double rôle de retarder la contamination de la biosphère (et, donc, de laisser le temps à de nombreux isotopes de se désintégrer) et d'étaler cette contamination sur une durée proportionnelle au retard. La valeur maximale conditionne l'amplitude du danger représenté pour la population critique. Celui-ci est donc proportionnel à la constante de diffusion et inversement proportionnel au carré de l'épaisseur de couche. Les dépendances quadratiques de l'épaisseur de la couche d'argile en soulignent l'importance, et donc celle d'un choix judicieux de la formation de stockage.

Il est facile modifier ces relations pour tenir compte de la constante de décroissance des radioéléments. De même l'extension dans le temps du relâchement de radioactivité peut être prise en compte sans difficulté.

Limitation des flux de noyaux radioactifs par la solubilité.

Le traitement qui précède suppose que les radioéléments sont totalement solubles dans l'eau. Dans la pratique de nombreux éléments sont très peu solubles, ce qui est susceptible de ralentir leur transfert. Si le flux à travers la couche d'argile, ou la barrière ouvragée, est insuffisant pour évacuer les radioéléments au fur et à mesure de leur relâchement par le combustible ou le colis, leur concentration dans l'eau à leur contact va croître jusqu'à atteindre, éventuellement, une valeur limite de saturation C_{max} au delà de laquelle ils précipiteront aux environs de la source. A une telle valeur limite de la concentration correspond une valeur limite du flux entrant dans la couche d'argile ou dans la barrière ouvragée. Cette valeur limite peut être obtenue à partir de l'équation stationnaire de la densité.

équation 8

$$D \frac{d^2}{dx^2} \rho_{stat}(x) - \lambda \rho_{stat}(x) = 0$$

avec la condition pour $x=0$:

équation 9

$$\rho_{stat}(0) = C_{max} \omega S$$

où S est la surface de la source émettrice des radioéléments, et ω la porosité de l'argile. La porosité représente la fraction de volume, et donc de surface occupée par l'eau. La densité correspond ici à la densité des radioéléments dissous. On trouve alors une expression approchée du courant de sortie de couche :

équation 10

$$J_{max}(0) = k_s C_{max} e^{-\lambda L \sqrt{\frac{1}{2D}}}$$

avec :

équation 11

$$k_s = \omega S D_0 \frac{\sqrt{\frac{\lambda}{D}}}{\tanh\left(\sqrt{\frac{\lambda}{D}} L\right)}$$

On pourra simplifier l'expression du courant de sortie de couche en lui donnant une valeur constante égale à J_{max} pendant une durée $\frac{N}{J_{max}}$.

Détermination de la dose délivrée à la population.

Connaissant le flux de noyaux radioactifs sortant de la couche il est possible de déterminer la dose maximale délivrée à la population critique.

On suppose que les radioéléments sortant de la couche d'argile se dispersent dans l'eau de la nappe phréatique utilisée par la population critique. Soit J_{max} la valeur maximale du flux de noyaux. En admettant qu'un équilibre des flux soit atteint, le même flux se retrouve à l'exutoire de la nappe. Chaque habitant

n'ingère qu'une fraction α de l'eau disponible et le flux des radioéléments ingérés est donc αJ_{max} . Seule

une fraction f de la quantité de radioéléments ingérés se fixe dans l'organisme. Le radioélément est caractérisé par sa période biologique T_b , correspondant à son temps de séjour dans l'organisme et, donc, par une constante de temps biologique $\lambda_b = \frac{0.693}{T_b}$. La quantité de radioélément r présent dans

l'organisme est donc telle que, à l'équilibre $r \lambda_b = \alpha f J_{max}$. L'activité interne à l'organisme due au

radioélément est $\lambda r = \frac{\lambda \alpha f J_{max}}{\lambda_b}$. On suppose que le radioélément se fixe dans un(des) organe(s) cible(s)

de masse m_i . Si l'énergie de désintégration du radioélément (en dehors des neutrinos) est ε , la dose

annuelle reçue est $A = \lambda \varepsilon \frac{\alpha f J_{max} V}{m_i \lambda_b}$ où l'unité de temps étant la seconde, V est la durée de l'année. Si les

énergies sont exprimées en joule et les masses en kg, la dose absorbée est alors exprimée en Gray/an. Pour tenir compte de l'efficacité biologique des rayonnements on associe à ceux ci un facteur de qualité Q, valant 1 pour les photons et les électrons et environ 20 pour les α . La dose engagée s'exprime alors en Sievert. De plus, le radioélément se fixant préférentiellement dans un ou des organes, la dose moyenne délivrée au corps entier est plus faible que celle délivrée à ce ou ces organes. Pour tenir compte de cet effet on affecte un poids w à chaque organe. Finalement la dose effective engagée est

équation 12

$$E = \sum_i \frac{w_i}{m_i} \frac{Q \lambda \epsilon \alpha J_{\max} V}{\lambda_b}$$

Quelques exemples de détermination de doses

Pour une porosité de l'argile de 20% les mesures donnent une valeur de la constante de diffusion de l'eau $D_0 = 1.6.10^{-3} m^2 / an$. Les constantes de diffusion des éléments dissous dépendent de la nature de l'élément et reflètent sa plus ou moins grande affinité pour l'argile. Les phénomènes de sorption sur les surfaces minérales se traduisent par une diminution de la constante de diffusion par le coefficient de retard. Le tableau 1 donne des exemples de coefficients de retards, ainsi que des exemples de limites de solubilité décrivant les concentrations maximales possibles dans l'eau pour chaque élément, compte tenu de ses caractéristiques chimiques. On remarquera sur le tableau que le Radium, qu'on retrouve toujours parmi les descendants des actinides, est 100 fois moins retardé que le Thorium, l'Uranium ou les actinides mineurs. Le Radium pourrait donc jouer un rôle important dans le transfert de radioactivité des actinides. En fait seul le Radium 226, descendant de l'Uranium 238, a une période radioactive suffisamment longue (1600 ans), pour pouvoir jouer un rôle.

Eléments	Coefficient de retard	Limite de solubilité (Mole/m ³)
Se	40	10 ⁻⁸
Sr	80	10 ⁻²
Zr	4000	3.10 ⁻⁷
Tc	500	7.5. 10 ⁻⁶
Sn	4000	5.10 ⁻³
I	1	Soluble
Cs	800	Soluble
Ra	8	2.10 ⁻⁴
Th	5000	2.5. 10 ⁻⁷
Pa	67	10 ⁻⁶
U	500	3. 10 ⁻⁷
Np	1000	8. 10 ⁻⁷
Pu	5000	8.10 ⁻⁵
Am	2000	4. 10 ⁻⁵

Tableau 1
Coefficients de retard et limite de solubilité des principaux éléments du combustible^{iv}.

Les coefficients de retard sont mesurés en laboratoire en étudiant la sorption d'une solution aqueuse de l'élément par un échantillon d'argile caractéristique de la couche. Ces études sont également faites en fonction de la température.

Quantités de déchets stockés.

^{iv} Les valeurs numériques données dans les tableaux sont susceptibles d'être modifiées au fur et à mesure des mesures futures effectuées sur le site.

En principe le futur site de stockage devrait recueillir les verres résultant du retraitement des combustibles irradiés, les combustibles UOx non retraités, et, éventuellement des combustibles MOx irradiés. Globalement le retraitement diminue la radio-toxicité à long terme des déchets en diminuant notablement les quantités de plutonium et d'iode qui y sont présentes. Nous nous contenterons donc ici de considérer les combustibles non retraités qui maximisent donc les rejets possibles.

Radionucléide	période ans	tonnes	activité Bq
79Se	6,50E+04	0,10239702	2,62E+14
90Sr	2,90E+01	9,77426111	4,94E+19
93Zr	1,53E+06	14,4286712	1,34E+15
99Tc	2,13E+05	16,4766116	1,03E+16
126Sn	1,00E+05	0,40958808	4,28E+14
129I	1,57E+07	3,63043984	2,36E+13
135Cs	2,30E+06	7,16779148	3,04E+14
137Cs	3,00E+01	32,394694	1,04E+20
235U	7,04E+08	205,724924	1,64E+13
236U	2,34E+07	81,9176169	1,96E+14
238U	4,47E+09	18807,5401	2,34E+14
237Np	2,14E+06	8,19176169	2,12E+14
238Pu	8,77E+01	3,07191064	1,94E+18
239Pu	2,41E+04	114,591576	2,62E+17
240Pu	6,54E+03	44,2168955	3,72E+17
241Pu	1,41E+01	23,6444031	9,18E+19
242Pu	3,76E+05	9,77426111	1,42E+15
241Am	4,32E+02	4,09588085	5,18E+17
243Am	7,38E+03	2,04794042	1,51E+16
244Cm	1,81E+01	0,46544101	1,39E+18
245Cm	8,53E+03	0,05585292	3,52E+14

Tableau 2

Masses et activités des principaux radio-nucléides présents dans 20000 tonnes de combustibles irradiés avec leurs périodes radioactives.

Le Tableau 2 donne la composition d'un stockage de 20000 tonnes de combustible irradié(CI). Une telle quantité correspond à environ 10 ans de fonctionnement du parc actuel de réacteurs, le stock présent de déchets se montant à un équivalent d'environ 20000 tonnes de CI.

Exemple de calcul complet de dose à l'exutoire

Un exemple de calcul complet réalisé sur l'ensemble des radio-nucléides contenus dans le combustible usé est présenté en Figure 1. Il a été réalisé pour évaluer les caractéristiques et performances de la barrière géologique du site Meuse/Haute-Marne. Pour cela, aucune performance n'a été attribuée aux barrières ouvragées prévues autour des colis, et dont les fonctions sont d'une part de retarder l'arrivée de l'eau au contact des colis, puis, d'autre part, de retenir et retarder la migration des radio-nucléides éventuellement relâchés. Ce retard à la migration est assuré soit par la mise en place de matériaux naturels remaniés, et fortement adsorbants, des argiles de type bentonite, soit par la mise en place de béton assurant un environnement alcalin augmentant l'insolubilité de nombreux composés. Le terme source utilisé comporte :

- une fraction des radio-nucléides supposée labile, c'est à dire relâchée dès que l'eau atteint le combustible ; elle concerne notamment 15% de l'inventaire en Iode et 20% de ceux en niobium et en nickel.
- La solubilité des éléments est prise en compte dès l'étape de dissolution du combustible
- Le calcul est réalisé pour 21600tCI. Ce chiffre tient compte de la pratique actuelle de retraitement des combustibles irradiés et s'inscrit dans le cadre d'un calcul plus complet incluant les contributions des

verres de retraitement et des coques et embouts. Il correspond à la fraction du combustible qui n'aura pas subi de retraitement.

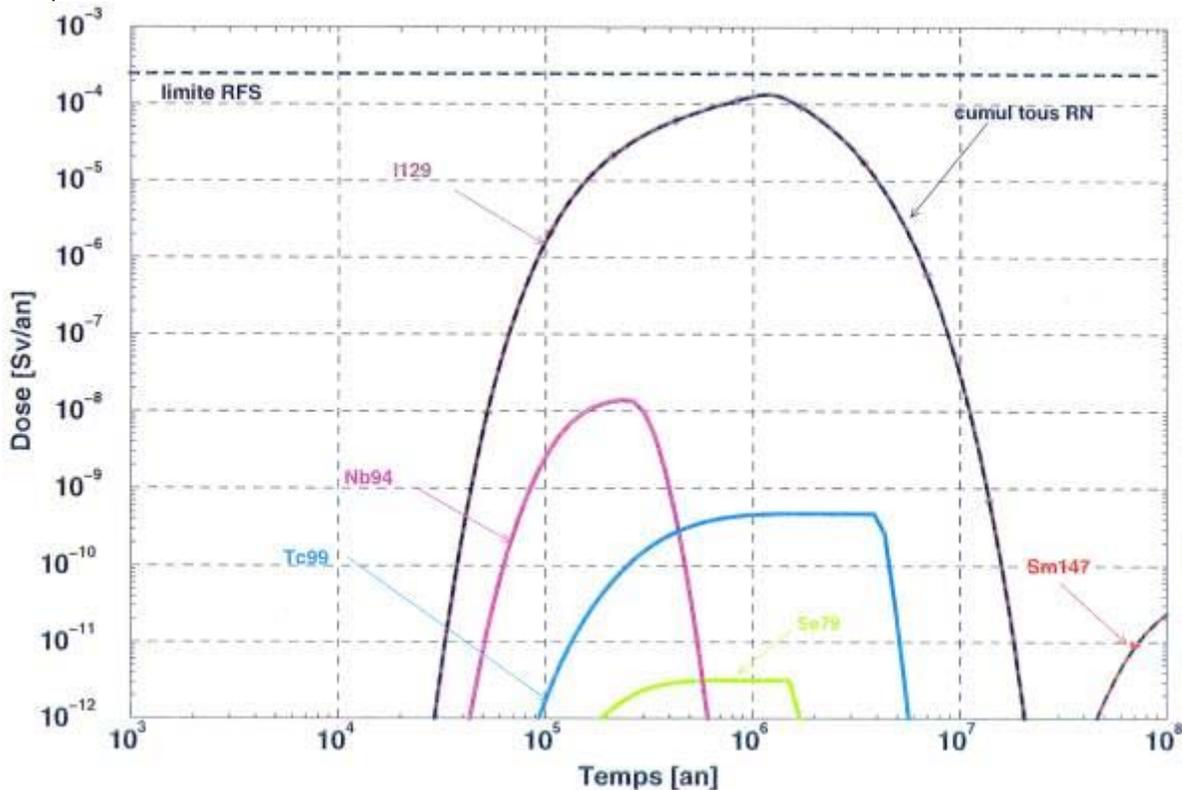


Figure 1

Doses à l'exutoire en fonction du temps et pour différents radio nucléides. La source est constituée de 21600 tonnes de combustibles irradiés non retraités. Dans le calcul, on suppose que le site de stockage est utilisé concurremment pour les verres, les déchets B et le combustible MOx irradié.

Le maximum de débit d'activité est donné par l'iode, avec un pic à 10^7 Bq/an à 2.10^6 ans. La dose est aussi dominée par l'iode. Son comportement étant piloté par la diffusion, l'apparition de l'iode à l'exutoire sera sensiblement proportionnelle au terme source, c'est à dire à l'inventaire stocké. Il s'ensuit que pour comparer les résultats au cas d'un stockage plus important il faut multiplier les débits d'activité par le facteur correspondant, au maximum d'environ 5, pour un stockage de 100000 tonnes de Cl.

Le niobium est limité à la fois par sa diffusion et par sa précipitation. Le technétium comme le sélénium sont limités par la précipitation de composés solides ; la dose qui leur est liée est donc peu sensible au terme source, mais plutôt proportionnelle à la surface d'entrée des radioéléments dans la couche d'argile. On constate que même pour un stockage de 100000 tonnes l'irradiation maximale de la population de référence reste faible.

Cas d'une intrusion accidentelle

Alors que, dans le cas d'un fonctionnement normal, on voit, de ce qui précède, que le stockage profond des déchets nucléaires ne semble devoir poser à aucun moment du futur de problème de santé publique significatif, on doit, bien entendu, étudier les conséquences de scénarios accidentels. A titre d'exemple, nous considérons le cas d'un forage à travers le stockage. On suppose que le forage se situe au-delà de 500 ans, après une période durant laquelle la mémoire et la surveillance sont assurées. Dans ces conditions un forage présenterait deux types de dangers :

1. Remontée d'éléments radioactifs avec les carottes de forage, ces éléments ne devant pas, en principe passer dans la chaîne alimentaire, mais pouvant être causes d'irradiation externe.
2. Utilisation du forage pour obtenir de l'eau potable avec possibilité de contamination de l'eau de boisson lors de la remontée à travers le stockage.

Carottes de forage

Dans le cas du forage le premier effet à envisager serait alors l'irradiation au contact des opérateurs ramenant les échantillons de « déchets ». On peut aussi dessiner des scénarios stylisés destinés à cadrer des effets sur un groupe plus important de la population. L'ingestion directe des carottes est, évidemment, impossible à envisager. Une ingestion indirecte par contamination des eaux, par exemple, pourrait être imaginée. Il faudrait alors que l'eau de consommation lessive la carotte. Un tel scénario paraît difficilement envisageable, d'autant plus que la probabilité d'un forage rencontrant précisément un élément de combustible est faible. En revanche, le risque d'irradiation externe doit être apprécié notamment pour les opérateurs ; les analyses de sûreté doivent intégrer un ensemble d'hypothèses relative à la société, et en particulier le fait que l'occurrence d'un tel scénario suppose la disponibilité de technologies et de connaissances équivalentes à celles d'aujourd'hui (forages profonds). L'observation d'un objet atypique devrait alors déclencher les mesures, dont les résultats conduiraient naturellement à confiner le risque aux seuls intervenants sur le forage dans lequel le carottage est réalisé.

Utilisation du puits pour soutirer de l'eau potable.

On veut étudier le cas d'un stockage situé dans une couche d'argile dans lequel on fore un puits. Pour fixer les idées nous supposons que le puits débite 10 m^3 par jour et donc que $\alpha=4 \cdot 10^{-4}$. Notons que là aussi le scénario est original puisqu'il consiste à chercher de l'eau là où il n'y en a pas. L'intérêt de l'approche réside dans le fait de définir une enveloppe de la sûreté du projet.

La conception même des stockages est modulaire ; chaque module comprend un certain nombre de cavités (ou alvéoles) à l'intérieur desquelles sont disposés un nombre limité de colis de déchets. Par conception également, on cherche à ne prévoir que des ouvrages indépendants entre eux, en particulier du point de vue hydraulique ; ceci est assuré par l'espacement entre les modules. Le pompage à partir d'un forage réalisé soit directement à travers une galerie de manutention desservant plusieurs alvéoles, soit à travers le milieu géologique au voisinage immédiat d'une alvéole, permettrait de solliciter hydrauliquement la zone environnante, c'est à dire une fraction du stockage. Le cas le plus pénalisant correspondrait au forage à travers la galerie de manutention, dont la zone d'influence concerne un module équivalent à 2000 tonnes de CI. Le calcul a été réalisé cette fois-ci en prenant en compte une barrière ouvragée, l'objectif étant d'évaluer sa performance. Le transfert des radionucléides est supposé ici se réaliser à travers le bouchon d'argile placé à la fermeture des alvéoles. Comme précédemment, nous donnons un traitement schématique pour deux cas particulièrement représentatifs et le résultat du calcul complet pour un ensemble de radioéléments.

Principe du calcul

Les combustibles sont entourés d'une barrière ouvragée de 0.6 mètre d'épaisseur. Chaque module comporte environ 12 éléments combustibles, et un ouvrage comporte 4 modules. Chaque élément pèse 0.5 tonne. Le poids total de combustible accessible par ouvrage vaut donc 24 tonnes. Chaque ouvrage est fermé par un bouchon de 2m. d'épaisseur. Les galeries donnent accès à environ 80 ouvrages, soit environ 2000 tonnes par galerie. On suppose un forage à travers la galerie, ce qui correspond au cas le plus pénalisant. L'épaisseur d'argile vaut donc 2.6 mètres.

Parmi les éléments lourds le Radium se caractérise par un faible retard de diffusion, comme on peut le voir sur le tableau 1. Le retard à la diffusion à travers les bouchons vaut 4200 ans. La période radioactive du ^{226}Ra , égale à 1600 ans est du même ordre de grandeur que ce retard, ce qui laisse prévoir qu'une part importante du Radium pourra se trouver dans l'eau extraite du puits. Le cas est, ici, très différent de celui du fonctionnement normal du site. Le Radium 226 est un produit de la désintégration de l'Uranium 238 qui représente l'essentiel du poids des Combustibles irradiés, dans le cas considéré, 2000 tonnes. A l'équilibre radioactif, le poids du Radium 226 est donc dans le rapport des périodes avec celui du ^{238}U , soit 700 grammes.

L'impact calculé est notablement plus important que dans le cas du scénario d'évolution normale présenté

auparavant. Il reste, toutefois, raisonnable dans la mesure où il est de l'ordre de la radioactivité naturelle. Il est largement dominé par l'iode et le radium. En ce qui concerne ce dernier il est intéressant de remarquer qu'il aurait été de toute façon produit et relâché puisqu'il est d'origine naturelle, étant descendant de l'Uranium 238. Le problème éventuellement posé aurait pour origine la concentration de l'Uranium en un site unique apparaissant ainsi comme un filon minier particulièrement abondant et concentré. L'utilisation de l'Uranium 238 dans des réacteurs surrégénérateurs supprimerait la nécessité de le stocker en site géologique.

Aussi bien pour l'Uranium 238 que pour l'iode il est clair que le confinement ne peut être assuré : en ce qui concerne l'Uranium 238 du fait de sa très grande durée de vie, en ce qui concerne l'iode, du fait de sa grande mobilité. Dans les deux cas la question peut se poser de savoir s'il ne serait pas préférable de les diluer le plus possible dans l'environnement (en particulier dans l'océan) plutôt que de les concentrer en un site particulier.

Ceci nous ramène à la question évoquée d'entrée : concentration et stockage ou dilution. La concentration envisagée ici pour un site de stockage a des conséquences faibles en l'absence d'intrusion. Une telle intrusion pourrait être motivée par la présence d'un filon de matière fertile bien plus concentrée que celle des minerais naturels et nous ne pouvons pas anticiper sur les choix énergétiques futurs et donc sur l'intérêt qu'il pourrait présenter. Du point de vue de la sécurité, un débat sur stockage ou dilution mériterait donc d'être lancé et argumenté de manière scientifique.

Production de chaleur et dimensionnement du site

De ce qui précède on voit que la source principale d'irradiation des populations dans un futur lointain proviendrait de l'iode 129 et de l'Uranium 238. Les contributions des autres actinides seraient très faibles, à l'exception éventuelle du Neptunium 237. On peut alors se poser la question de l'intérêt qu'aurait, du point de vue du stockage en site profond, l'incinération des actinides, y compris le Plutonium. En fait l'intérêt potentiel de l'incinération des actinides provient des contraintes liées au dégagement de chaleur des colis. Un ordre de grandeur de ces contraintes peut être obtenu à partir d'un calcul simple de l'écoulement de chaleur dans la couche confinante.

Détermination schématique de la distribution de température dans la couche

On considère une source de chaleur mono-dimensionnelle caractérisée par une densité de production de chaleur $w(x)$. Le distribution de la température est donnée par l'équation de la chaleur :

équation 13

$$w(x) + a \frac{d^2 T(x)}{dx^2} = 0$$

Considérons la situation simplifiée où la source de chaleur est en $x=0$ et a donc la forme $w(x) = w_0 \delta(x)$, où $\delta(x)$ est la fonction de Dirac. Il s'ensuit que

équation 14

$$\frac{d^2 T(x)}{dx^2} = -\frac{w_0}{a} \delta(x)$$

d'où la dérivée de la fonction température :

équation 15

$$\frac{dT(x)}{dx} = -\frac{w_0}{a} H(x) + cste$$

où $H(x)$ est la fonction échelon de Heaviside. Une discontinuité est observée à $x=0$.

Considérons une épaisseur de la couche de confinement $L = L_B + L_H$, où $L_{B,H}$ sont les distances entre le site de stockage et la limite basse (haute) de la couche. La température décroît de sa valeur maximum T_D au niveau du stockage une valeur imposée T_0 en sortie de couche, où l'évacuation de chaleur par le réseau aquatique souterrain devient très efficace. On obtient alors :

équation 16

$$T_D = T_0 + \frac{w_0}{a} \frac{L_B L_H}{(L_B + L_H)}$$

D'après l'équation 16 on voit que T_D est maximum dans la configuration symétrique $L_B = L_H$, qui est donc défavorable de ce point de vue. Au contraire, la dépendance quadratique du temps de diffusion par rapport à la distance entre le dépôt et la sortie de couche favorise la configuration symétrique. Un compromis entre les deux exigences de maximisation des temps de diffusion et une minimisation de la température du dépôt devra donc être trouvée.

Si la différence entre la température de stockage et celle de la sortie de couche est une des contraintes du site, et de doit pas excéder une limite $\Delta T_{lim} = T_{lim} - T_0$ on voit que la densité de production de chaleur doit être proportionnelle à cette limite, et donc que la surface du stockage (et son coût) y est inversement proportionnelle.

Exemples

L'argile du site de Bures a une conductivité thermique de $1.67 \text{ W/m}^2/\text{s}$. dans la direction verticale. L'équation 16 se réfère au flux total de chaleur issu de la source alors que, généralement, on se réfère au flux directionnel vers le haut ou le bas, $w_1 = 0.5w_0$. Il s'ensuit que dans le cas du site de Bures et en prenant $L_B = L_H = 50$ mètres, on obtient :

équation 17

$$T_D = T_0 + 30w_1$$

Des valeurs typiques⁴ de w_1 varient d'une fraction de W/m^2 à 10 W/m^2 . Dans le dernier cas des températures dépassant 300°C peuvent être atteintes. Dans ces conditions l'eau contenue dans l'argile s'évapore. Ceci est favorable du point de vue de la diffusion des radioéléments aussi bien qu'en ce qui concerne les risques d'intrusion. Toutefois de telles températures ne seront présentes que pendant quelques centaines d'années alors qu'on ignore, actuellement, quels types de modifications structurelles l'argile aurait subies.

Temps écoulé depuis le déchargement	Combustible irradié UOx (PWR) W/tonne	Verres de retraitement
100	417	155
300	183	29
1000	74	10

Tableau 3

Quantité de chaleur massique produite par des combustibles UOx de REP sans et avec retraitement. Une irradiation de 45GWjour/tonne est supposée.

Le Tableau 3 compare les quantités de chaleur produite par des combustibles irradiés UOx sans retraitement à celle produite par les verres de retraitement. Selon le Tableau et en choisissant une température limite de 100°C il est possible de calculer la surface minimum du site de stockage pour 100000 tonnes de combustible irradié. On la calcule pour un temps écoulé de 100 ans après déchargement des combustibles. On trouve une surface de 10 km^2 dans le cas des combustibles non retraités et d'environ un tiers de cette valeur pour les verres de retraitement.

Prise en compte de l'aléa géologique

Les calculs réalisés à ce jour s'appuient sur les connaissances disponibles pour le site de l'Est de la France. Celles relatives au milieu géologique ont été acquises dans un premier temps à partir des études documentaires, puis entre 1994 et 1996 grâce à la mise en œuvre d'un ensemble de méthodes peu ou pas intrusives :

- Parmi les premières, les forages ont permis de mesurer les caractéristiques de la formation géologique à l'échelle très locale ; les échantillons prélevés ont servi à l'ensemble des mesures et caractérisations de type géologique, géomécanique ou géochimiques ;
- Les méthodes non intrusives sont celles de la géophysique, et en particulier la géophysique 3D réalisée sur l'emprise du laboratoire souterrain. Aucun accident tectonique n'a été détecté, confirmant ainsi les caractéristiques de stabilité sismo-tectonique du site, lesquelles constituaient un des critères de sa sélection.

Des évolutions d'origine externe sont aussi prises en compte, notamment avec les changements climatiques et leurs conséquences géomorphologiques et hydrogéologiques. Les études réalisées ne montrent pas d'influence significative sur les temps de transfert des radio-nucléides, même dans des conditions extrêmes. Les successions d'événements climatiques sont aussi prises en compte.

Pourquoi un laboratoire souterrain ?

Les travaux entrepris avec la création du laboratoire souterrain sont destinés d'une part à vérifier les caractéristiques de la formation du Callovo-Oxfordien à l'échelle des installations étudiées, et d'autre part à la soumettre à un ensemble de sollicitations destinées à vérifier sa robustesse.

Les programmes en cours de mise en place prévoient de compléter les caractérisations géologiques et hydrodynamiques du site. On cherchera en premier lieu à vérifier les conditions d'homogénéité et de continuité de la formation, avec l'absence de failles susceptibles de constituer des courts-circuits hydrauliques au sein de la formation du Callovo-Oxfordien. Ensuite, les régimes hydrogéologiques locaux, ainsi que leurs évolutions possibles font l'objet d'analyses fines à partir de réseaux de forages enregistrant les comportements des aquifères durant le déroulement des travaux, notamment en cours de forage des puits d'accès au laboratoire souterrain.

Des données de migration ont aussi été utilisées pour le calcul de sûreté ; elles concernent la diffusion et les coefficients de retard. Dans les deux cas, les mesures ont été réalisées à l'échelle d'échantillons centimétriques. Les déterminations in situ, ou à partir d'échantillons de plus grande taille sont nécessaires pour vérifier le caractère dimensionnant des valeurs retenues. Un autre point important est celui de l'accès à l'eau. La forme chimique des différentes espèces dépend de la chimie de l'eau, des processus de sa régulation en milieu naturel. Or une des difficultés est de déterminer de manière fiable les caractéristiques d'une eau qu'il est très difficile d'extraire à partir d'échantillons de petite taille. Le laboratoire souterrain permet l'accès direct et donc un certain nombre de dispositifs d'échantillonnage et de mesures destinés à mieux préciser cette chimie. Parmi les études en laboratoire souterrain, on n'omettra pas de citer celles de la géomécanique, d'abord pour s'assurer de la constructibilité d'ouvrage sûrs, mais aussi pour l'étude de zones endommagées aux parois des ouvrages et susceptibles de constituer des courts-circuits hydrauliques.

Des matériaux exogènes seraient aussi mis en place dans le stockage, dont les déchets eux-mêmes. Les différentes formes d'interactions qu'ils pourront engendrer doivent également être étudiées in situ, et en particulier les effets dus à leur dégagement thermique, ainsi que le vieillissement des matériaux. Le programme expérimental en préparation est destiné à l'étude des différents mécanismes en jeu et des comportements des différents composants et matériaux.

Parmi les points à étudier, on doit aussi considérer d'une part les approches de modélisation et de

simulation, avec des représentations en 3D, ainsi que les possibilités de faire évoluer les conceptions d'ouvrages.

On dispose ainsi d'un ensemble de moyens permettant de montrer la sûreté d'installations de stockage ; ils demandent un effort de recherche important autour duquel de nombreuses équipes sont mobilisées.

Conclusion

La voie principale de remontée des radioéléments stockés dans un site géologique profond passe par la dissolution et le transport dans l'eau. La qualité du site dépend donc :

- de la faible mobilité de l'eau en son sein
- de l'épaisseur et de la qualité de la couche de confinement
- des limites de la solubilité des radioéléments dans l'eau présente dans le milieu. En général cette solubilité dépend du pH et des mécanismes de régulation de la chimie de l'eau du milieu
- des propriétés de sorption des radioéléments par le milieu, ces propriétés dépendant, également, du pH et des mécanismes de régulation de la chimie de l'eau de celui-ci

Différentes formations géologiques paraissent avoir des propriétés satisfaisantes pour la réalisation de sites de stockage. Les plus populaires sont l'argile, comme discuté ici, le granit et le sel. Des valeurs représentatives des mobilités de l'eau dans ces trois milieux sont données sur le Tableau 4.

	argile	granit	sel
D m ² /an	0.0016	0.0001	4

Tableau 4

Valeurs typiques des mobilités de l'eau dans trois milieux géologiques

- On voit sur le tableau que la mobilité de l'eau dans le granit est particulièrement faible. Le granit est toutefois rarement exempt de failles par lesquelles l'eau peut s'infiltrer. Il importe donc de rechercher des structures offrant des dimensions caractéristiques suffisantes pour atteindre un niveau de performance satisfaisant. On le voit sur le tableau 4, ces dimensions caractéristiques sont dans un rapport de 16 par rapport à l'argile, ce qui laisse place à de nombreuses possibilités. Les travaux de génie civil, les contraintes thermiques dues au dégagement de chaleur par les déchets et les séismes éventuels peuvent avoir des conséquences qu'il est nécessaire d'évaluer.
- Malgré son grand coefficient de diffusion le sel est souvent considéré comme un milieu particulièrement prometteur. En effet, un gisement de sel ne peut exister durablement qu'en absence d'eau, ce qui donne un intérêt académique à la valeur de la constante de diffusion. La diffusion des radioéléments dans le sel anhydre est donc extrêmement lente. De plus le sel flue facilement et devrait donc combler assez rapidement les ouvrages du site. Toutefois le sel possède et possèdera sans doute toujours une valeur économique. Une exploitation du site après que la mémoire en ait été perdue reste donc possible. Dans ce cas l'eau injectée dans le gisement pour récupérer le sel se chargerait d'autant plus vite en radioéléments que la constante de diffusion est grande. A long terme, enfin, on ne peut pas exclure que de l'eau envahisse le site de stockage.
- En définitive l'argile semble offrir d'excellentes capacités combinant les qualités du sel et celles du granit : faible constante de diffusion malgré la saturation en eau, propriétés de fluage suffisantes pour « effacer » les défauts, bonne sorption d'un grand nombre d'éléments.

Dans le cas de fonctionnement normal d'un site de stockage géologique représentatif, les risques encourus par la population la plus exposée demeurent extrêmement faibles à tout moment du futur. L'essentiel du confinement est assuré par la formation géologique. Sa grande mobilité, sa solubilité et sa période de plusieurs millions d'années font de l'Iode 129 l'origine principale de l'irradiation des populations critiques. Pratiquement la majeure partie de cet Iode devrait se retrouver dans la biosphère dans quelques centaines de milliers d'années. Au contraire les transuraniens ont très peu de chance de contaminer la biosphère.

Les considérations faites dans cet article reposent sur des mesures assez limitées des propriétés de diffusion de l'argile. Un travail important de validation, d'influence de la température et des contraintes mécaniques aussi bien que d'exploration du site et de description précise de la couche d'argile reste nécessaire. Toutefois il semble possible de considérer que le stockage des déchets nucléaires est une

option réaliste et réalisable qui ne devrait pas présenter de dangers majeurs pour les générations futures.

Remerciements : les auteurs remercient G.Pépin et E.Tevissen, de l'Andra, pour la fourniture des documents de base ayant servi à cette présentation et pour leurs précieuses indications sur les phénomènes considérés et C.Le Brun de l'ISN pour sa relecture attentive du manuscrit

¹ Les Déchets Nucléaires. Un dossier scientifique. Ed. R.Turley. EDP Sciences

² G.Ouzounian, « Déchets radioactifs à haute activité et à vie longue: les recherches en laboratoire souterrain. », Bulletin de la SFP(120) juillet 1999.

³ G.Charpak et R.L.Garwin, Europhysicsnews 33/1 p.14

⁴ R.Dautray