

Introduction : Les **déchets** nucléaires de Haute Activité à Vie Longue (**HAVL**) représentent **10%** des déchets globaux et **94,9%** de la radioactivité. Issus du cycle du combustible, ils sont destinés à être **stabilisés chimiquement dans une matrice en verre borosilicaté**. Ils sont ensuite conditionnés dans des fûts en acier qui seront stockés en couche géologique profonde par le biais du projet CIGEO (Centre Industriel de Stockage géologique) pour une durée de **plusieurs centaines de milliers d'années**. Le verre nucléaire est la **première barrière de confinement** des radionucléides. Ce type de verre a été développé afin de conserver ses propriétés physico-chimiques sur de très grandes périodes de stockage et de résister aux agressions internes et externes liées principalement à l'eau et à l'auto-radiation du colis.

QUELLES SONT LES INCIDENCES DE L'AUTO-RADIATION DES PARTICULES ALPHA SUR LE VERRE NUCLEAIRE ?

I. La composition du verre nucléaire : Le verre est un matériau **amorphe** caractérisé par son désordre structural (**figure 2**). Sa formulation se fait sous très haute température (> **1000 °C**) par **l'ajout de radionucléides** formant des matrices suite à la réorganisation des liaisons de structure. Le colis **HAVL** est composé de **80 % d'adjuvants** (Si_2O , B_2O_3 et Al_2O_3). Le silicium, l'aluminium et le bore jouent le rôle de **formateurs de liaisons**, permettant de polymériser le réseau vitreux par leurs liaisons fortes. Les alcalins et alcalino-terreux (Mg et Na) sont les **éléments modificateurs** qui dépolymérisent le réseau vitreux, et modifient la réactivité du verre fondu en la diminuant afin d'obtenir un taux d'incorporation supérieur à **18,5 %** pour certains déchets **HAVL** [1].

II. Le phénomène d'auto-radiation : Une fois la vitrification effectuée, on obtient un colis de **490 kg** avec une irradiation totale de **400 Gy/h** (**figure 1**).

Les émissions **bêta et gamma** sont majoritaires lors de la formulation et deviennent négligeables après **1000 ans**. Elles induisent une ionisation locale, engendrant une réorganisation matricielle par affinité de liaison. Pour la **particule alpha**, la propulsion du noyau fils issu de la désintégration va entraîner des percussions contre les noyaux formateurs, créant une perturbation de la structure interne au cours du temps. Ces désintégrations alpha proviennent essentiellement des **actinides mineurs** et de leurs descendants (**^{244}Cm , ^{241}Am , et ^{237}Np**) [3].

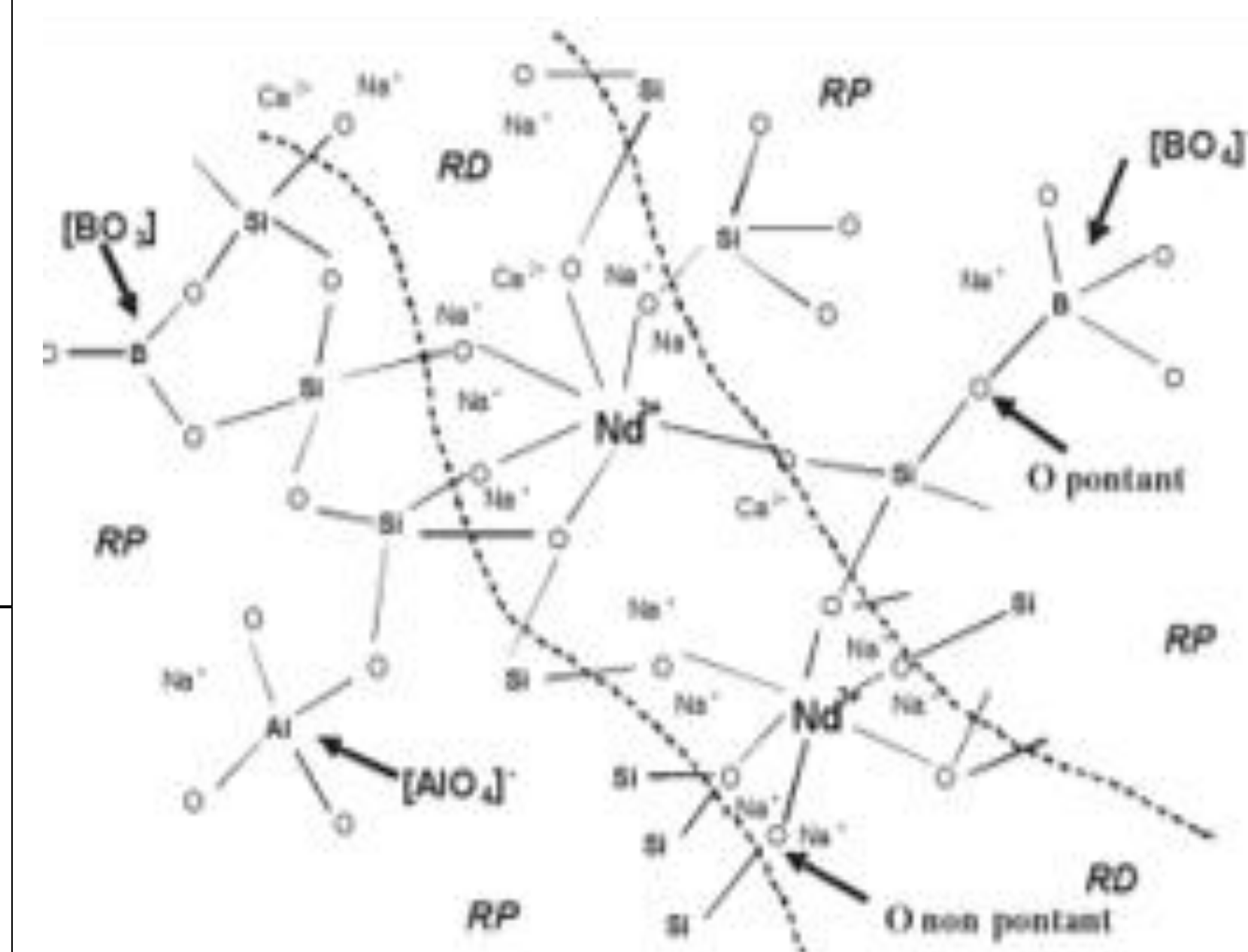


Figure 2 : Représentation schématique plane du réseau vitreux simplifié riche en oxydes de terres rares possédant le même comportement avec le verre - CEA [4].

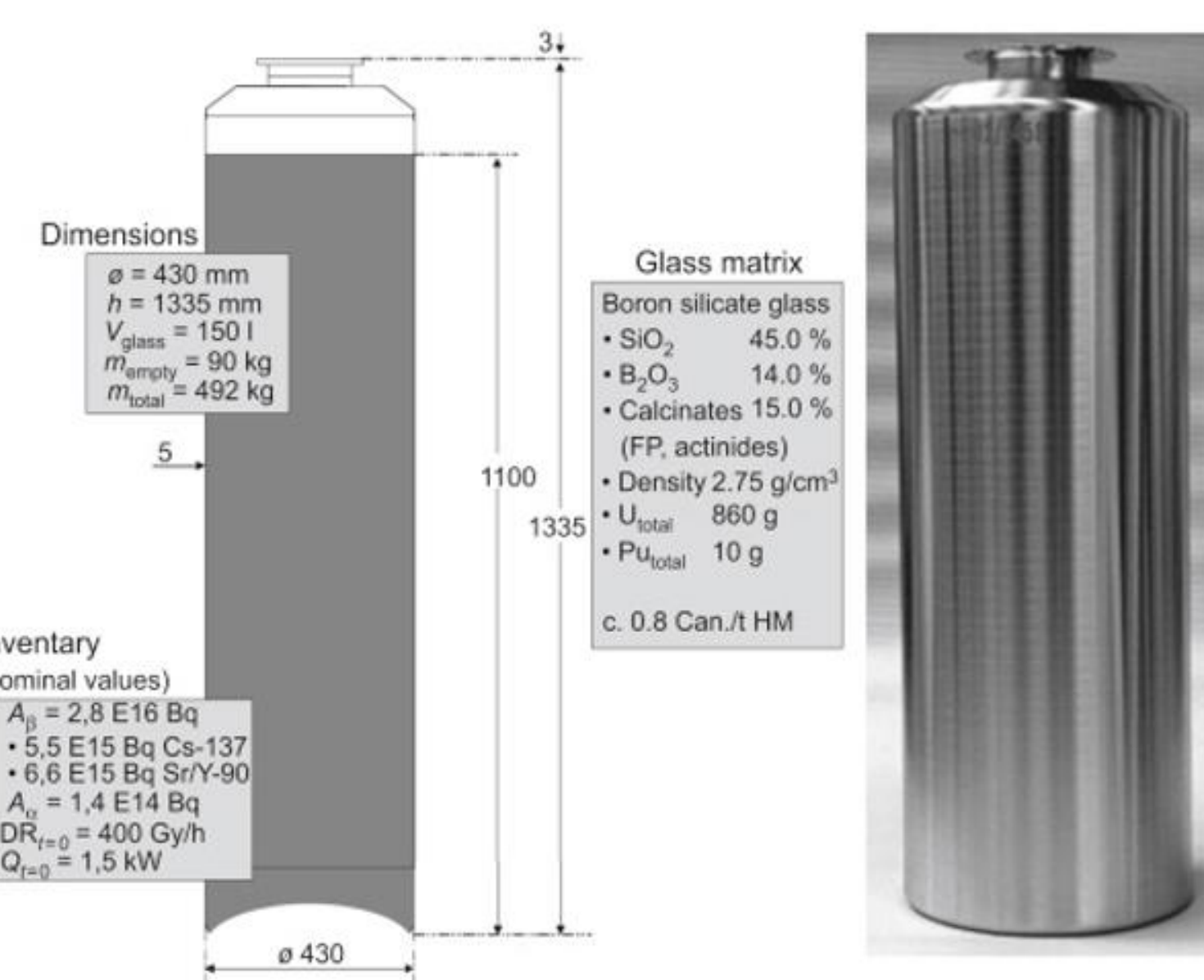


Figure 1 : Représentation d'un colis vitrifié - Safe and Secure Transport and Storage of Radioactive Materials [2].

III. L'altération du verre par auto-radiation :

Les modifications représentées dans la **figure 3** sont causées par les particules alpha issues des pertes d'énergie liées au processus électronique et nucléaire. Ces pertes **minimisent, retardent, voire guérissent** les effets des **chocs balistiques**. On retrouve ce phénomène durant la phase de relaxation. Il y a une **reconstruction importante de la structure vitreuse** par l'intermédiaire des éléments mobiles du verre (**Na**), donnant une souplesse de réorganisation qui limite l'accumulation des contraintes et permet au verre de se reformer. Le **sodium (Na)** améliore ainsi les propriétés de résistance vis-à-vis des futures projections balistiques des noyaux fils issus de la désintégration Alpha, par la formation de liaisons chimiques plus stables.

Cependant, en moyenne une **légère dépolymérisation de la structure apparaît**, induisant un léger gonflement du verre [4].

IV. Le futur verre de confinement, la vitrocéramique :

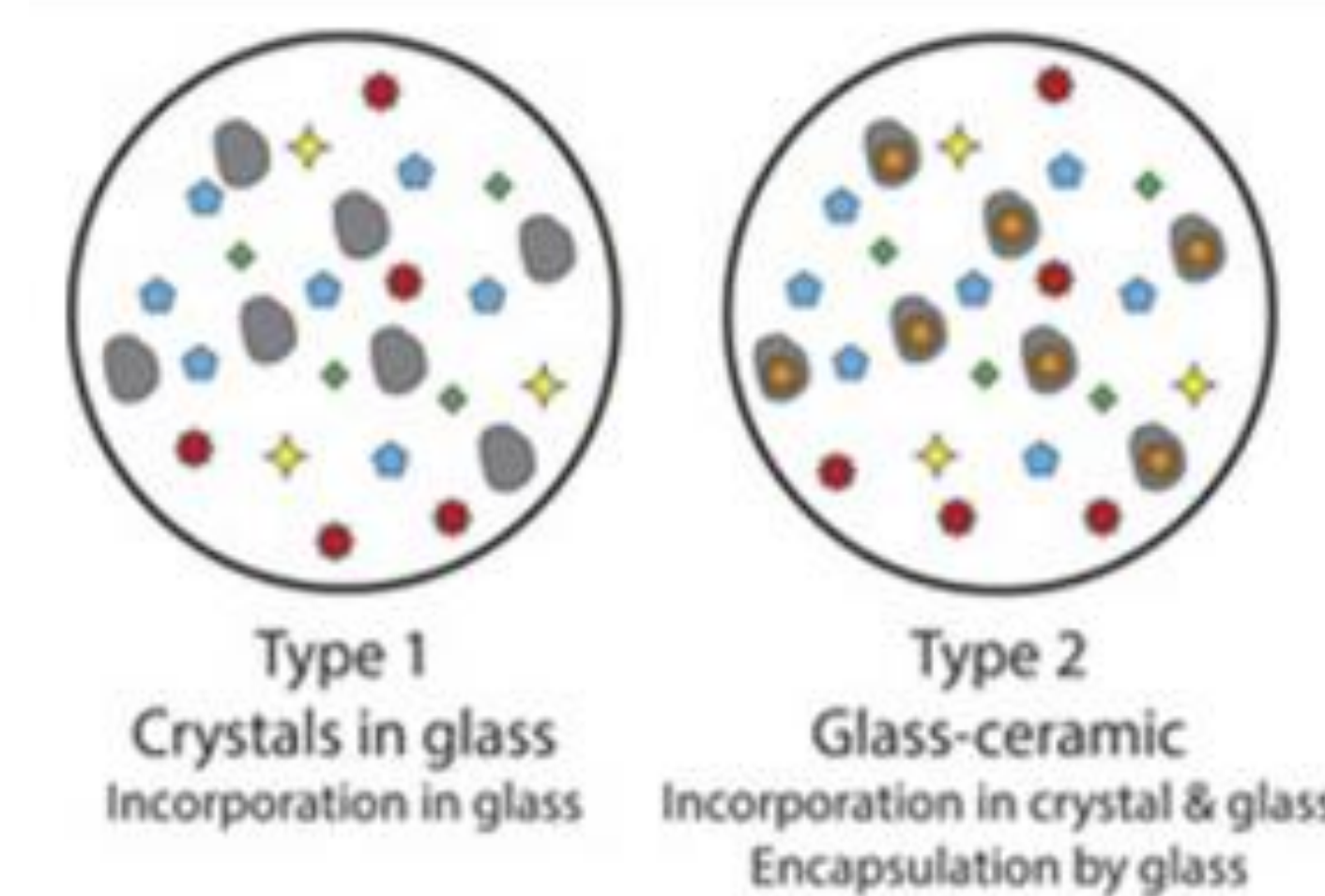


Figure 6 : Incorporation des radionucléides peu solubles dans des matrices cristallines (vitrocéramique) - [7].

Les vitrocéramiques sont des matériaux constitués de **cristaux** qui sont dispersés dans la matrice vitreuse par cristallisation partielle et contrôlée.

Cette méthode de cristallisation permet d'augmenter le taux de charge des déchets dans le verre **de 18,5 % à plus de 35 %**, et d'obtenir une meilleure solubilité des actinides absorbés sous forme cristalline [7].

Deux procédés de production de vitrocéramiques sont à l'étude :

- Le premier est réalisé par traitement thermique d'un verre parent sous 3 phases distinctes :

1. Nucléation (formation de cristaux dans le verre),
2. Croissance (accroissement des cristaux formés durant la phase de nucléation),
3. Refroidissement contrôlé.

- Le deuxième est obtenu par **Frittage**, technique qui consiste à traiter thermiquement un dispositif constitué de particules individuelles sous forte pression, de sorte qu'au moins certaines des propriétés du dispositif (sinon toutes) soient modifiées dans le sens d'une réduction de l'énergie libre globale du dispositif [8]. Obtenant ainsi, une augmentation de la densité et une forte diminution de la porosité du verre formulé.

A. L'auto-radiation alpha :

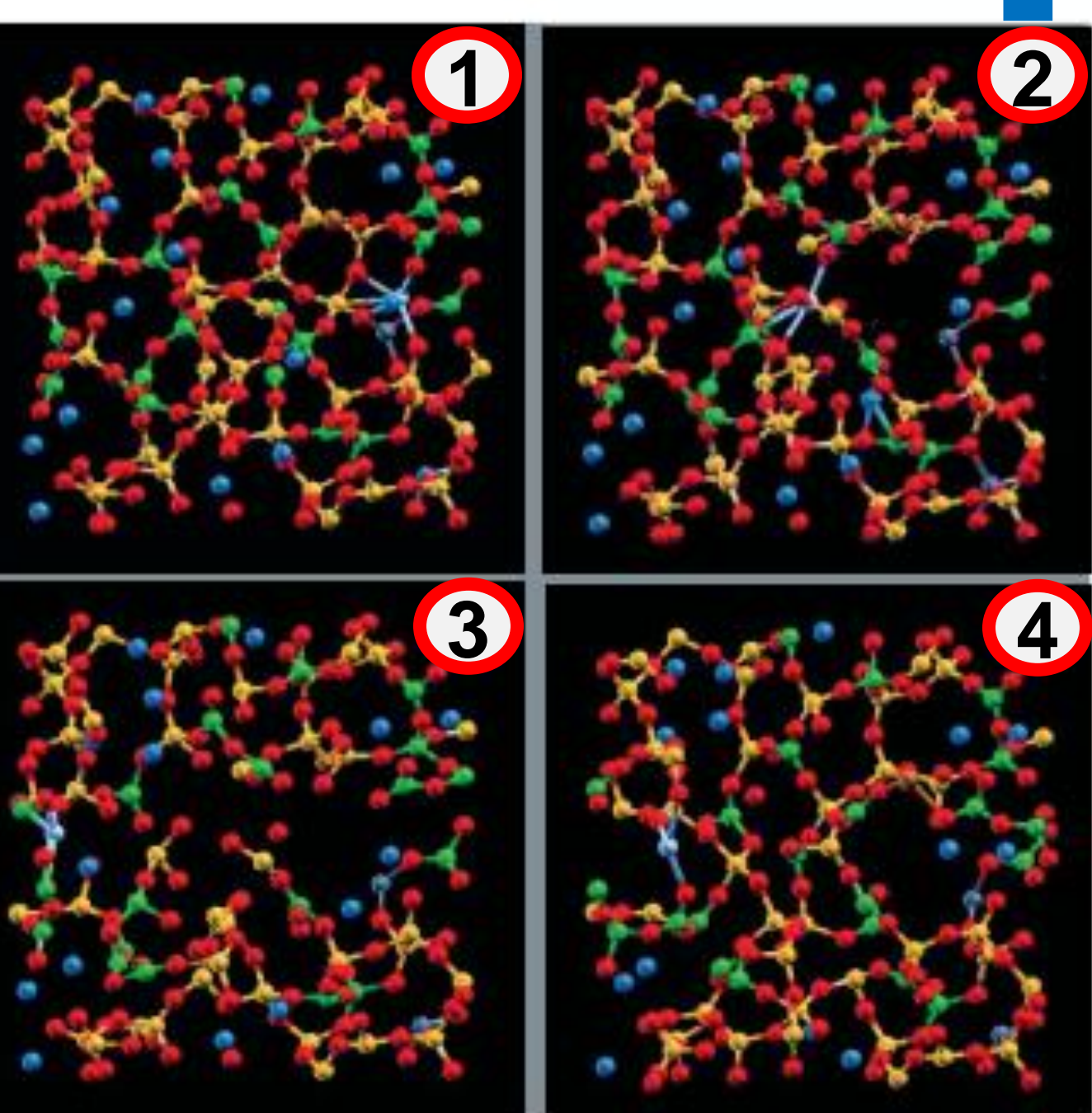


Figure 3 : Cascade de déplacements induit par la désintégration alpha : quatre vues successives.

1. Verre initial contenant l'atome d'uranium en bleu.
2. Début de la phase balistique induite par le projectile d'uranium.
3. Fin de la phase balistique correspondant au maximum de liaisons rompues.
4. Reconstruction de la structure du verre après la phase balistique - CEA [4].

A partir de la **figure 4**, on observe une décroissance rapide de la densité, où cette dernière se stabilise autour d'un seuil de saturation. Les propriétés macroscopiques du verre (gonflement, dureté, module élastique) se stabilisent à partir de doses intégrées variant de **2 à 3.10^{18} α/g**. La **modification structurale a pour effet d'améliorer la résistance à la fracturation qui augmente en fonction de la dose déposée**. On constate ainsi une amélioration globale des propriétés mécaniques des verres après radiation [5].

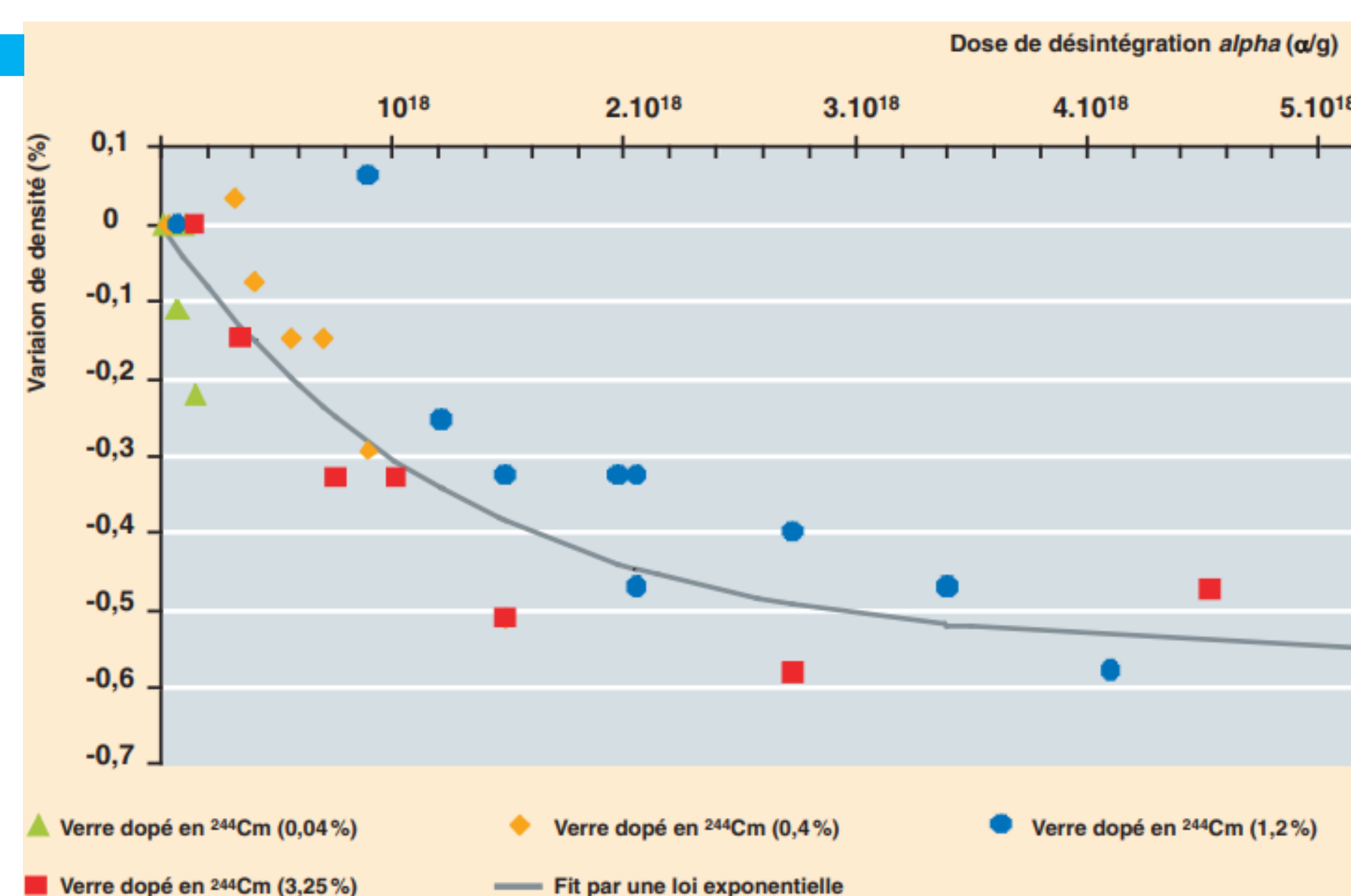


Figure 4 : Évolution de la densité des verres dopés en curium avec la dose de désintégrations α - CEA [4].

B. Dégazement He :

Lors de l'émission d'une **particule alpha**, de l'hélium gazeux est libéré (**figure 5**). Ce gaz ainsi formé restera **bloqué** dans le colis sous forme de bulles, ou se dispersera dans l'atmosphère par **diffusion** à travers de **microfissures** faisant office de pores.

Sur le long terme, le colis sera sujet à un **léger gonflement** avec apparition de microfissures. Cependant, les propriétés de confinement du verre ne seront **pas impactées** de façon significative [6].

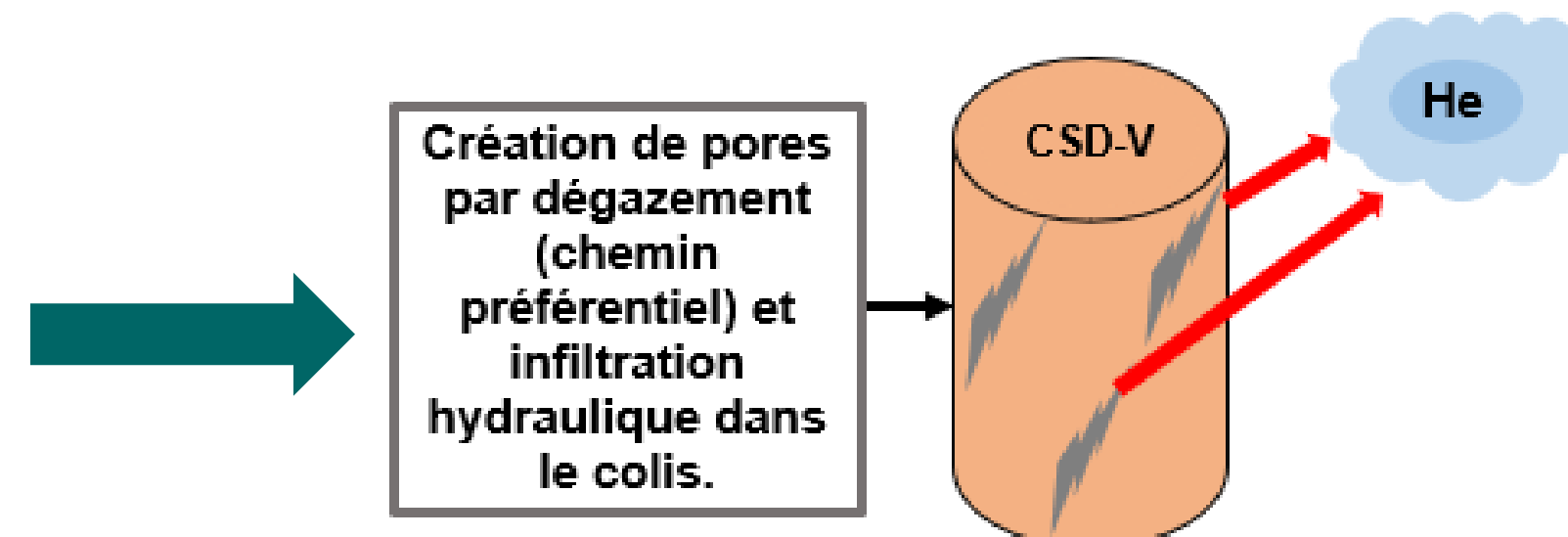


Figure 5 : Représentation du dégazement gazeux issu de l'émission des particules alpha.

Conclusion : L'auto-radiation du verre nucléaire dans les conditions expérimentales, **représente un degré d'altération compris entre 1 à 2 %**. On note également **l'augmentation de la porosité** du verre par un phénomène de gonflement interne, créant des vides allant du micromètre au nanomètre. L'évolution de la porosité globale du colis au cours du temps peut accentuer la cinétique de **corrosion liée à l'eau**, mettant en solution les radioéléments initialement piégés dans la matrice du verre.

Les expérimentations réalisées montrent que l'intégrité des colis sous irradiation ou dopage, ne prennent pas en compte le facteur de vieillissement du verre ou des défauts de formulation lors des processus de vitrification. Cependant, afin de minimiser les défauts du processus, **de nouvelles technologies** voient le jour afin **d'optimiser le taux de charge** du verre (**facteur économique**), et **la résistance des verres** aux agressions internes et externes subies pendant la longue période de stockage (**facteur de sûreté**).

Bibliographie :

- [1] Tréguët, H. Structure et cristallisation de verres d'oxydes simples riches en bore et en terres rares. phdthesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2016. <https://doi.org/10/document>.
- [2] Sorenson, K. Safe and Secure Transport and Storage of Radioactive Materials; Woodhead Publishing, 2015.
- [3] Mir, A.-H. Radiation Effects on Oxide Glasses : Importance of Energy Deposition and Relaxation Processes ; France, 2015; p 233.
- [4] Le conditionnement des déchets nucléaires ; Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, Ed. ; E-den ; CEA Ed. "Le Moniteur" : Gif-sur-Yvette Paris, 2008.
- [5] Karakurt, G. Effets de l'irradiation alpha sur les propriétés physico-chimique de verres silicatés : Etude des propriétés mécaniques, structurales et de la durabilité chimique.
- [6] Fares, T. Comportement de l'hélium Dans Les Verres Nucléaires Tpe R777. These de doctorat, Montpellier 2, 2011. <https://www.theses.fr/2011MON20174> (accessed 2022-12-13).
- [7] Chlique, C. Préparation et caractérisation de poudres et céramiques (oxy) sulfures pour applications en optique active et passive.
- [8] G. Cizeron, "Le frittage sous son aspect physico-chimique" paru dans : Extrait de l'industrie céramique -1968-1971-1972-1973.