

Le stockage des déchets nucléaires en site profond

H.Nifenecker

Institut des Sciences Nucléaires de Grenoble (IN2P3/UJF)

et

G.Ouzounian

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 20 ans de production électronucléaire ont eu lieu dans notre pays, 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 péremptaires 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 radionucléides contenus dans les déchets, et donc, largement plus grande que l'échelle historique. La transmutation-incinération est théoriquement possible comme on peut le voir dans le livre « Les déchets nucléaires »¹. Elle demande toutefois à être démontrée à un coût raisonnable. Il n'est pas évident qu'elle traite tous les radionucléides 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 donnerons, ensuite, un traitement analytique simple de la diffusion des radioéléments dans la couche géologique du site, puis de leur passage dans la chaîne alimentaire humaine. Nous obtiendrons ainsi des ordres de grandeur des échelles de temps mises en jeu et des doses auxquelles pourraient être soumises les populations les plus exposées. Nous considérerons aussi le cas d'un forage traversant la zone de stockage et estimerons les doses à attendre. Tous ces calculs font appel à des modèles diffusifs simples mais réalistes. Ils devraient permettre à tout physicien de se faire sa propre évaluation des sites étudiés, sous réserve d'en connaître quelques paramètres physiques simples. 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 une 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 figure 1 représente une coupe schématique du site. La couche d'argile est très peu perméable et représente la principale barrière de rétention des radioéléments de très longue durée de vie.

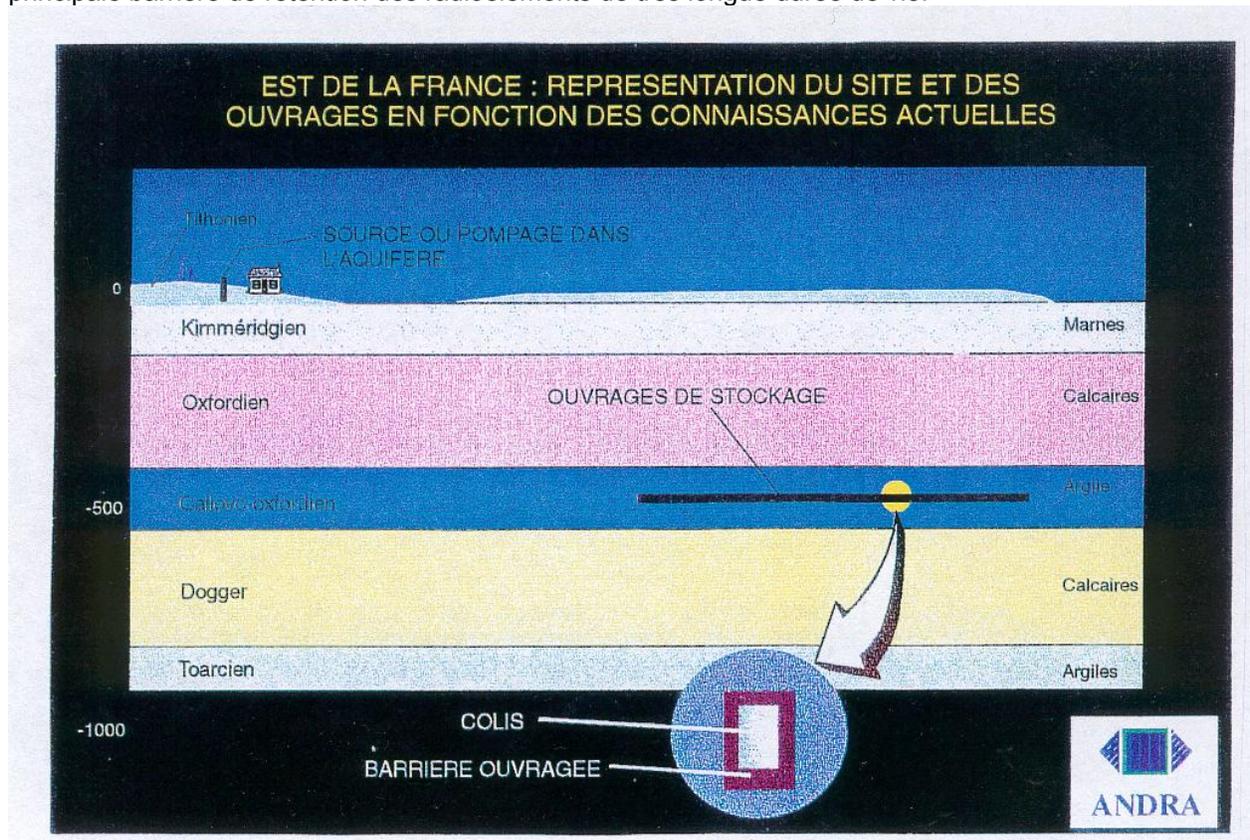


Figure 1

Vue schématique du site du laboratoire de stockage de l'Est de la France.

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 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 an. Avant de présenter les résultats de calculs réalistes plus complets faits à l'ANDRA, il nous semble utile de donner un traitement schématique qui situe l'importance des paramètres à prendre en compte et qui révèle les lois d'échelle pertinentes.

Traitement schématique de la diffusion des radioéléments

Les approches réalistes détaillées plus loin, montrent que le confinement est surtout assuré par la couche d'argile et, parfois, par la durée du processus de relâchement des radioéléments par les colis de déchets. Dans la couche d'argile les mécanismes de transport sont essentiellement diffusifs. Dans une première approche nous simplifions le calcul en négligeant la période précédant le relâchement des radioéléments. De même nous supposons que les radioéléments sortant de la couche d'argile sont immédiatement disponibles pour la consommation. Nous faisons ainsi un calcul pessimiste.

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 :
 - 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 : $-v \rho_d(x,t)$ où v est une vitesse de transport
- 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 : $\frac{v}{2}(\rho_d(x-\Delta,t) + \rho_d(x+\Delta,t))$ où Δ est une longueur effective de transport.

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

équation 1

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

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

On posera $D_0 = v\Delta$, constante de diffusion caractéristique du transport de l'eau dans les capillaires. La densité totale de radioéléments $\rho(x,t) = \rho_d(x,t) + \rho_s(x,t)$, obéit à l'équation :

équation 2

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

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 3

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

d'où l'équation pour $\rho(x,t)$:

équation 4

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

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 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 5

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

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 considérée. Au contraire lorsque l'élément est soluble il est plus judicieux d'exprimer le courant en fonction de la densité totale du radioélément et le loi de Fick s'écrit alors

équation 6

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

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

La solution de l'équation 4, dans un milieu semi-infini défini par une interface à $x=L$, et pour N noyaux initiaux à $x=0$ et $t=0$ s'écrit

équation 7

$$\rho(x,t) = \frac{Ne^{-\lambda t}}{2\sqrt{\pi Dt}} \left[e^{-\frac{x^2}{4Dt}} - e^{-\frac{(x-2L)^2}{4Dt}} \right]$$

Dans le cas d'éléments solubles le courant est donné par l'équation 6 :

On remarque que, si D est une constante, $J(x,t)$ obéit, de même que $\rho(x,t)$, à l'équation 6.

A l'interface on obtient selon l'équation 6 :

ⁱ 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 3 à l'équation 1 sans précaution car le terme de sorption-désorption devient de l'ordre des autres termes. Le passage par l'équation 2 permet de surmonter cette difficulté.

équation 8

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

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

équation 9

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

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 10

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

tandis que la valeur maximale du flux est :

équation 11

$$J_{Max}(L, \tau_S) = 0.925 \frac{ND}{L^2} \approx \frac{N}{6\tau_S}$$

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. Pour un noyau radioactif le retard à la sortie est modifié et devient :

équation 12

$$\tau_R = \frac{L^2}{6D} + \frac{3}{4\lambda} \left(\sqrt{1 + \frac{4\lambda L^2}{9D}} - 1 - \frac{2\lambda L^2}{9D} \right)$$

Pour les très grandes durées de vie telles que $\lambda \ll \frac{9D}{4L^2}$ on obtient donc la limite déjà donnée τ_S , indépendante de λ . Pour les faibles valeurs de durée de vie $\lambda \gg \frac{9D}{4L^2}$ la limite devient $\tau_R = \frac{L}{2} \sqrt{\frac{1}{D\lambda}}$ qui varie comme la racine carrée de la période.

Le calcul précédent (équation 8) est fait en supposant un temps de confinement nul dans le combustible ou les barrières ouvragées. Il est facile de généraliser l'équation 8 au cas où les noyaux seraient relâchés progressivement avec un débit constant $\frac{N}{T}$ pendant un temps T . Le courant en sortie de couche s'écrit alors :

équation 13

$$J(L,t) = \frac{NL}{2T\sqrt{\pi D}} \int_0^t \left(H(u) - H(u-T) \right) \frac{1}{\sqrt{(t-u)}} \frac{e^{-\lambda(t-u)}}{(t-u)} e^{-\frac{L^2}{4D(t-u)}} du$$

où $H(u)$ est la fonction échelon de la variable u . Pour T suffisamment grand, la fonction $J(L,t)$ est une fonction rectangulaire à bords arrondis. Les temps de montée et de descente sont de l'ordre de $1.5 \tau_R$, tandis que quelques manipulations mathématiques montrent que le plateau de la fonction vaut :

équation 14

$$J_{\max}(L) = \frac{N}{T} e^{-\lambda L \sqrt{\frac{1}{\lambda D}}}$$

On voit que le courant est affaibli par décroissance sur une durée effective $\frac{L}{\sqrt{\lambda D}}$

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 15

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

avec la condition pour $x=0$:

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

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. Dans la mesure où le renouvellement de l'eau en sortie de couche est supposé rapide, on a, par ailleurs :

$$\rho_{\text{stat}}(L) = 0$$

La solution de l'équation 15 s'écrit alors :

$$\rho_{\text{stat}}(x) = C_{\max} \omega S \frac{e^{\sqrt{\frac{\lambda}{D}}(L-x)} - e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D}}(L-x)}}{e^{\sqrt{\frac{\lambda}{D}}L} - e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D}}L}}$$

et, selon l'équation 5, commode dans le cas des radioéléments dissous :

$$J_{\text{stat}}(x) = C_{\max} \omega S D_0 \sqrt{\frac{\lambda}{D}} \frac{e^{\sqrt{\frac{\lambda}{D}}(L-x)} + e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D}}(L-x)}}{e^{\sqrt{\frac{\lambda}{D}}L} - e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D}}L}}$$

Pour $x=0$ on obtient donc la valeur maximale du courant en sortie de source :

équation 16

$$J_{\max}(0) = C_{\max} \omega SD_0 \frac{\sqrt{\frac{\lambda}{D}}}{\tanh\left(\sqrt{\frac{\lambda}{D}}L\right)} = k_s C_{\max}$$

avec :

équation 17

$$k_s = \omega SD_0 \frac{\sqrt{\frac{\lambda}{D}}}{\tanh\left(\sqrt{\frac{\lambda}{D}}L\right)}$$

On pourra simplifier l'expression du courant d'entrée dans la couche ou la barrière ouvragée en lui donnant une valeur constante égale à J_{\max} pendant une durée $\frac{N}{J_{\max}}$. Le courant en sortie de couche est alors donné par une expression similaire à celle de l'équation 13, ou, plus simplement à l'équation 14 pour le courant maximum en sortie de couche :

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 18

$$E = \sum_i \frac{w_i}{m_i} \frac{Q \lambda \varepsilon \alpha f J_{\max} v}{\lambda_b}$$

Quelques exemples de détermination de doses

Nous supposons que l'épaisseur de la couche d'argile située au dessus du stockage est égale à 50m. 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.

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.

| Radionucléide | période ans | tonnes | activité Bq |
|---------------|-------------|------------|-------------|
| 79Se | 6,50E+04 | 0,51198511 | 1,31E+15 |
| 90Sr | 2,90E+01 | 48,8713056 | 2,47E+20 |
| 93Zr | 1,53E+06 | 72,1433558 | 6,68E+15 |
| 99Tc | 2,13E+05 | 82,383058 | 5,15E+16 |
| 126Sn | 1,00E+05 | 2,04794042 | 2,14E+15 |
| 129I | 1,57E+07 | 18,1521992 | 1,18E+14 |
| 135Cs | 2,30E+06 | 35,8389574 | 1,52E+15 |
| 137Cs | 3,00E+01 | 161,97347 | 5,20E+20 |
| 235U | 7,04E+08 | 1028,62462 | 8,20E+13 |
| 236U | 2,34E+07 | 409,588085 | 9,78E+14 |
| 238U | 4,47E+09 | 94037,7007 | 1,17E+15 |
| 237Np | 2,14E+06 | 40,9588085 | 1,06E+15 |
| 238Pu | 8,77E+01 | 15,3595532 | 9,70E+18 |
| 239Pu | 2,41E+04 | 572,957878 | 1,31E+18 |
| 240Pu | 6,54E+03 | 221,084478 | 1,86E+18 |
| 241Pu | 1,41E+01 | 118,222015 | 4,59E+20 |
| 242Pu | 3,76E+05 | 48,8713056 | 7,08E+15 |
| 241Am | 4,32E+02 | 20,4794042 | 2,59E+18 |
| 243Am | 7,38E+03 | 10,2397021 | 7,53E+16 |
| 244Cm | 1,81E+01 | 2,32720503 | 6,95E+18 |
| 245Cm | 8,53E+03 | 0,2792646 | 1,76E+15 |

Tableau 2

Masses et activités des principaux radionucléides présents dans 100000 tonnes de combustibles irradiés avec leurs périodes radioactives.

Le stockage est supposé, pour l'exercice, contenir 100000 tonnes de combustible irradié(CI). Une telle quantité correspond à environ 50 ans de fonctionnement du parc actuel de réacteurs, le stock présent de déchets se montant à un équivalent d'environ 20000 tonnes de CI. Le tableau 2 donne la composition de ce combustible.

Cas de l'iode

Considérons, tout d'abord, le cas de l'iode 129 dont la période est de 15 millions d'années. Les calculs réalistes présentés plus loin montrent, en effet, que ce radionucléide serait la principale source de contamination de la biosphère. Comme, selon le tableau 1, le coefficient de retard de l'iode est égal à un, la constante de diffusion vaut $D = 1.6.10^{-3} m^2 / an$. Avec cette valeur de D on trouve un retard à la sortie de la couche d'approximativement 260 000 ans, et une largeur de la distribution des temps de sortie de 390 000 ans.

Selon le tableau 2, la masse initiale d'iode 129 est de 18 tonnesⁱⁱ.

Le flux annuel d'activité du à l'iode et sortant de la couche est représenté sur la figure 2. Il est obtenu dans le cas où les noyaux sont relâchés instantanément(équation 8) (où pendant une durée de un million d'années (équation 13)). On constate que la longue durée du processus de dissolution du combustible n'a, ici, qu'une influence relativement faible.

ⁱⁱ Actuellement, dans le cas du retraitement, la plus grande partie de l'iode est rejetée à la mer, et seuls 4% maximum (valeur conservative)se retrouvent dans les coques et embouts(déchets de retraitement). A cet égard le cas de l'iode est spécifique.

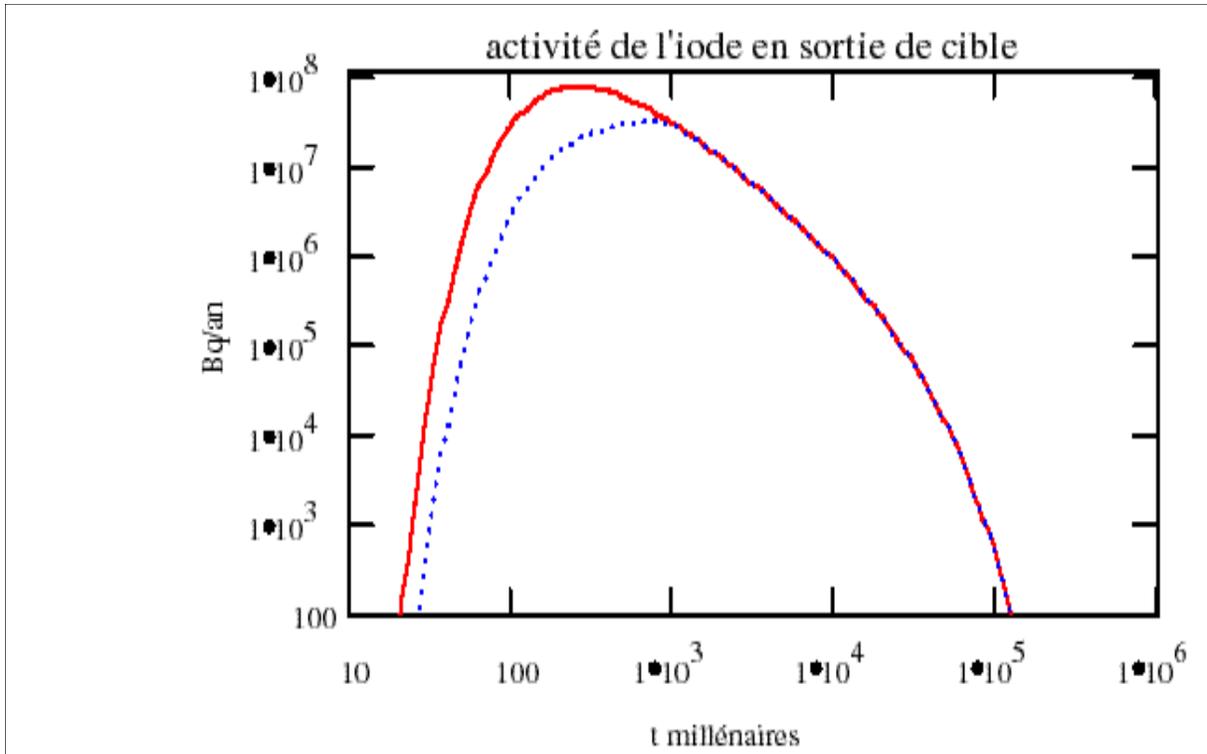


Figure 2

Activité de l'iode sortant de la couche chaque année en fonction du temps.
Le calcul a été fait dans le cas d'un relâchement immédiat de l'iode : —
et dans le cas d'un relâchement sur un million d'années : - - -

Pour estimer la dose annuelle reçue par la population critique nous utilisons l'équation 18. Avec $Q=1$ pour les émetteurs β comme l'iode, $w=0.05$, $m=0.02$ kg et $\lambda_b = \frac{0.693}{0.3}$ pour la thyroïde³, principal site de fixation de l'iode, $\varepsilon=0.097$ MeV pour l'énergie de transition de l'iode⁴, $f=0.27$ la probabilité de fixation de l'iode ingéré dans la thyroïde, on trouve que la dose engagée effective à la population vaut :

équation 19

$$E = 1.6 \cdot 10^{-4} \alpha \lambda J_{\max} \text{ mSv/an}$$

Selon la figure 3 on voit que $\lambda J_{\max} < 7 \cdot 10^7$, si bien que $E < 11000 \alpha$ mSv/an. La valeur choisie pour α dépend, bien entendu, des hypothèses faites sur la nature du climat et de la population. Faisons l'hypothèse qu'un individu moyen absorbe 4 litres d'eau journaliers. Dans l'état hydrologique actuel, le débit de la nappe phréatique atteint 1000 m³/jour. Il s'ensuit que $\alpha=4 \cdot 10^{-6}$. La dose effective engagée vaudrait alors environ 0.045 mSv/an. Cette valeur est à comparer à la limite autorisée par la RFS de 0.25 mSv/an, et à la valeur correspondant à l'irradiation naturelle de 3mSv/an. Elle est donc faible. Seule une diminution considérable du débit de la nappe phréatique correspondant à l'apparition d'un climat aride pourrait conduire à approcher la limite fixée. La masse d'iode 129 ingérée par personne et par an vaut, au maximum, environ 45 micro grammes. La quantité d'iode normalement présente dans une thyroïde est d'environ 7,5 milligrammes, nécessitant une ingestion annuelle d'environ 60 milligrammes. On voit donc que le flux d'iode 129 issu du stockage ne représenterait que 6 millièmes de la dose nécessaire au métabolisme qui devra être fournie par une autre source. Notons qu'une stratégie possible pour assurer qu'en toute hypothèse la dose due à l'iode 129 reste inférieure à la RFS serait de diluer les 18 tonnes d'iode 129 du stockage dans environ 5000 tonnes d'iode 127, seul isotope stable de l'élément.

On peut estimer une borne supérieure au risque associé à l'iode 129 en supposant que tout l'iode de la thyroïde est constitué de cet isotope. La dose individuelle annuelle délivrée atteindrait alors 60 mSv/an. De telles doses permettent d'appliquer le coefficient dose-effet de la CIPR pour estimer la probabilité

annuelle de développer un cancer de la thyroïde. Cette probabilité est de l'ordre de 0,25% par an, ce qui ferait du cancer de la thyroïde une importante cause de morbidité pour la population concernée, de l'ordre de grandeur de celle due au tabac dans notre société. Rappelons qu'il est difficile d'envisager un scénario pouvant aboutir à une telle situation.

Le cas des actinides

Pour les actinides mineurs on estime un facteur de retard compris entre 500 et 5000. Retenant une valeur de 1000, la constante de diffusion devient $D=1.6 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{an}$. Avec cette valeur de D on trouve une grande valeur du retard d'approximativement $\tau_s=2.6 \cdot 10^7$ ans. Dans ces conditions les débits d'activité sont complètement négligeables pour tous les actinides ayant une période inférieure au million d'années, en particulier pour le Plutonium, qu'il y ait eu ou non retraitement. De plus, la faible solubilité des actinides limite encore plus sévèrement leur flux à travers la couche d'argile

Le Tableau 3 montre les flux annuels d'activité sortant de la couche. L'activité en entrée de couche est limitée par la solubilité, comme indiqué par l'équation 17, tandis que l'activité en sortie de couche est atténuée suivant l'équation 14, modifiée pour tenir compte de la solubilité finie des actinides. Pour comparaison on a donné les valeurs calculées pour l'Iode qui est soluble et dont l'activité de sortie est déterminée par un mécanisme différent. La différence de comportement de l'Iode et des actinides est donc patente. On voit aussi que, pour les actinides, la fraction maximale de l'inventaire sortant annuellement est extrêmement faible.

| Radionucléide | solubilité mole/M3 | activité entrante | atténuation | activité sortante | fraction sortant chaque année |
|---------------|-----------------------|----------------------|-------------|----------------------|----------------------------------|
| 129I | soluble | | | 1,31E+08 | 1,44E-06 |
| 235U | 3,00E-07 | 7,62E-01 | 4,16E-01 | 3,17E-01 | 9,29E-15 |
| 236U | 3,00E-07 | 8,82E+01 | 8,15E-03 | 7,19E-01 | 9,02E-14 |
| 238U | 3,00E-07 | 9,94E-02 | 7,06E-01 | 7,02E-02 | 8,49E-17 |
| 237Np | 8,00E-07 | 1,19E+04 | 1,70E-10 | 2,03E-06 | 1,12E-11 |

TABLEAU 3
Limitation des flux par la solubilité
Seules les activités sortantes les plus importantes sont données

Il est vrai qu'à long terme, ces estimations ont un caractère tout à fait académique puisque, sur des durées de l'ordre du milliard d'années, le site de stockage aura été modifié profondément par les évolutions géologiques. Toutefois on remarque que, la teneur moyenne du sol en Uranium étant de l'ordre de 10^{-5} , les 100000 tonnes d'Uranium présents initialement dans le dépôt, ne représentent que 10 fois la masse d'Uranium contenue dans les 500 mètres de sol situés à l'aplomb du dépôtⁱⁱⁱ. Ceci permet d'affirmer que sur les longues durées envisagées, les doses qui pourraient être délivrées à une éventuelle population, quelle qu'elle soit, ne devrait pas excéder notablement celles dues à la présence des radioéléments naturels dans la croûte terrestre, surtout si on considère l'extrêmement faible solubilité de l'oxyde d'uranium.

Les émanations de radon

Les chaînes de désintégration des actinides conduisent à la production d'un gaz radioactif, le radon, susceptible de diffuser plus rapidement hors du stockage et de suivre les ouvrages ouverts ou remblayés, les zones endommagées et les accidents tectoniques éventuels, non détectés à partir des

ⁱⁱⁱ Ce calcul est fait en prenant la teneur moyenne en Uranium de la couche terrestre, et non celle spécifique au site de stockage.

reconnaitances réalisées depuis la surface. Le radon peut être produit selon les chaînes de désintégration de ^{238}U , ^{232}Th , ^{235}U . La chaîne de désintégration du ^{237}Np (^{233}U) ne produit pas de Radon. Les Radon produits sont le ^{222}Rn , le ^{220}Rn et le ^{219}Rn ayant des périodes de 3,8 jours, 55s, et 4s. respectivement. Les faibles périodes des ces gaz rares ne leur permettent pas de diffuser sur de longues distances et seuls ceux produits dans les couches superficielles du sol pourraient contribuer à un effet sur la population. C'est donc, le ^{222}Rn provenant de la désintégration du ^{226}Ra , lui-même plus mobile que son père le ^{238}U , qui, dans le cas du stockage direct de combustible usé, sera le principal contributeur. L'émanation de radon suppose que le radium ait pu migrer vers la surface. Nous avons vu que la quantité de ^{238}U présente dans le stockage du combustible usé non retraité était de l'ordre de 5 fois celle présente dans les cinq cents premiers mètres de sol. On conclut, là encore que le surcroît d'irradiation dû au Radon associé au stockage restera modeste.

Exemple de calcul complet de dose à l'exutoire

Un exemple de calcul complet réalisé sur l'ensemble des radionucléides contenus dans le combustible usé est présenté en Figure 3. Il a été réalisé par l'ANDRA dans le cadre de la vérification des 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 radionucléides 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 est un peu plus complexe que celui utilisé dans le calcul schématique qui supposait que tous les éléments étaient relâchés de la même manière pendant 10^6 ans :

- une fraction des radionucléides est 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.

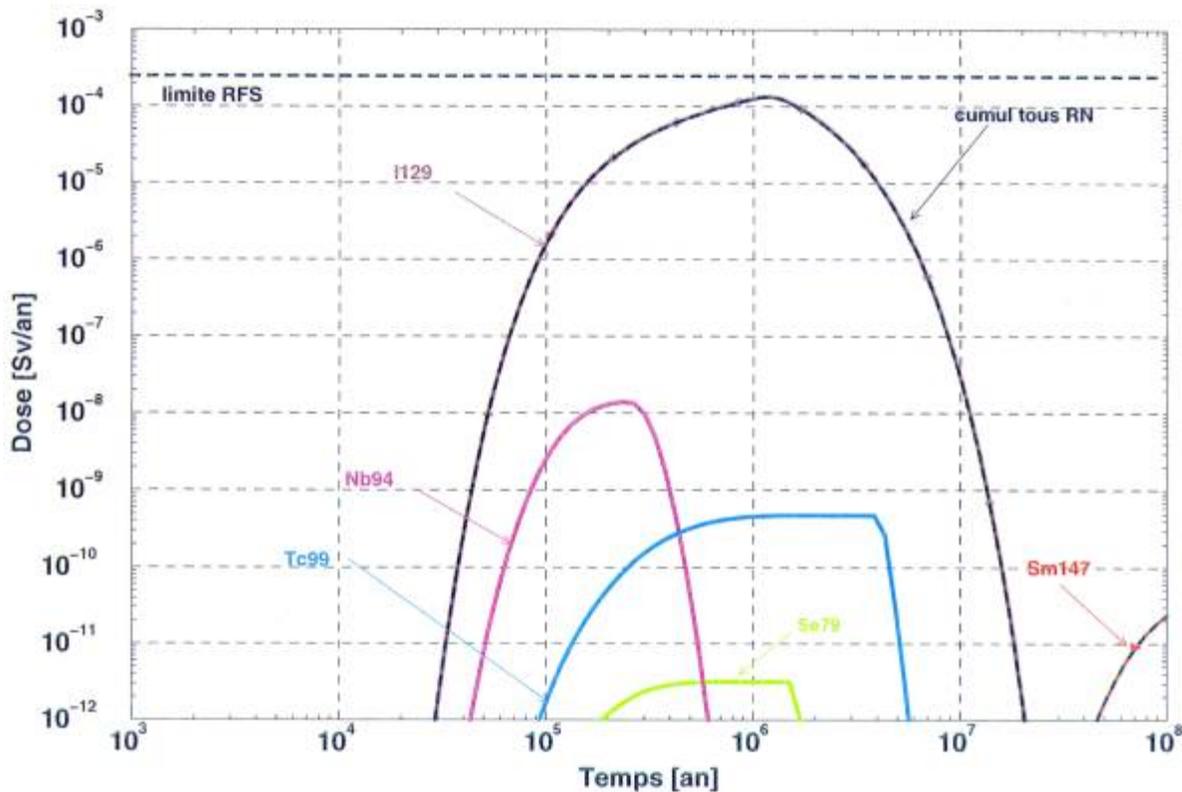


Figure 3

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. Pour une comparaison avec les calculs schématiques il faut donc multiplier les doses par environ 5. Dans le calcul de l'ANDRA, 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 $2 \cdot 10^6$ 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 aux calculs schématiques précédents il faut multiplier les débits d'activité par environ 5. L'accord avec la figure 3 devient alors satisfaisant.

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.

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. Nous proposons de mener le même type de calcul dans le cas d'un forage à travers le stockage. Nous supposons 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

A titre d'exemple nous considérons un forage de 0.5 m de diamètre, correspondant à une surface de 0.2 m². 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. En l'absence de retraitement et au bout de mille ans la radiotoxicité par ingestion d'un kg de combustible irradié est approximativement égale à celle de 300 kg d'Uranium naturel. La radiotoxicité par ingestion de la carotte de 5kg serait donc équivalente à celle de 1500 kg d'Uranium naturel, soit environ 10⁶ Sv/an. 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 m³ 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 schématisé pour deux cas particulièrement représentatifs et le résultat du calcul complet pour un ensemble de radioéléments.

Principe du calcul

Nous retiendrons les caractéristiques du stockage utilisé comme modèle par l'ANDRA. 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. On suppose également que la constante de diffusion de l'eau vaut $D_0 = 1,6 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{an}$. Nous considérons les deux cas les plus représentatifs que l'on trouve être l'Iode 129 et le Radium 226, comme le montre le calcul complet.

Cas de l'Iode 129

Le coefficient de retard de l'iode est pris égal à 1. Dans ces conditions le retard moyen vaut 700 ans et la largeur de diffusion 1050 ans. Du fait de sa labilité partielle, l'activité de l'Iode 129 comporte deux composantes: la première, relâchée immédiatement est de 15% du total, le reste est relâché en 1 million

d'année. La masse d'iode de la première composante vaut 54 kg et celle de la deuxième composante 306 kg. L'iode étant soluble dans l'eau nous appliquons l'équation 8 pour la première composante, et l'équation 14 pour la deuxième, avec $T=10^6$ ans.

La dose effective délivrée à la population critique est obtenue par l'équation 19 avec $\alpha=4 \cdot 10^{-4}$ et montrée sur la Figure 4. Bien que la dose dépasse la RFS elle demeure faible, de l'ordre de la radioactivité naturelle alors que la probabilité de l'événement accidentel considéré est certainement faible.

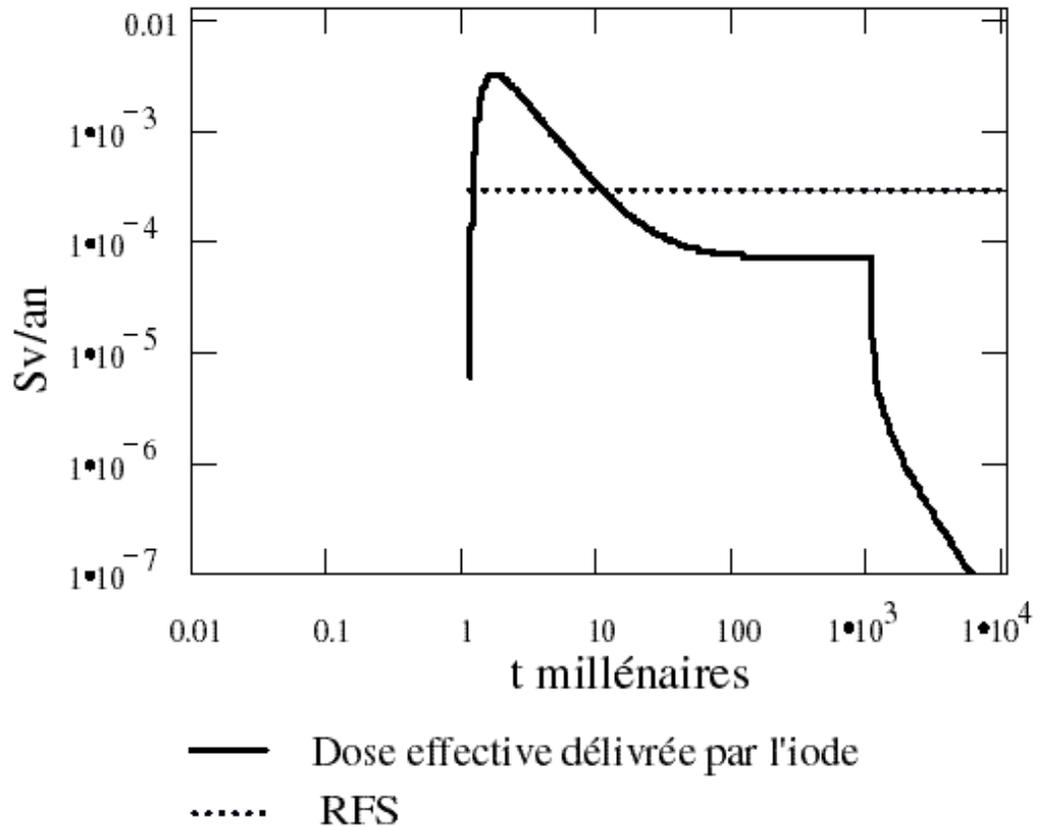


Figure 4

Dose effective due à l'iode 129 délivrée à la population critique dans le cas de l'utilisation exclusive de l'eau d'un puits alimentée par de l'eau provenant du site de stockage.

Cas du Radium 226

Parmi les éléments lourds le Radium se caractérise par un faible retard de diffusion, comme on peut le voir sur le tableau 1. D'après l'équation 9, le retard à la diffusion vaut 4200 ans. La période radioactive de ^{226}Ra , égale à 1600 ans est du même ordre de grandeur que le retard à la diffusion, 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 de l' ^{238}U , soit 700 grammes. Ce poids résulte d'un équilibre entre formation et désintégration au taux annuel de 0,44 gramme. La dose entrant dans la barrière ouvragée est limitée par la solubilité du Radium, et non par sa production comme on peut le voir sur le Tableau 3 qui indique que la masse entrant dans la barrière est limitée à 20 milligrammes/an.

| 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 |
|---------------|----------|-------------|------------|----------|-----------------|----------|----------|
| Radionucléide | tonnes | activité | solubilité | Ks | Flux entrant | activité | activité |
| | | Bq/2000 tCl | mole/M3 | | grammes | entrante | sortante |
| 226Ra | 6,73E-04 | 2,34E+13 | 2,00E-04 | 3,84E-01 | 1,74E-02 | 6,04E+08 | 1,32E+07 |
| 235U | 2,06E+01 | 1,64E+12 | 3,00E-07 | 1,00E-01 | 7,08E-06 | 5,64E-01 | 5,39E-01 |
| 236U | 8,19E+00 | 1,96E+13 | 3,00E-07 | 1,02E-01 | 7,25E-06 | 1,73E+01 | 1,35E+01 |
| 238U | 1,88E+03 | 2,34E+13 | 3,00E-07 | 1,00E-01 | 7,16E-06 | 8,91E-02 | 8,75E-02 |

Tableau 3

Limitation des activités transférées vers le puits d'extraction pour les principaux éléments lourds. On note que le Radium, qui est un alcalino-terreux, se comporte très différemment des actinides. La colonne 2 donne l'inventaire de radioéléments présents à la source, sans qu'il soit tenu compte ni des décroissances radioactives pour les Uranium, ni de la diminution de l'inventaire par diffusion. Le Radium est supposé à l'équilibre radioactif avec l'Uranium 238. La valeur de Ks est calculée d'après l'équation 17, avec une surface des barrières ouvragées de 815 m² et une épaisseur des bouchons d'argile de 2,6m. pour un ouvrage. Les valeurs de la constante de diffusion peuvent être obtenues à partir du Tableau 1

La Figure 5 présente les résultats du calcul pour le ²²⁶Ra. On voit sur la figure que l'activité due au ²²⁶Ra atteint un plateau après environ 5000 ans. Ce plateau dure aussi longtemps que le noyau père ²³⁸U est présent à la source.

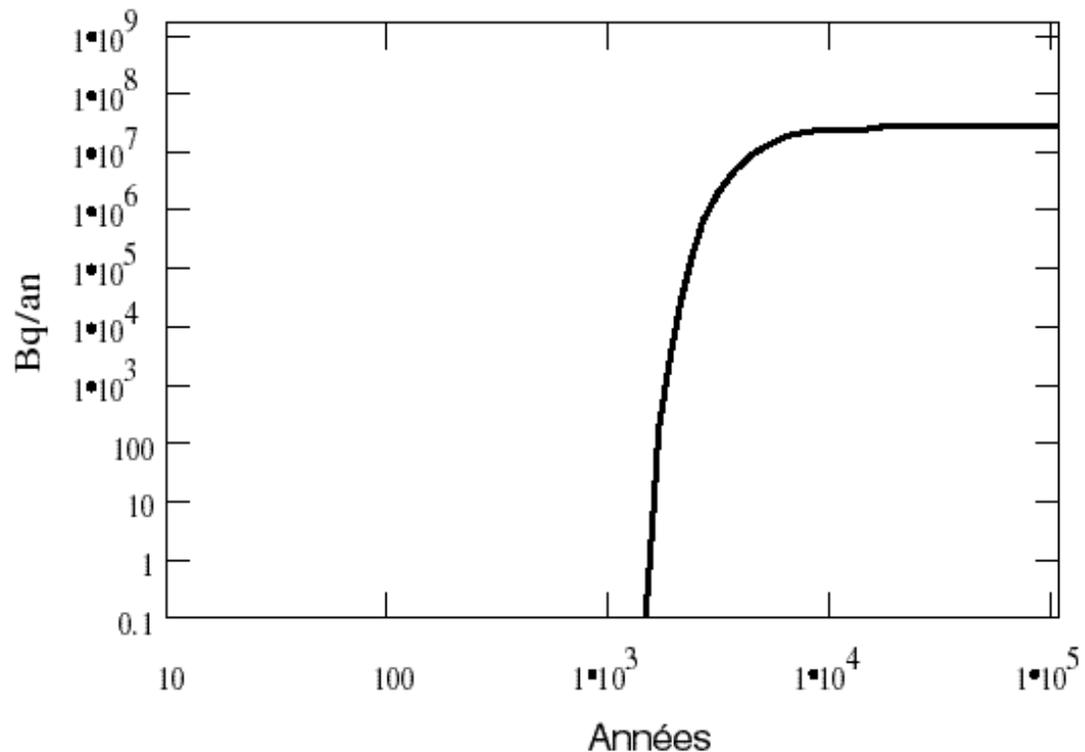


Figure 5

Activité du Radium 226 produite extraite annuellement d'un puits traversant une galerie de stockage. On suppose que l'eau arrive au contact du combustible au bout de mille ans.

Résultats complets

Les résultats du calcul complet fait par l'ANDRA et concernant les doses efficaces délivrées à la population critique sont données sur la Figure 6 en ce qui concerne les éléments lourds. La dose totale incluant celle délivrée par les fragments de fission est, également, indiquée. Parmi ces derniers, c'est encore l'iode qui donne la plus importante contribution.

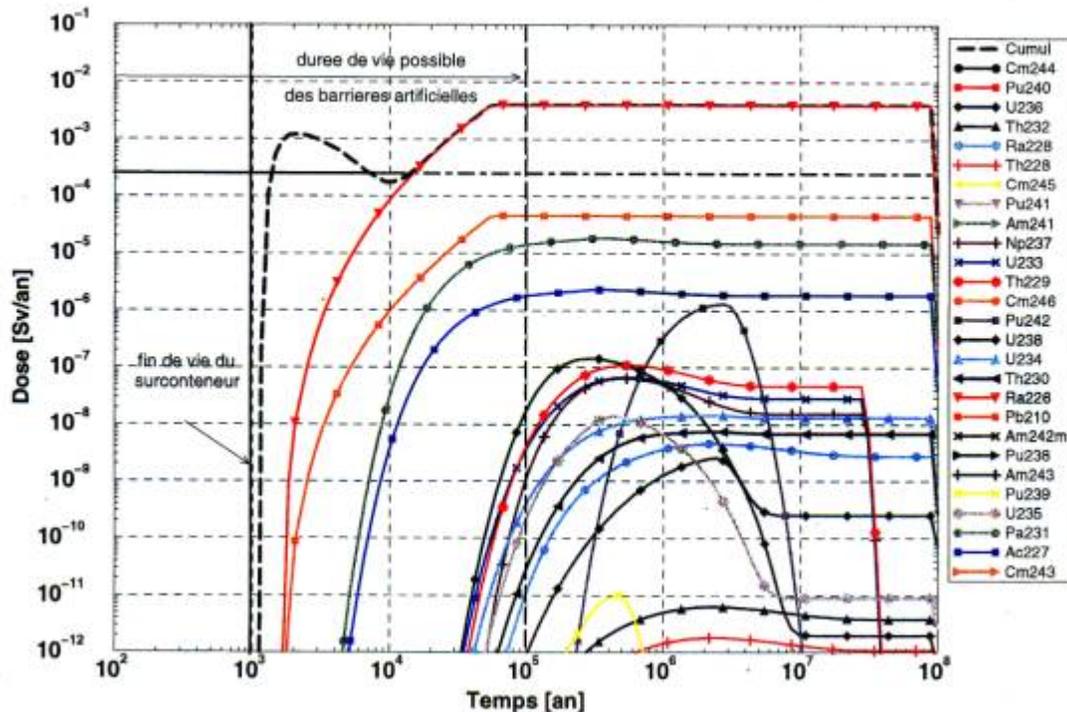


Figure 6

Doses délivrées au groupe critique en fonction du temps, dans le cas de l'utilisation d'un puits traversant une galerie du site de stockage. La figure donne les contributions à l'irradiation dues aux noyaux lourds. Le trait horizontal représente la limite donnée par la RFS. Le cumul inclut la contribution des produits de fission.

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, comme nous l'avons signalé précédemment. 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.

Stockage ou dilution ?

La question mérite particulièrement d'être posée pour l'Iode puisque la pratique actuelle de la COGEMA est, précisément, de rejeter à la mer 95% de l'Iode issue du retraitement. La politique du zéro rejet conduirait à empêcher cette pratique, et donc à stocker(en l'absence de transmutation) l'Iode dans un site géologique. Nous avons montré que, dans ce cas, et en l'absence d'une dilution dans l'Iode 127, les doses à la population critique pourraient atteindre 0.045 mSv/an, correspondant à une concentration de l'Iode 129 par rapport à l'Iode 127 de $7,5 \cdot 10^{-4}$. Dans le cas d'intrusion accidentelle cette concentration pourrait atteindre $7,5 \cdot 10^{-2}$. Ces valeurs sont à comparer aux concentrations dans l'eau des océans qui résulteraient du rejet de l'Iode 129 à la mer. La quantité d'Iode 127 dans les océans se monte à environ $6 \cdot 10^{13}$ kilogrammes. Un réacteur de 1 GWe produit chaque année 4 kg d'Iode 129. Pour atteindre la concentration de $7,5 \cdot 10^{-4}$, on voit donc qu'un fonctionnement de 10 milliards d'année-réacteurs serait nécessaire ! Bien entendu cette estimation suppose une distribution homogène de l'Iode 129 dans l'immensité océanique, homogénéité qui demanderait des millénaires pour se réaliser. Il est plus éclairant de considérer la concentration maximum en Iode 129 à proximité des exutoires des usines de retraitement de combustible. Des mesures de ces concentrations ont été effectuées par F.Yiou et ses collaborateurs⁵ à proximité de l'usine de La Hague. La concentration maximum observée était de 10^{-6} . On constate donc que le rejet en mer reste, actuellement, la stratégie la meilleure pour limiter les doses d'irradiation dues à l'Iode 129. Le fait que cette stratégie risque d'être interdite est une illustration, parmi de nombreuses autres, des effets pervers que peuvent avoir des décisions « politiquement correctes », prises, essentiellement pour satisfaire de bruyants groupes de pression. Pour être complet il faut remarquer que le choix entre dilution et concentration dépend fortement de l'hypothèse que l'on fait sur les effets des faibles doses de radiation. Par exemple, dans le cas que nous avons étudié du stockage de 18 tonnes d'Iode, une population limitée pourrait, en principe, être soumise à une irradiation de 45 microSv/an. La même quantité d'Iode diluée dans l'océan conduirait à une irradiation de tous les humains de l'ordre de $25 \cdot 10^{-6}$ microSv/an. Si l'on tient compte, dans le cas du stockage, de l'irradiation de l'ensemble de la population mondiale, la relation dose-effets linéaire sans seuil donne exactement le même risque pour les deux situations, la diminution de l'irradiation étant compensée par l'augmentation du nombre d'irradiés.. Doit-on faire payer à quelques uns une très faible diminution, probablement illusoire, des risques encourus par le grand nombre ? L'utilisation d'une relation non linéaire, ou d'une relation avec seuil, conduirait, sans aucun doute, à préférer la solution de la dilution.

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 radionucléides, même dans des conditions extrêmes. Les successions d'évènements climatiques sont aussi prises en compte pour les évaluations à venir.

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.

Nous avons vu que, 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.

La mise en exploitation d'un puits traversant la couche du dépôt semble être un exemple particulièrement peu probable et pénalisant d'une situation accidentelle. Dans ce cas les niveaux de dose pourraient dépasser les limites de la règle fondamentale de sûreté, sans excéder beaucoup le niveau de l'irradiation naturelle. L'Iode demeure un des radioéléments contribuant notablement à l'irradiation de la population, mais s'y ajoute une contribution importante du ²²⁶Ra dû à la désintégration de l'Uranium 238. Là encore on trouve que la contribution des transuraniens restera très faible. Par contre ceux-ci peuvent avoir une influence importante dans l'économie de réalisation du site de stockage du fait de l'importante chaleur résiduelle qu'ils dégagent. Au delà de trois cents ans, ce sont, en effet, eux qui détermineront la température du site, et donc d'éventuelles modifications géochimiques.

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

¹ Les Déchets Nucléaires. Un dossier scientifique. Ed. R.Turlay. 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 J.E.Turner. Atoms, radiation, and radiation protection. Ed. John Wiley and sons.

⁴ Evaluated Nuclear Data File. National Nuclear Data Center. BNL Upton, Long Island, NY11973 USA

⁵ Dr. Françoise Yiou, IPN Orsay, communication privée