

Fontenay-aux-Roses, le 30 juillet 2015

Monsieur le Président de l'Autorité de Sûreté Nucléaire

Avis IRSN n° 2015-00253

**Objet :** PNGMDR - études du contenu radiologique des déchets de graphite CEA et EDF

**Réf. :**

1. Lettre CODEP-DRC-2015-017760 du 6 mai 2015
2. CEA/MR/DPSN/DIR/2015-086/EF du 08 janvier 2015 (Rapport commun CEA-EDF)

Par lettre citée en référence [1], vous sollicitez l'avis de l'IRSN sur l'état des connaissances du contenu radiologique des déchets de graphite de Faible Activité à Vie Longue (FAVL) du CEA et de EDF, issus de leurs réacteurs Uranium Naturel Graphite Gaz (UNGG). Des évaluations d'inventaire radiologique sont proposées dans le document en référence [2], en vue des études de conception d'une filière d'élimination de ce type de déchets par l'ANDRA, dans le cadre du Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs (PNGMDR) 2013-2015.

En particulier, votre demande porte sur « *la robustesse de l'estimation conservatrice (1,71 TBq) du contenu radiologique des déchets de graphite en chlore 36* » et, plus généralement, sur l'estimation des inventaires des autres radionucléides usuellement considérés dimensionnants pour la conception d'un stockage à faible profondeur. Vous demandez par ailleurs à l'IRSN d'identifier au cours de cette analyse « *les éventuels gisements de réduction des estimations* », et de vous faire part des « *préconisations qui pourraient être définies vis-à-vis de travaux de recherche et développement qu'il conviendrait de réaliser à la suite de cette étude* ».

Adresse courrier  
BP 17  
92262 Fontenay-aux-Roses  
Cedex France

Siège social  
31, av. de la Division Leclerc  
92260 Fontenay-aux-Roses  
Standard +33 (0)1 58 35 88 88  
RCS Nanterre B 440 546 018

- *Inventaire, origine et répartition des déchets*

La masse totale de déchets de graphite déclarée conjointement par le CEA et EDF représente 21500 tonnes, issues de 9 réacteurs UNGG. La répartition de cet inventaire (Annexe - tableau 1) se décompose en 18871 tonnes de graphite constitutifs des empilements et protections biologiques de chacun des réacteurs, et de 2630 tonnes de chemises de graphite dans lesquelles étaient insérés les éléments combustible.

- *Evaluation du contenu radiologique (problème physique, méthodes et résultats)*

Les radionucléides à vie longue présents dans les déchets de graphite issus des réacteurs UNGG sont ceux provenant de l'activation neutronique du carbone et des impuretés du graphite, ainsi que leur descendance isotopique. Certains radionucléides issus de fission doivent également être pris en compte ; ils proviennent soit de la fission de l'uranium présent en tant qu'impureté dans le graphite, soit de la contamination du graphite consécutive à des accidents de perte d'étanchéité des éléments combustible.

La détermination du contenu radiologique de ce type de déchets, en vue de l'établissement d'un inventaire radiologique, consolidé et raisonnablement conservatif, rencontre un obstacle a priori d'ordre métrologique. Les mesures radiologiques réalisées sur les prélèvements de graphite des réacteurs UNGG montrent en effet que la teneur en radionucléides recherchés s'étend sur deux à trois ordres de grandeurs, même au sein d'un prélèvement d'un gramme de graphite. Cette variabilité, qui ne peut être corrélée à celle du flux neutronique (un seul ordre de grandeur) vu par les empilements de graphite au cours de leur vie en réacteur, ni à l'incertitude de mesure (moins d'un ordre de grandeur), indique que la teneur en impuretés d'origine dans le graphite de « pureté nucléaire » prend un caractère aléatoire dans un petit volume. Ainsi, toutes les mesures radiologiques disponibles peuvent être considérées représentatives d'une réalité locale. Une simple moyenne de l'ensemble des mesures, ou la considération des mesures les plus élevées uniquement, ne permettent pas en conséquence d'atteindre l'objectif d'établir un inventaire radiologique raisonnablement conservatif.

Aussi, le recours à la modélisation de l'activation des impuretés apparaît comme la seule approche envisageable au stade actuel pour raccorder des mesures expérimentales fortement dispersées à une réalité physique à l'échelle du réacteur. Néanmoins, les teneurs en impuretés d'origine, qui seraient à utiliser en données d'entrée d'un calcul d'activation, ne sont pas accessibles par la mesure chimique (dont les limites sont de l'ordre du ppm, alors que les teneurs en impuretés dans le graphite de « pureté nucléaire » sont usuellement estimées à moins de 0.1 ppm). Une méthode directe ne pouvant ainsi être mise en œuvre, une démarche inverse a été proposée par EDF. Cette méthode inverse vise à définir de façon itérative le jeu de teneurs en impuretés qui minimise, au travers d'un ensemble de calculs d'activation, l'écart quadratique logarithmique entre les résultats du calcul d'activation et les mesures expérimentales disponibles. Une fois ce jeu de teneurs en impuretés optimisé, il est considéré homogène dans l'ensemble de l'empilement de graphite, et un calcul final d'activation à l'échelle du réacteur permet d'estimer l'inventaire radiologique.

Les évaluations d'inventaire radiologique présentées dans le document [2] sont basées sur cette méthode inverse pour le graphite dont EDF a la propriété. Pour le graphite du CEA, les évaluations proviennent essentiellement de mesures radiologiques, dont le traitement statistique n'est pas présenté dans le document [2]. Néanmoins il est fait mention d'une méthode d'optimisation itérative en cours de déploiement au CEA, afin de resserrer les incertitudes sur les inventaires proposés, à l'horizon de 2019.

Dans le document [2], les évaluations d'activités proposées par le CEA et EDF sont restreintes à 8 radionucléides parmi les 144 considérés par l'ANDRA [2] comme importants pour le dimensionnement d'une installation de stockage de déchets radioactifs, et le choix de son site. Les valeurs d'activités massiques<sup>1</sup> obtenues selon le réacteur d'origine du graphite sont données en figure 1. **L'IRSN observe que ces valeurs d'activités massiques par empilement présentent une cohérence d'ensemble, en regard d'un indice prédictif d'activation massique, calculé par l'IRSN (figure 1 en annexe). Ceci tend à montrer une convergence des résultats entre EDF et le CEA sur l'activité massique des empilements de graphites des divers réacteurs UNGG, bien que leurs méthodes d'évaluation soient sensiblement différentes.**

Concernant le niveau d'activation des chemises, qui sont soumises en service à un flux neutronique plus important que le graphite de l'empilement mais ne séjournent en réacteur que le temps de l'irradiation du combustible, l'IRSN constate un niveau d'activité massique plus faible pour les chemises issues des réacteurs de Chinon par rapport aux empilements eux-mêmes, à nuance de coke identique (Lockport), alors que celles issues des réacteurs de Saint Laurent A1-A2 sont plus activées que l'empilement, à nuance de coke identique (Lima pour l'empilement de Saint-Laurent A2, cf. tableau 1).

**Ces constats sur l'activité massique des chemises de graphite tantôt plus activées que leurs empilements d'origine, tantôt moins activées, laissent penser qu'une faiblesse subsiste sur l'évaluation des inventaires radiologiques des chemises actuellement proposée.** EDF précise d'ailleurs dans le document [2] que l'évaluation des inventaires sur les chemises de Saint-Laurent A1 et A2 se base sur un nombre très limité de données et qu'une campagne de mesures sur les chemises de Saint-Laurent est prévue, dont les résultats sont attendus avant 2019.

Enfin, une divergence, probablement d'ordre méthodologique, est visible entre les inventaires radiologiques calculés par le CEA et par EDF pour le <sup>63</sup>Ni (figure 3) dont la contribution à l'activité totale est systématiquement plus élevée dans les résultats d'EDF, pour les chemises et les empilements.

Puisque l'ensemble de ces déchets sont destinés à être stockés dans la même installation, conditionnés dans le même type de colis, avec des spectres-type radiologiques équivalents, **l'IRSN recommande que le CEA et EDF procèdent à des évaluations croisées en échangeant les résultats de mesures radiologiques qui servent de données d'entrée à leurs méthodes respectives d'évaluation.** L'IRSN recommande également que le CEA et EDF procèdent à des analyses physiques, en post-traitant leurs calculs d'activation, afin d'éclaircir l'interprétation de leurs résultats d'inventaire, dans le but d'étayer la robustesse des évaluations proposées. En particulier les activités massiques calculées en chaque radionucléide doivent pouvoir s'expliquer en regard des sections de capture de leurs précurseurs et de la teneur d'origine en celui-ci. De plus l'indépendance du schéma global d'activation doit être vérifiée pour tout type de graphite (empilement, chemise) quelle qu'en soit la nuance de coke d'origine : la relation liant les impuretés aux radionucléides activés ne doit pas être dépendante, ou que très faiblement, de l'empilement considéré.

<sup>1</sup> Dans le document [2], le CEA présente des inventaires calculés à l'année 2013, alors que ceux d'EDF sont calculés à l'année 2017. La sommation est donc dans le présent avis donnée pour l'année 2017, en considérant par conservatisme que les valeurs de l'inventaire CEA n'évoluent pas entre 2013 et 2017.

- *Focus sur le  $^{36}\text{Cl}$*

Le document en référence [2] fait état d'un inventaire total en  $^{36}\text{Cl}$  de 1,71 TBq pour les 21500 t de graphite activé (figure 4). Cette valeur était évaluée à 8,46 TBq avant l'étude proposée par le CEA et EDF, qui justifient cette réduction de 80% par les points suivants :

- pour le réacteur CEA G1, l'inventaire en  $^{36}\text{Cl}$  passe de 1,56 TBq à  $1,13 \cdot 10^{-2}$  TBq ; cette réduction conséquente provient d'une nouvelle campagne de mesures réalisée en 2008 sur le réacteur G1, dont l'inventaire était préalablement établi sur la base d'extrapolations à partir de mesures sur l'empilement du réacteur G2 ;
- pour les réacteurs CEA G2 et G3, l'inventaire en  $^{36}\text{Cl}$  passe de 0,795 TBq (pour chacun des empilements) à 0.23 TBq pour G2 et 0.625 TBq pour G3 du fait de la prise en compte, justifiée selon l'IRSN, de niveaux d'activation différents pour le graphite du modérateur et celui du réflecteur (plus faiblement activé), alors qu'une activité moyenne (de 611 Bq.g-1) leur était préalablement affectée sans distinction ;
- la réduction de l'inventaire total en  $^{36}\text{Cl}$  est essentiellement liée à une réévaluation de l'activité en  $^{36}\text{Cl}$  des chemises de Saint-Laurent A1 et A2 qui passe de 5 TBq à 0.53 TBq ; le CEA et EDF justifient cette réduction suite à la découverte d'un biais de mesure qui affectait fortement l'activité des chemises en  $^{36}\text{Cl}$  d'un facteur 20 à 30 ; ces mesures, réalisées en 1990, se basaient sur un protocole pour lequel certains radionucléides volatils à vie courte ( $^{103,106}\text{Ru}$ ,  $^{124}\text{Sb}$ ,  $^{75}\text{Se}$ ) pouvaient être piégés simultanément avec le  $^{36}\text{Cl}$  et venaient augmenter la mesure globale d'activité.

L'IRSN estime que les arguments avancés par le CEA et EDF concernant la réévaluation en forte baisse de l'activité totale en  $^{36}\text{Cl}$  sont pertinents, mais observe toutefois qu'une partie essentielle de la réduction d'inventaire (4,5 TBq sur les 6,75 TBq) provient d'un facteur correctif appliqué sur l'activité massique des chemises de Saint Laurent A1 et A2. Or, comme cela a été évoqué au point précédent, cette évaluation ne peut être considérée robuste en raison d'un nombre limité de mesures sur ces chemises. Ces chemises contribuant en outre au tiers de l'activité totale en  $^{36}\text{Cl}$  de l'ensemble des déchets de graphite dans la présente évaluation (figure 2), **l'IRSN estime nécessaire que le caractère conservatif de l'inventaire total  $^{36}\text{Cl}$  actuellement proposé soit confirmé par la campagne expérimentale complémentaire engagée par EDF à échéance 2019 et que la méthode inverse d'évaluation d'inventaire soit reconduite sur la base de ces nouvelles données d'entrée.**

- *Poursuite des travaux de R&D*

Considérant le problème physique de forte variabilité de mesures radiologiques sur le graphite activé, une incertitude, supérieure à celle de la mesure expérimentale en elle-même, ne peut être éliminée. Un traitement statistique doit être opéré sur les mesures radiologiques, ou sur les valeurs calculées par la modélisation, pour évaluer l'incertitude et le risque de sous-évaluation des inventaires qui seront finalement déclarés. Ce traitement est déjà considéré dans la méthode d'EDF et sera mis en œuvre par le CEA (méthodes géostatistiques). En outre, concernant les chemises de graphite, l'acquisition prévue par EDF de nouvelles données devrait permettre de fiabiliser l'évaluation de leur inventaire radiologique, qui apparaît encore incertain.

**L'IRSN estime ainsi que le CEA et EDF mettent en œuvre les moyens expérimentaux et de modélisation suffisants pour l'établissement d'un inventaire radiologique robuste et raisonnablement enveloppe, avec une plage d'incertitude resserrée, au plus tard en 2019.** Un soin particulier sera par ailleurs à apporter aux radionucléides difficilement ou non mesurables, dont il n'est pas fait mention dans le document [2], parmi les 144 définis par l'ANDRA. Considérer par exemple la teneur en un radionucléide non mesurable comme égale à sa limite de détection radiologique pourrait constituer une forte pénalisation. Les résultats rendus par la méthode inverse d'EDF concernant ces radionucléides non mesurés seront donc d'intérêt.

En termes de préconisations de travaux de R&D, comme précédemment évoqué, **l'IRSN préconise que le CEA et EDF exploitent les résultats de leurs calculs d'activation afin d'étayer l'analyse physique des résultats d'inventaires obtenus, et vérifient, comme préalablement évoqué, que les schémas d'activation impuretés-radionucléides soient indépendants du graphite considéré, aux incertitudes près.**

- *Conclusion*

Concernant les méthodes d'évaluation d'inventaires déployées par le CEA et par EDF, l'intercomparaison des résultats présentés par le CEA et EDF dans le document [2] sur 8 radionucléides montre, selon l'IRSN, une bonne cohérence d'ensemble, en termes d'activités massiques totales sur les empilements de graphite du CEA et d'EDF. Néanmoins, afin d'obtenir une convergence optimale des résultats (notamment des ratios entre radionucléides, qui constituent un déclaratif classique pour l'ANDRA), et une maîtrise de leur sens physique, l'IRSN estime profitable que l'ensemble des mesures radiologiques soient partagées entre le CEA et EDF, et que chacun procède à l'évaluation, par sa propre méthode, des inventaires radiologiques de tous les déchets de graphite (CEA+EDF).

En outre, puisque le recours à la modélisation de l'activation des impuretés est nécessaire pour établir ces inventaires, l'IRSN estime que toutes les informations pouvant donner du sens physique aux résultats doivent être exploitées. Concernant la robustesse de l'estimation conservative du contenu radiologique de l'ensemble des déchets de graphite en  $^{36}\text{Cl}$ , dont une grande partie est portée par les chemises de Saint-Laurent A1 et A2 dans les présentes évaluations, l'IRSN estime nécessaire que la campagne de mesures complémentaires sur ces chemises, prévue par EDF à l'échéance de 2019, apporte les éléments nécessaires à la fiabilisation de cet inventaire.

Pour le Directeur général et par ordre,  
François BESNUS

le Directeur des déchets et de la géosphère



PJ : 1 annexe

## ANNEXE

	Réacteur	Graphite	Coke d'origine	Masse (t)
CEA	<b>G1</b> 40 MWth 1956-1968	Empilement	Spécial	1200
	<b>G2</b> 250 MWth 1958-1980	Empilement	Spécial et Lockport L	1302
	<b>G3</b> 250 MWth 1959-1984	Empilement	Spécial et Lockport L	1302
	Chinon A2-A3	Chemises broyées mélangées	Lockport L, M ou Gilsonite	730
EDF	<b>Chinon A1</b> 300 MWth 1963-1973	Empilement	Lockport L	1120
	<b>Chinon A2</b> 850 MWth 1965-1985	Empilement	Lockport L	2200
	<b>Chinon A3</b> 1560 MWth 1966-1990	Empilement	Lockport (74%L, 26%M)	2670
	<b>Saint-Laurent A1</b> 1650 MWth 1969-1990	Empilement+ Protection biologique	Lockport M	3272
	<b>Saint-Laurent A2</b> 1700 MWth 1971-1990	Empilement+ Protection biologique	Lima	3220
	<b>Bugey 1</b> 1920 MWth 1972-1994	Empilement+ Protection biologique	Lima	2585
	Saint-Laurent A1-A2	Chemises mélangées	Lima	1900

Tableau 1 : répartition des 21500 tonnes de déchets graphite issus des réacteurs UNGG du CEA et d'EDF et nuance de coke d'origine

## Activités massiques (8 RN) selon provenance - Bq.g<sup>-1</sup>

-2017-

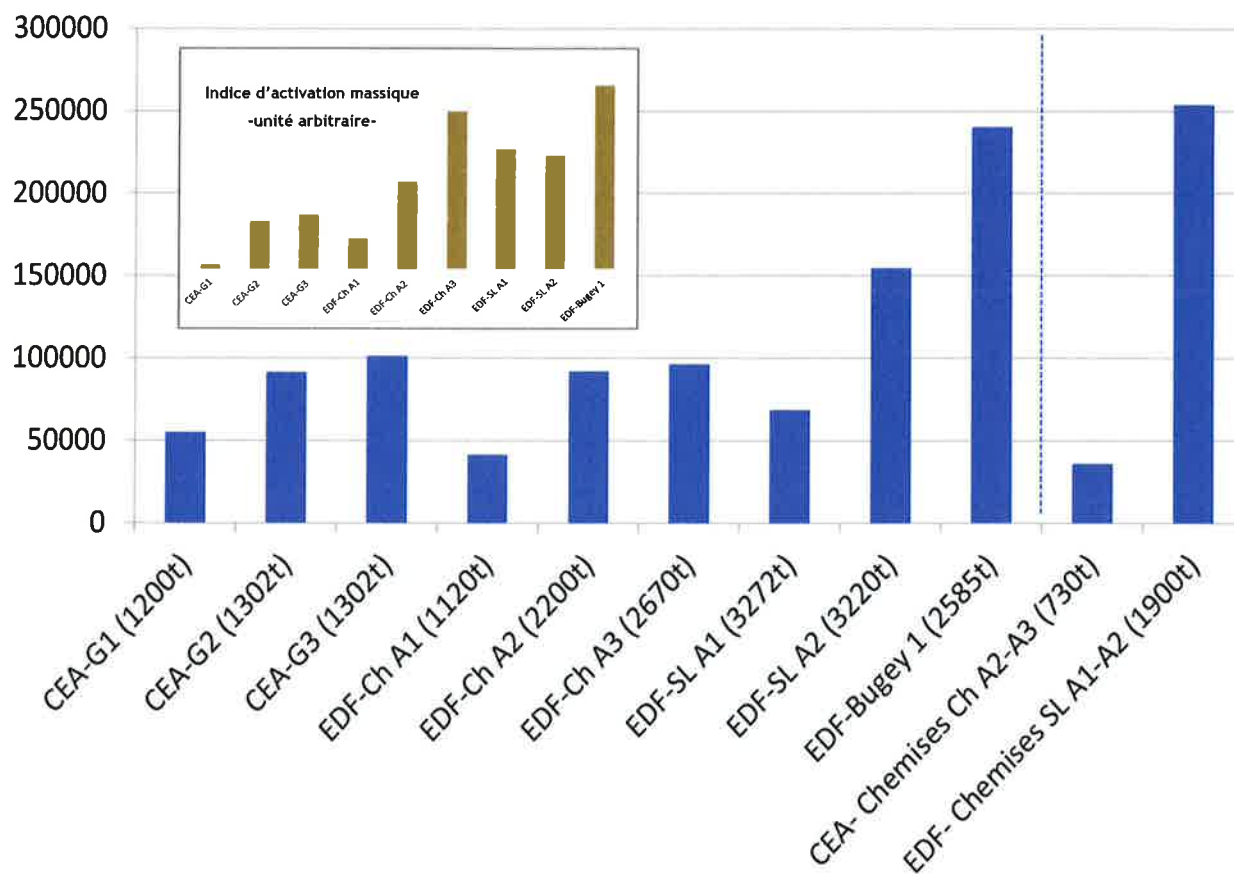


Figure 1 : Activités massiques (calculées depuis [2]) des empilements de graphite CEA et EDF et des chemises issues des réacteurs Chinon A2-A3 et Saint-Laurent A1-A2. L'indice prédictif d'activation massique en encart est déterminé pour chaque empilement, par le produit de la puissance thermique nominale et du temps entre la première divergence et la mise à l'arrêt définitif, divisé par la masse de graphite de l'empilement. Il donne donc une indication du niveau d'activité massique attendu en relatif, d'un empilement à l'autre, sans distinction des nuances de coke d'origine et permet d'observer ici que l'ordonnement des niveaux d'activités massiques des empilements du CEA et d'EDF apparaît cohérent, à la différence des nuances de coke près.



## Activités massiques (8 RN) - Bq.g<sup>-1</sup>

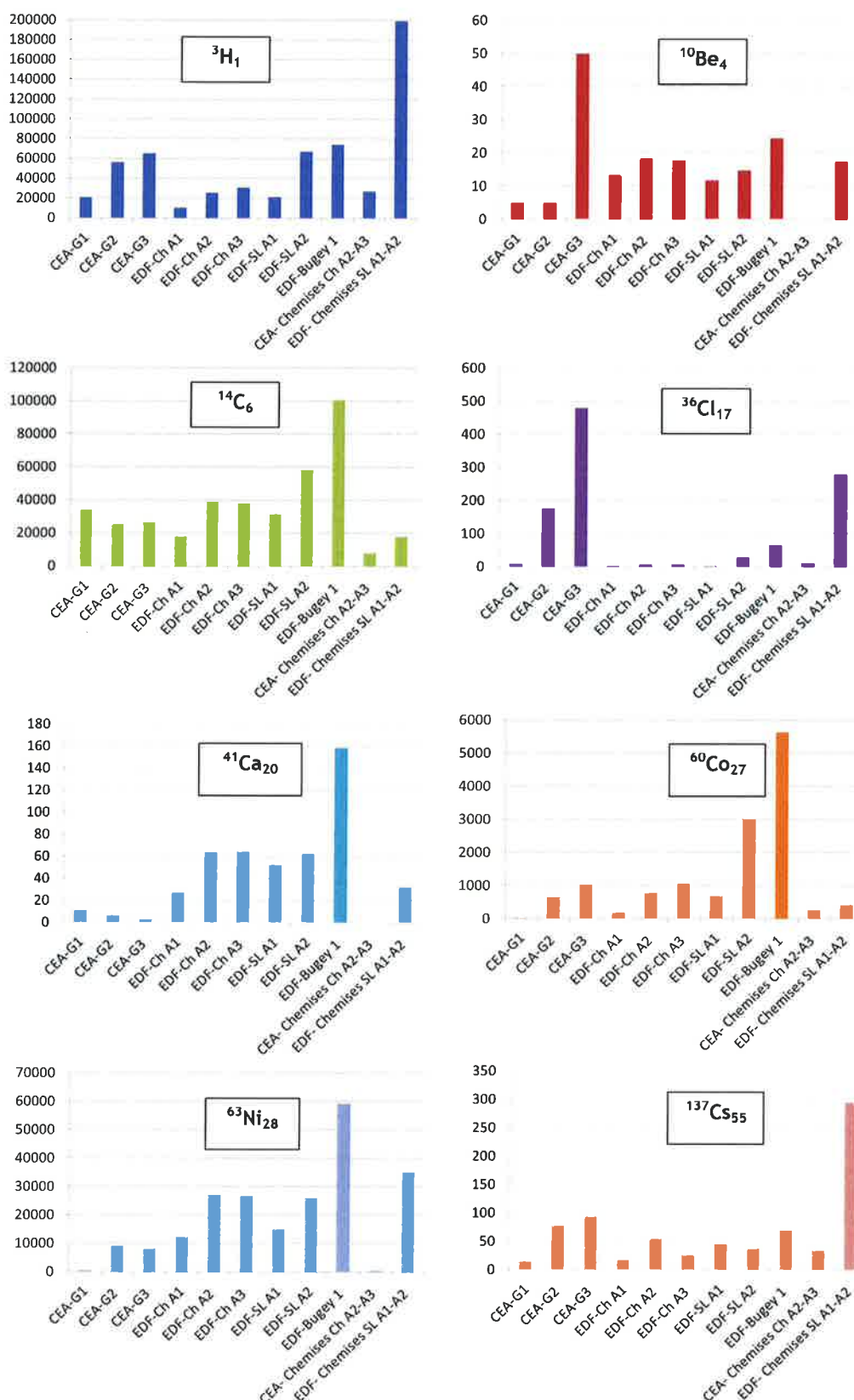


Figure 2 : Activités massiques (calculées depuis [2]) en chacun des 8 radionucléides considérés

## Activités (8 RN) selon provenance - TBq -2017-

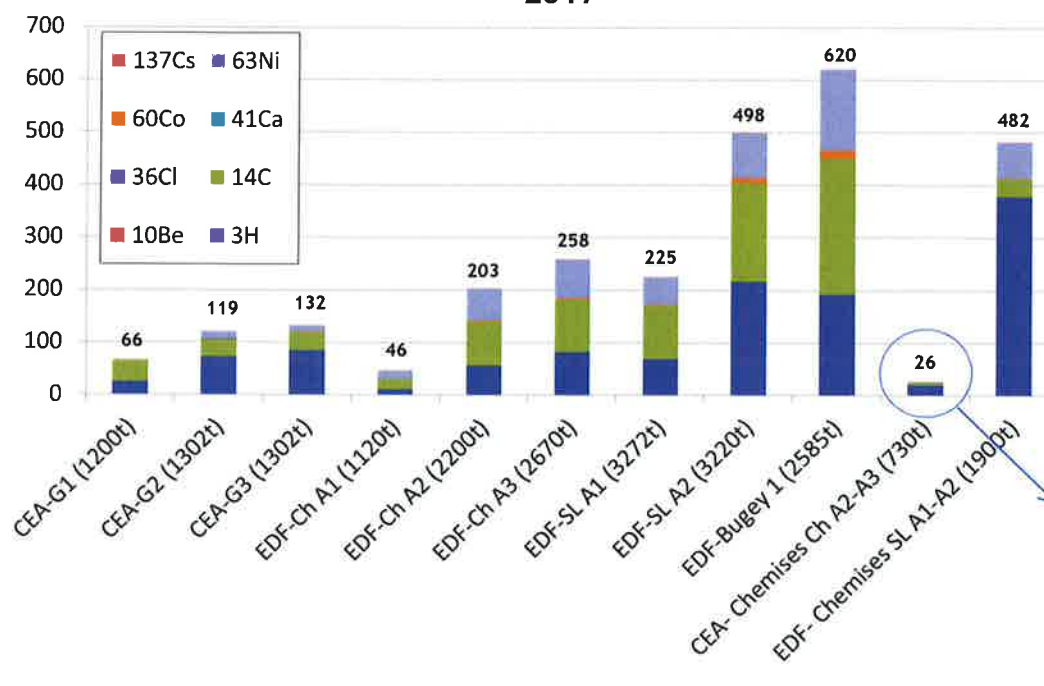


Figure 3 : Activités des empilements de graphite CEA et EDF et des chemises de issues des réacteurs Chinon A2-A3 et Saint-Laurent A1-A2. Contributions des 8 radionucléides considérés [2]

## Activités totales des 8 RN - TBq

-2017-

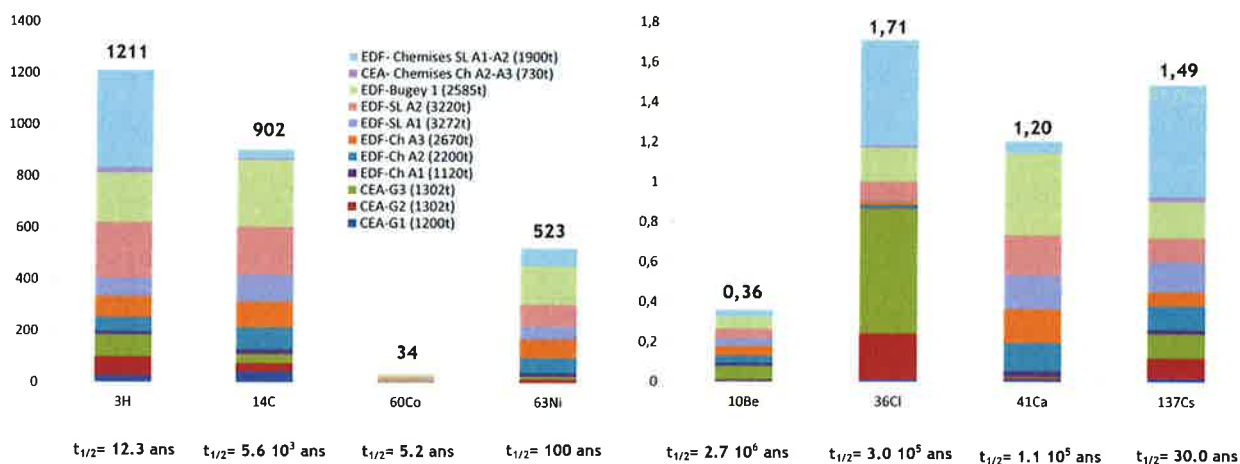


Figure 4 : Activités totales en chacun des 8 radionucléides considérés et contributions des diverses provenances (empilements, chemises) [2]