

MIGRATION DU DEUTERIUM DANS LE GRAPHITE NUCLEAIRE : CONSEQUENCES SUR LE COMPORTEMENT DU TRITIUM DANS DES REACTEURS DE TYPE UNGG ET SUR LA PURIFICATION DES GRAPHITES IRRADIES

M. Le Guillou^{1,2}, N. Moncoffre¹, N. Toulhoat^{1,3}, Y. Pison^{1,4}, N. Béererd^{1,4},
M.R. Ammar⁵, R. Rapegno¹

¹ Université de Lyon, Université Lyon 1, CNRS/IN2P3, UMR5822, Institut de Physique Nucléaire de Lyon (IPNL), 4 rue Enrico Fermi, F-69622 Villeurbanne cedex, France

² Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs, 1-7 rue Jean Monnet, Parc de la Croix-Blanche, F-92298 Châtenay-Malabry cedex, France

³ CEA/DEN, Centre de Saclay, F-91191 Gif-sur-Yvette cedex, France

⁴ Université de Lyon, IUT Lyon 1, Département de Chimie, 43 bd du 11 Novembre 1918, F-69622 Villeurbanne cedex, France

⁵ CNRS, CEMHTI UPR3079, Université Orléans, F-45071 Orléans, France

Adresse email du correspondant : m.le-guillou@ipnl.in2p3.fr

Le graphite est un matériau largement utilisé dans le domaine nucléaire comme modérateur ou réflecteur car il ralentit les neutrons rapides sans les capturer et du fait de sa résistance aux contraintes mécaniques et aux hautes températures. Or, les réacteurs de première génération modérés au graphite (de type UNGG ou Magnox) sont actuellement à l'arrêt et en phase de démantèlement. Au niveau mondial, environ 250000 tonnes de graphite nucléaire irradié sont dans l'attente de solutions de gestion. En France, ces déchets doivent être stockés avec ou sans traitement de purification préalable. Ils contiennent en effet des radionucléides pouvant être déterminants pour le stockage, soit du fait de leur activité, soit en raison de leur période. Parmi eux, le tritium doit être considéré vis-à-vis de sa forte contribution à l'activité initiale des déchets de graphite. Il est de plus susceptible d'être relâché lors de la phase de démantèlement ou des opérations de traitement, ainsi que durant l'exploitation du stockage. Afin de prévoir son comportement lors de ces différentes étapes, il est indispensable de disposer de données robustes sur sa localisation et sa forme chimique dans le graphite irradié et de connaître le plus précisément possible son inventaire initial. Etant donné que les méthodes spectroscopiques usuelles ne sont en général pas adaptées à la détection de très faibles concentrations de radionucléides (< 1 ppm), nous avons choisi de simuler la présence de tritium par implantation ionique de deutérium. Des échantillons de graphite nucléaire vierge issus du réacteur St-Laurent A2 ont ainsi été implantés en deutérium à hauteur d'environ 3 % at. à différentes profondeurs afin d'étudier les effets de proximité de la surface vis-à-vis de son comportement. Ils ont ensuite été recuits sous différentes atmosphères permettant de reproduire les conditions rencontrées respectivement en réacteur, au cours du démantèlement et lors d'un éventuel procédé de décontamination en présence de vapeur d'eau. Les profils de deutérium ont été analysés avant et après traitements thermiques par la réaction nucléaire $D(^3\text{He},p)^4\text{He}$ et les états de surface et de structure du graphite contrôlés par microscopie optique, MEB et spectroscopie Raman. Les résultats montrent que la désorption du deutérium s'effectue selon trois régimes contrôlés d'une part par son relâchement à partir de sites de piégeage d'enthalpies différentes et d'autre part par sa migration au sein des domaines cohérents et à la surface des cristallites et des grains de coke constitutifs du graphite. Quelle que soit la profondeur d'implantation, le relâchement devient significatif au-delà de 600°C, et en ce qui concerne le deutérium le plus profondément implanté, il est quasi total au-delà de 1200°C. L'extrapolation des résultats au comportement du tritium tend à montrer que peu de tritium a été relâché pendant le fonctionnement des réacteurs et que sa purification serait plus efficace sous gaz inerte qu'en présence de vapeur d'eau.