



Migration du deutérium dans le graphite nucléaire Conséquences sur le comportement du tritium en réacteur UNGG et sur la décontamination des graphites irradiés

M. Le Guillou^{a,b}, N. Moncoffre^a, N. Toulhoat^{a,c}, Y. Pipon^{a,d}, N. Béreud^{a,d}, H. Khodja^e

^a IPNL, CNRS/IN2P3 UMR 5822, UCBL, Université de Lyon – F-69622 VILLEURBANNE

^b Andra, DRD/CM – F-92298 CHÂTENAY-MALABRY

^c CEA/DEN, Centre de Saclay – F-91191 GIF-SUR-YVETTE

^d IUT Lyon 1, UCBL, Université de Lyon – F-69622 VILLEURBANNE

^e LEEL, CEA/DSM/IRAMIS/NIMBE, UMR 3299 SIS2M, Centre de Saclay – F-91191 GIF-SUR-YVETTE

XIV^{es} Journées Nationales de Radiochimie et de Chimie Nucléaire

IPN Orsay – 12 septembre 2014

1. Contexte de l'étude

- La filière Uranium Naturel-Graphite-Gaz (UNGG)
- Démantèlement et gestion des graphites irradiés
- Objectifs de l'étude

2. Procédure d'étude des effets thermiques sur le comportement du ^2H dans le graphite nucléaire

3. Résultats expérimentaux

- Etude sous atmosphère inerte
- Etude sous gaz caloporteur UNGG
- Etude en présence de vapeur d'eau

4. Principales conclusions

La filière Uranium Naturel-Graphite-Gaz (UNGG)

SLA1 (EDF) 1969 - 1990 480 MWe

SLA2 (EDF) 1971 - 1992 515 MWe



BUA1 (EDF) 1972 - 1994 540 MWe



St-Laurent-des-Eaux

Chinon

Bugey

Marcoule

Vandellòs



G1 (CEA) 1956 - 1968 2 MWe

G2 (CEA) 1958 - 1980 38 MWe

G3 (CEA) 1959 - 1984 38 MWe

CHA1 (EDF) 1963 - 1973 70 MWe

CHA2 (EDF) 1965 - 1985 210 MWe

CHA3 (EDF) 1966 - 1990 365 MWe



Vandellòs I 1972 - 1989 515 MWe

La filière Uranium Naturel-Graphite-Gaz (UNGG)

Élément combustible | Uranium naturel métallique (0,72 % ²³⁵U)

Modérateur neutronique | Graphite nucléaire

Gaz caloporteur | 97,5 % CO₂ + 2,5 % CO + CH₄ / H₂ / O₂ / H₂O

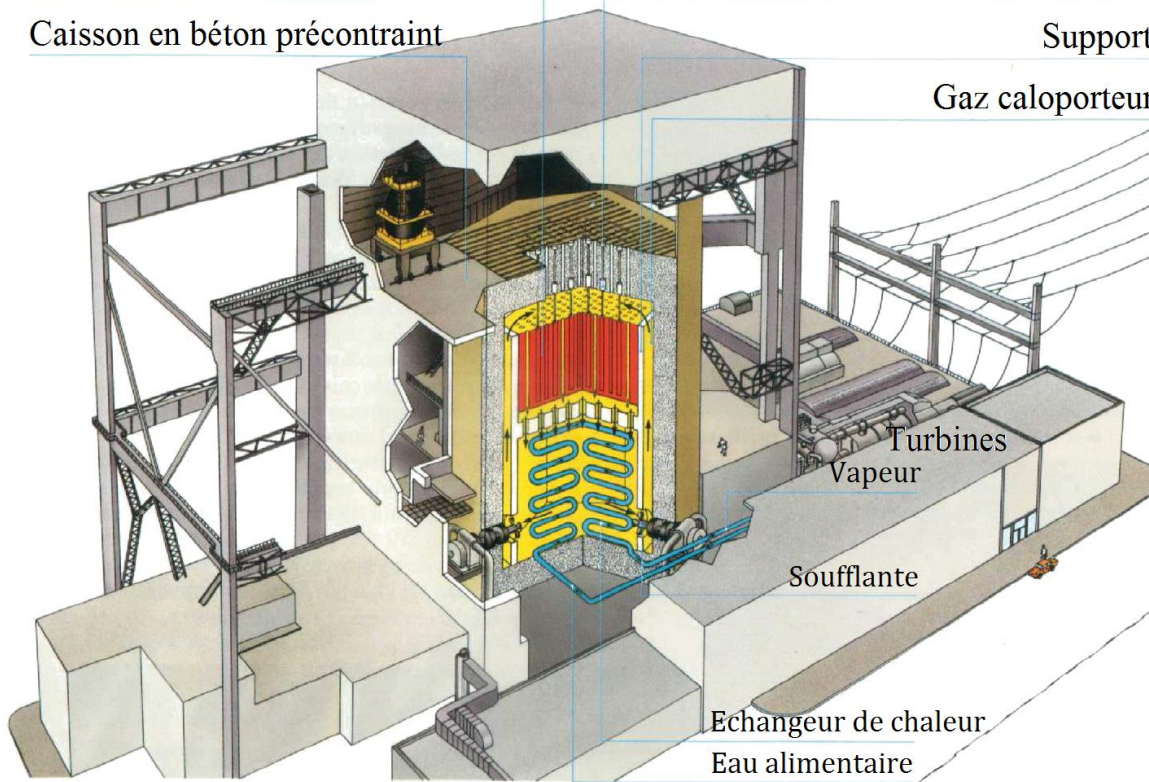
Empilement graphite et barres de combustible

Caisson en béton précontraint

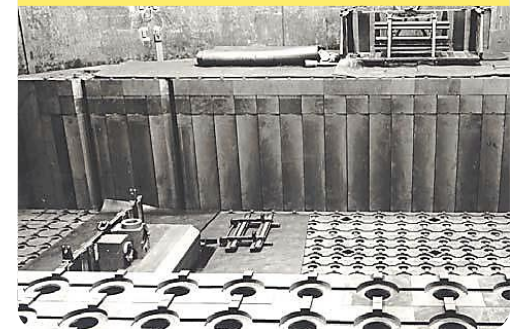
Barres de contrôle

Support

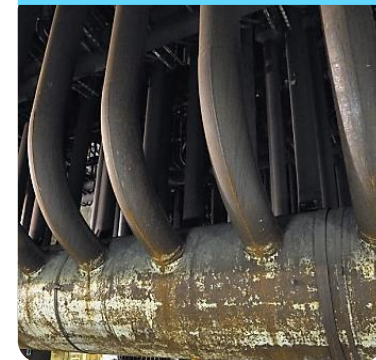
Gaz caloporteur



Circuit primaire (gaz caloporteur)

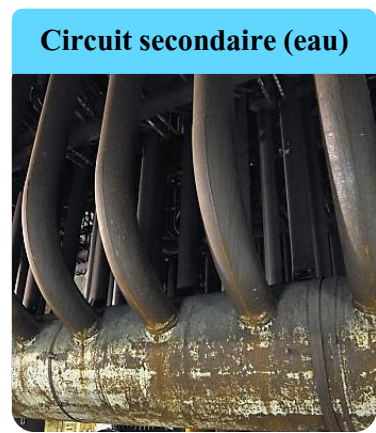
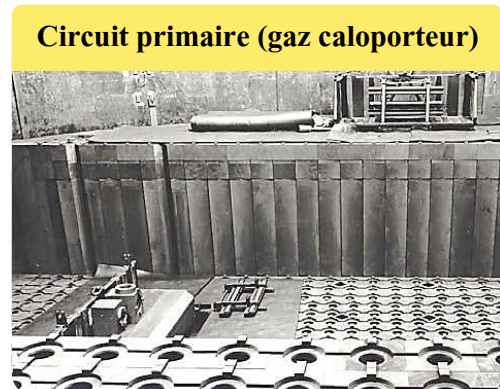
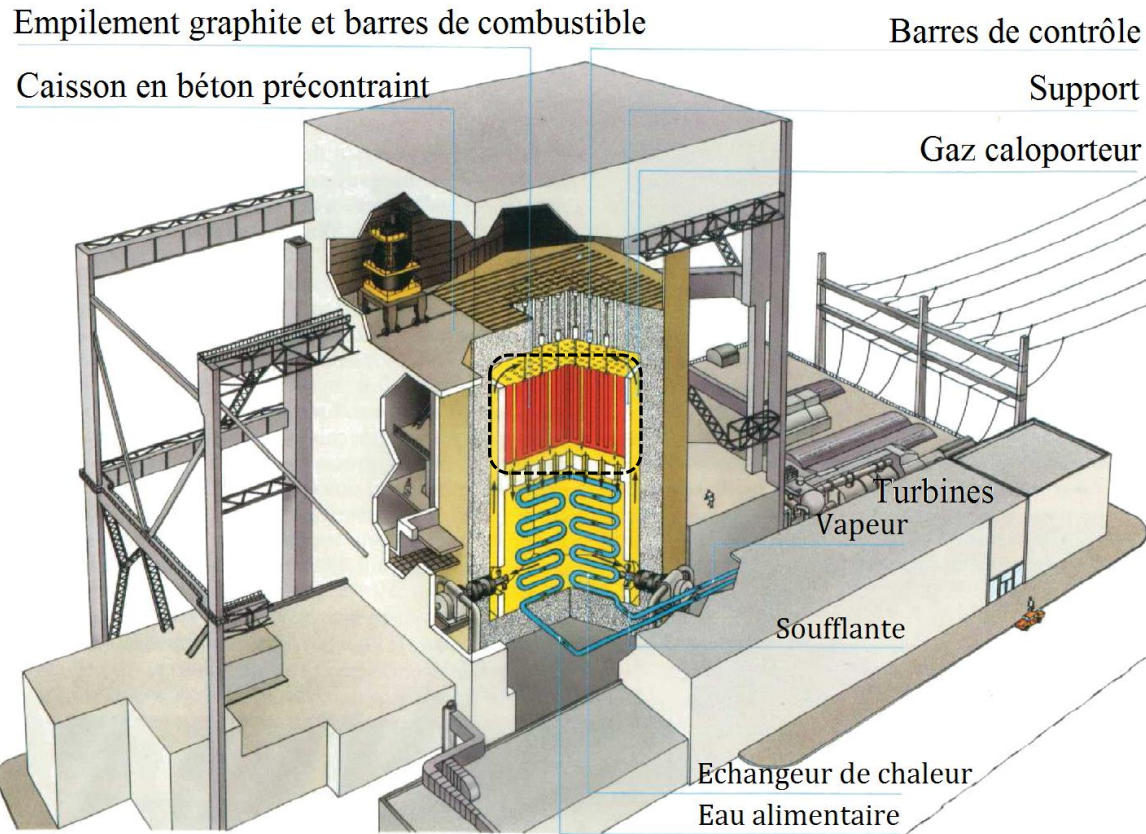


Circuit secondaire (eau)



La filière Uranium Naturel-Graphite-Gaz (UNGG)

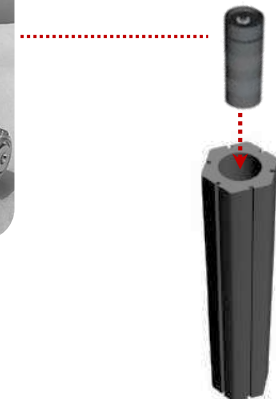
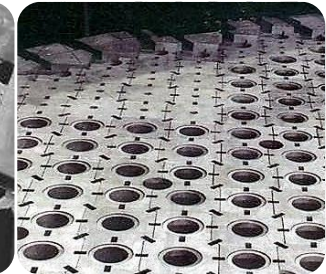
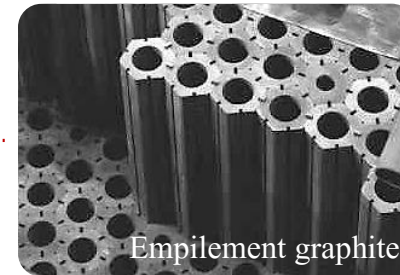
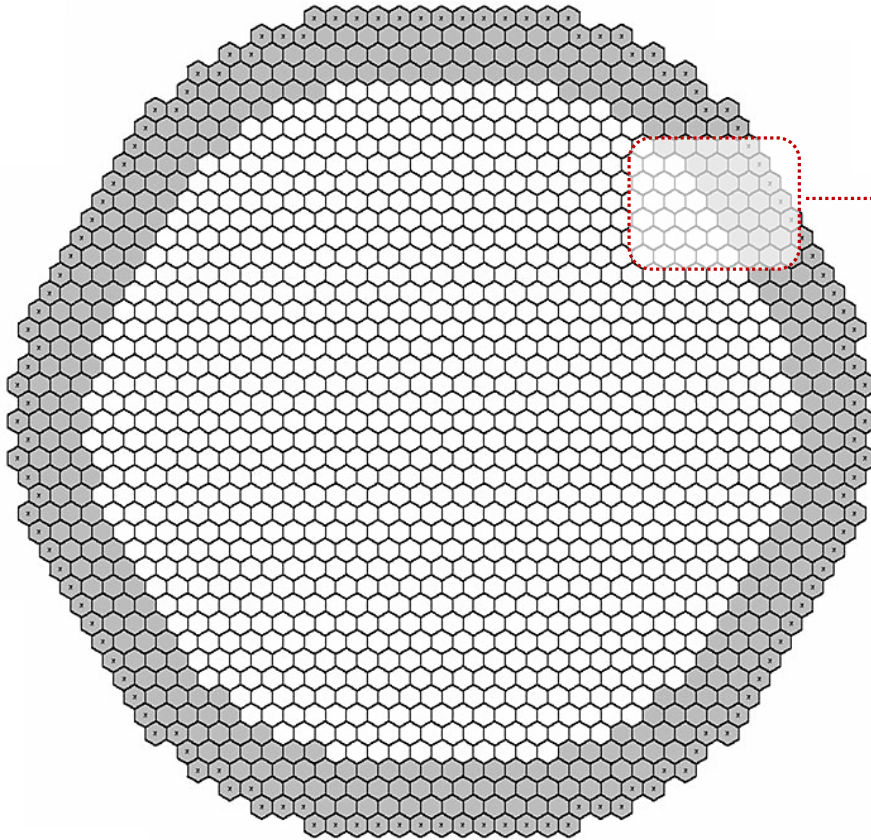
- Elément combustible* | Uranium naturel métallique (0,72 % ²³⁵U)
- Modérateur neutronique* | **Graphite nucléaire**
- Gaz caloporteur* | 97,5 % CO₂ + 2,5 % CO + CH₄ / H₂ / O₂ / H₂O



Réacteur SLA2

La filière Uranium Naturel-Graphite-Gaz (UNGG)

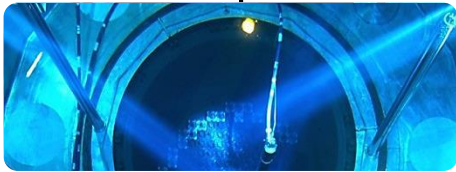
- Elément combustible* | Uranium naturel + Gaine Mg/Zr + Chemise en graphite
- Modérateur neutronique* | **Empilement cylindrique** (h ~ 10 m – Ø ~ 15 m)
- Gaz caloporteur* | Circulation verticale entre chemise et gaine



Démantèlement et gestion des graphites irradiés

1994
(BUA1)

Mise à l'Arrêt Définitif (MAD)



Niveau I | Déchargement du combustible
Vidange des circuits

2014

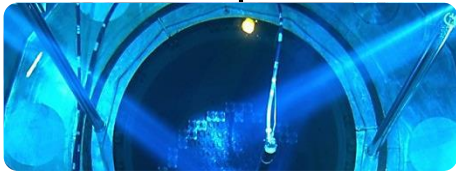


Niveau II | Décontamination des structures
Déconstruction des bâtiments (hors bâtiment réacteur)

Démantèlement et gestion des graphites irradiés

1994
(BUA1)

Mise à l'Arrêt Définitif (MAD)



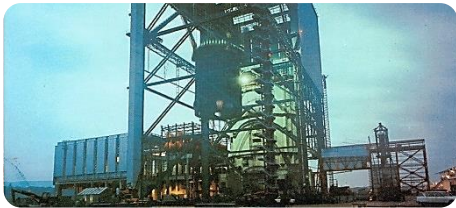
Niveau I | Déchargement du combustible
Vidange des circuits

2014



Niveau II | Décontamination des structures
Déconstruction des bâtiments (hors bâtiment réacteur)

2022



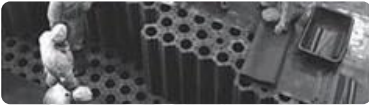
Niveau III | Démantèlement du **bloc réacteur** et des échangeurs thermiques

~ 23 000 t de graphites irradiés (déchets FA-VL)

Démantèlement et gestion des graphites irradiés

Période ^3H ~ 12 ans → RN non dimensionnant pour le stockage des graphites

Mais...



Démantèlement | **Risque de dégazage** lors de la découpe des empilements



Stockage | **Risque de dégazage** lors de la manutention des colis
Marquage environnemental après fermeture des ouvrages

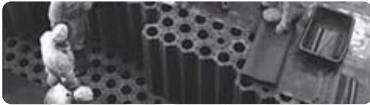


Décontamination | Réduction de la **forte activité initiale en ^3H**
(+ ^{14}C , ^{36}Cl ...)

Démantèlement et gestion des graphites irradiés

Période ^3H ~ 12 ans → RN non dimensionnant pour le stockage des graphites

Mais...



Démantèlement | **Risque de dégazage** lors de la découpe des empilements



Stockage | **Risque de dégazage** lors de la manutention des colis
Marquage environnemental après fermeture des ouvrages



Décontamination | Réduction de la **forte activité initiale en ^3H**
(+ ^{14}C , ^{36}Cl ...)

Proposition d'un scénario de gestion d'ici 2015

Stockage direct à faible profondeur ?

Tri des déchets (selon activité) avant stockage ? Décontamination ?

Objectifs de l'étude

Comprendre le comportement migratoire du tritium dans le graphite nucléaire

En réacteur UNGG | Comportement thermique du ^3H sous **gaz caloporteur**
Effets de la **corrosion radiolytique** (radiolyse du caloporteur)
et de l'**irradiation** du graphite



Rôle de la **structure du graphite** (grains, liant, porosité, etc)

Teneur et localisation du ^3H (inventaire)

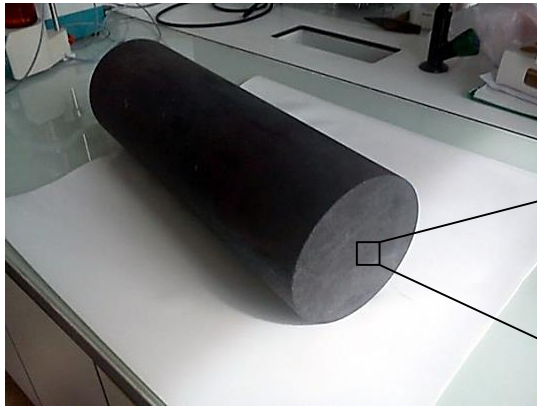
Après MAD | Comportement thermique du ^3H en présence de **vapeur d'eau**



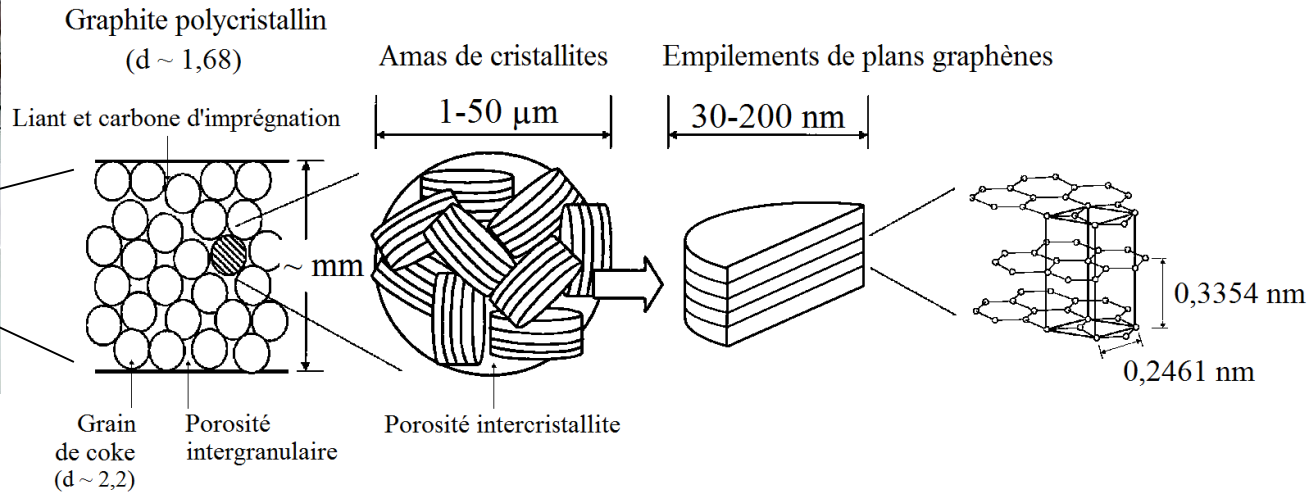
Conséquences sur les opérations de démantèlement, de décontamination et de stockage

Procédure expérimentale d'étude des effets thermiques

Préparation des échantillons | Découpe (pavés ~ 0,2 cm³) | Polissage & dégazage



Modérateur de SLA2 (EDF)
Graphite nucléaire vierge



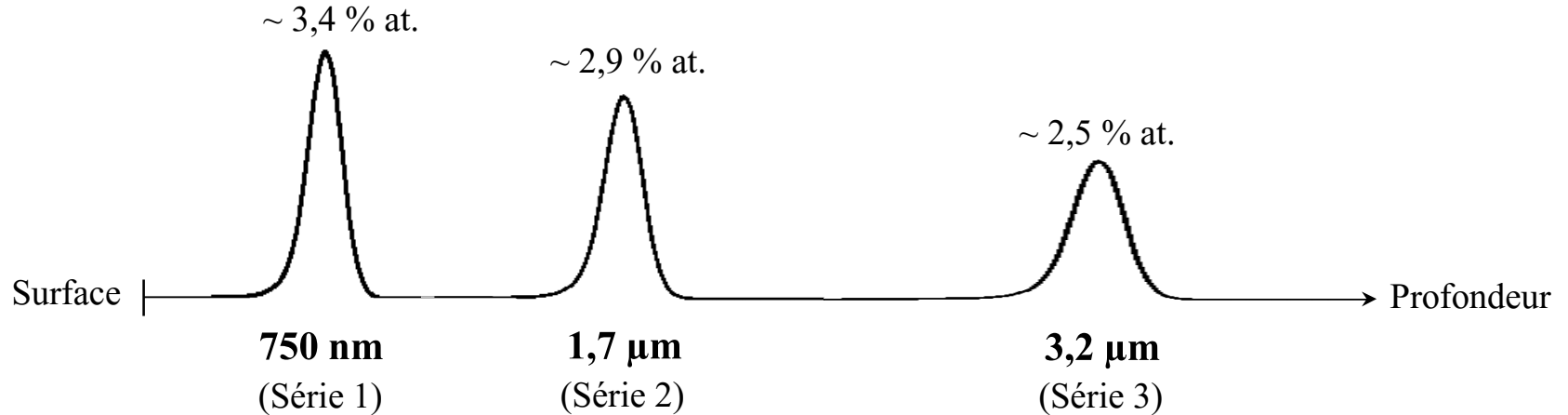
Porosité ~ 32 % (25 % ouverte – 7 % fermée)

Procédure expérimentale d'étude des effets thermiques

Préparation des échantillons | Découpe (pavés $\sim 0,2 \text{ cm}^3$) | Polissage & dégazage

Implantation ionique en ^2H | RT sous vide | **3 profondeurs d'implantation**

Simulation de la **présence de tritium** (profils gaussiens)



Procédure expérimentale d'étude des effets thermiques

Préparation des échantillons | Découpe (pavés ~ 0,2 cm³) | Polissage & dégazage

Implantation ionique en ²H | RT sous vide | **3 profondeurs** d'implantation

Traitements thermiques

Atmosphères **inertes** (Ar, He, vide secondaire)

Atmosphères **oxydantes** (gaz caloporteur, gaz humide)

Procédure expérimentale d'étude des effets thermiques

Préparation des échantillons | Découpe (pavés $\sim 0,2 \text{ cm}^3$) | Polissage & dégazage

Implantation ionique en ^2H | RT sous vide | **3 profondeurs** d'implantation

Traitements thermiques

Atmosphères **inertes** (Ar, He, vide secondaire)

Atmosphères **oxydantes** (gaz caloporteur, gaz humide)

Analyse du ^2H par réaction nucléaire $^2\text{H}(^3\text{He},p)^4\text{He}$ (NRA)

Profilométrie en **macrofaisceau** | IPNL

Cartographies par **microsonde** nucléaire | LEEL – CEA Saclay

Procédure expérimentale d'étude des effets thermiques

Préparation des échantillons | Découpe (pavés $\sim 0,2 \text{ cm}^3$) | Polissage & dégazage

Implantation ionique en ^2H | RT sous vide | **3 profondeurs** d'implantation

Traitements thermiques

Atmosphères **inertes** (Ar, He, vide secondaire)

Atmosphères **oxydantes** (gaz caloporteur, gaz humide)

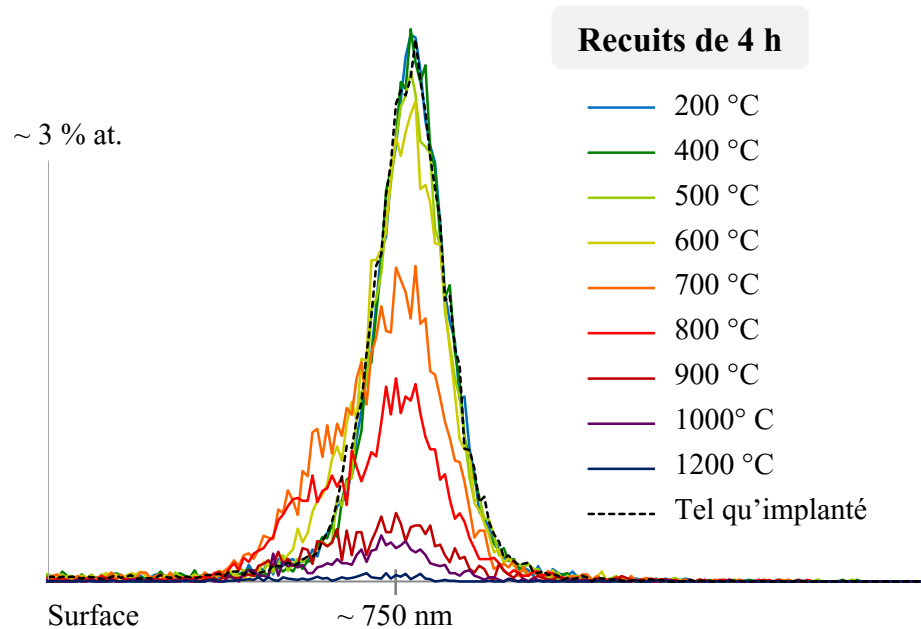
Analyse du ^2H par réaction nucléaire $^2\text{H}(^3\text{He},p)^4\text{He}$ (NRA)

Profilométrie en **macrofaisceau** | IPNL

Cartographies par **microsonde** nucléaire | LEEL – CEA Saclay

Caractérisations structurales | Microscopie optique | MEB | MET | Raman

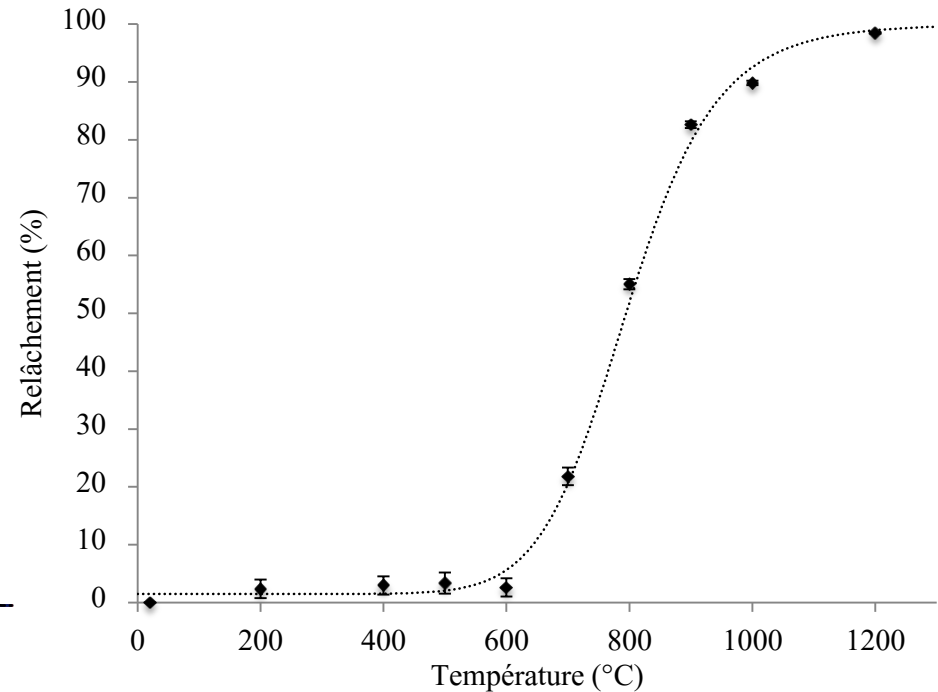
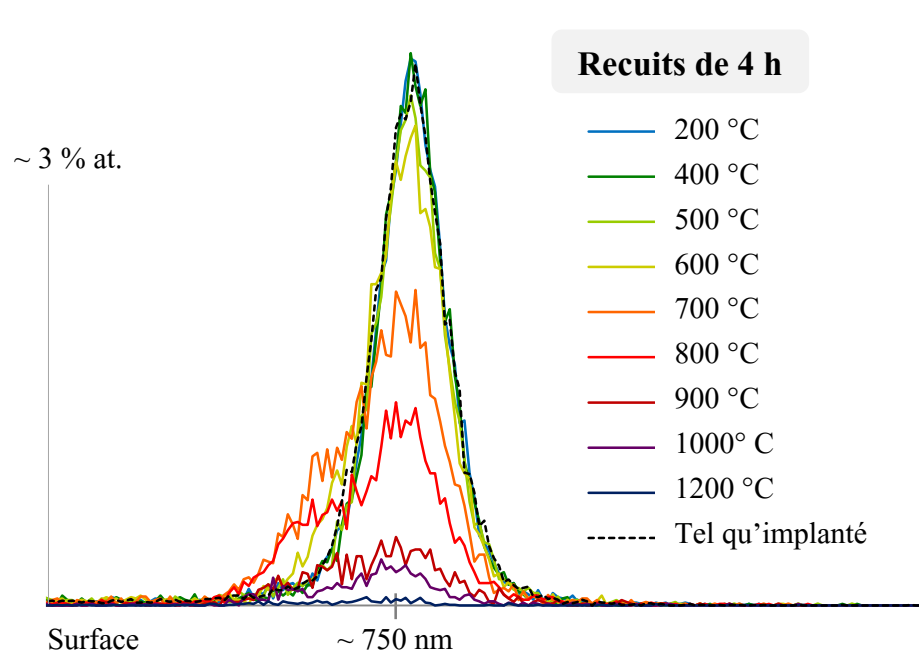
Comportement thermique du ^2H sous atmosphère inerte



Relâchement prédominant

+ Diffusion en direction de la surface

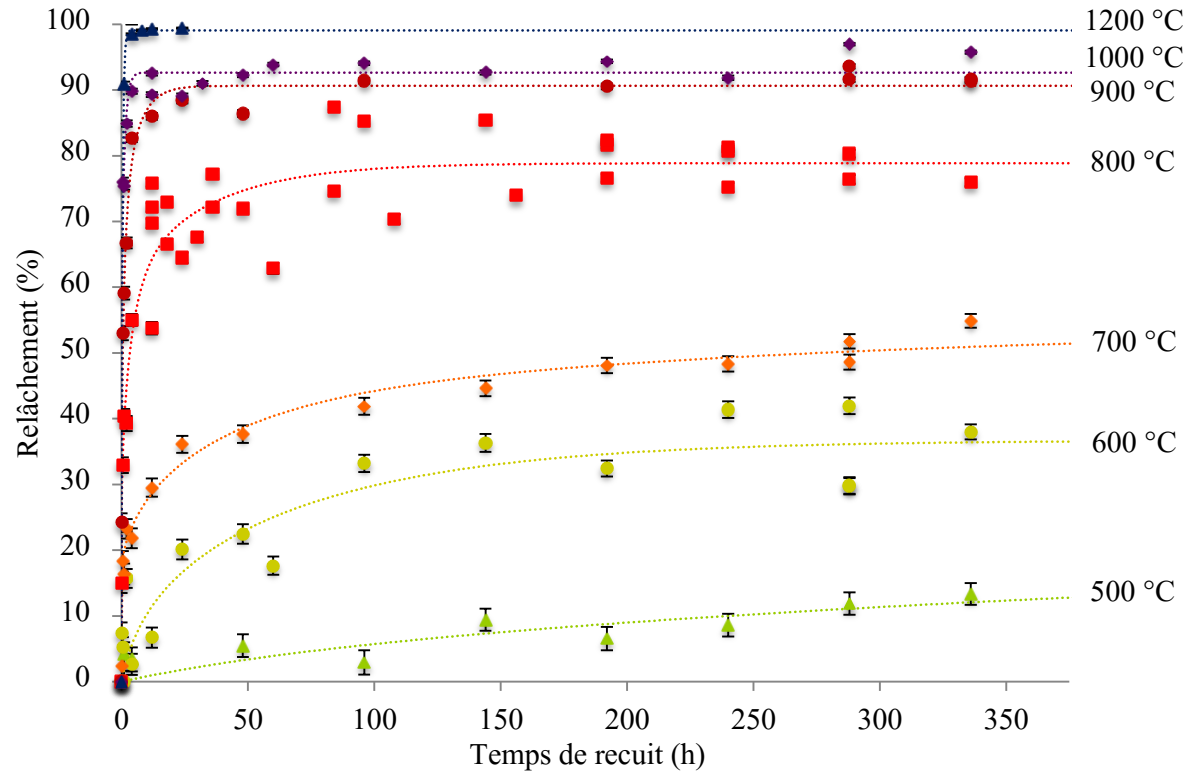
Comportement thermique du ²H sous atmosphère inerte



Relâchement prédominant
+ Diffusion en direction de la surface

4 h sous inerte | Début du relâchement ~ **500-600 °C**
Quasi linéaire jusqu'à ~ **900 °C**
Total vers **1200 °C**

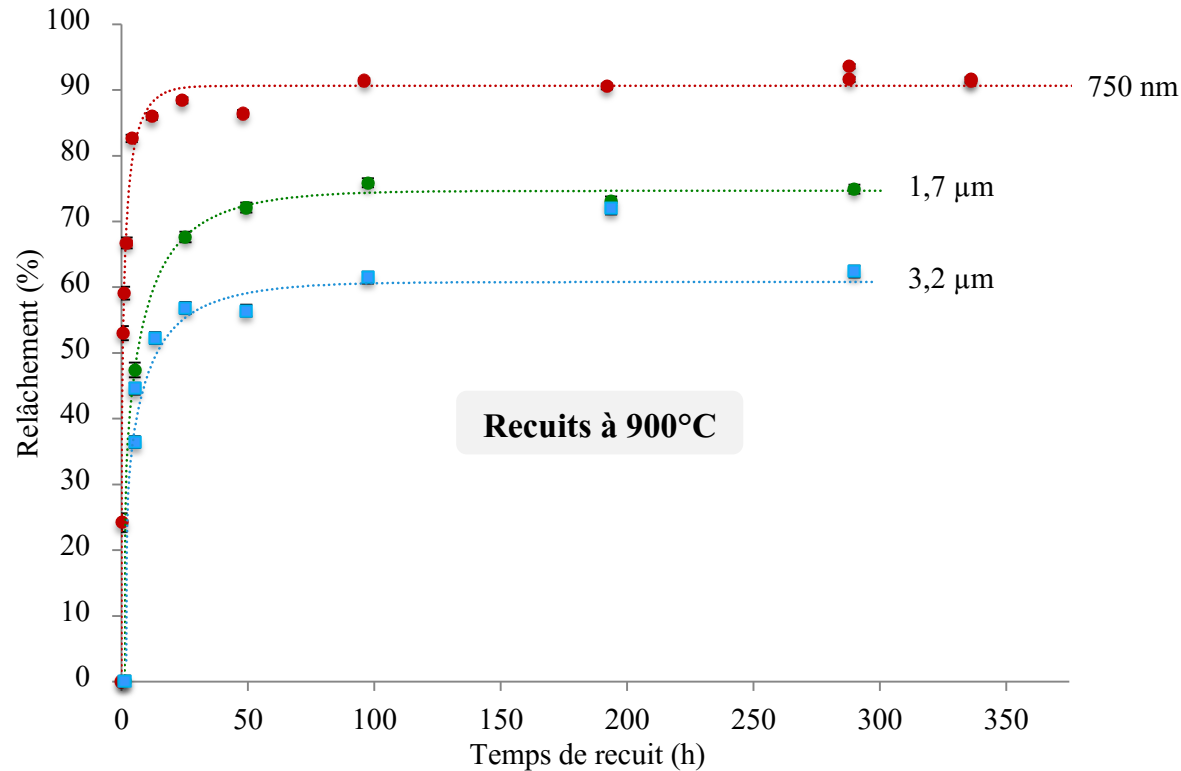
Comportement thermique du ^2H sous atmosphère inerte



3 régimes de relâchement

- Régime initial* | < quelques min / h
- Régime transitoire* | < quelques h / dizaines d'heures
- Régime de saturation* | > quelques h / dizaines d'heures

Comportement thermique du ^2H sous atmosphère inerte



Relâchement plus important à proximité de la surface

750 nm | Saturation ~ 90 %

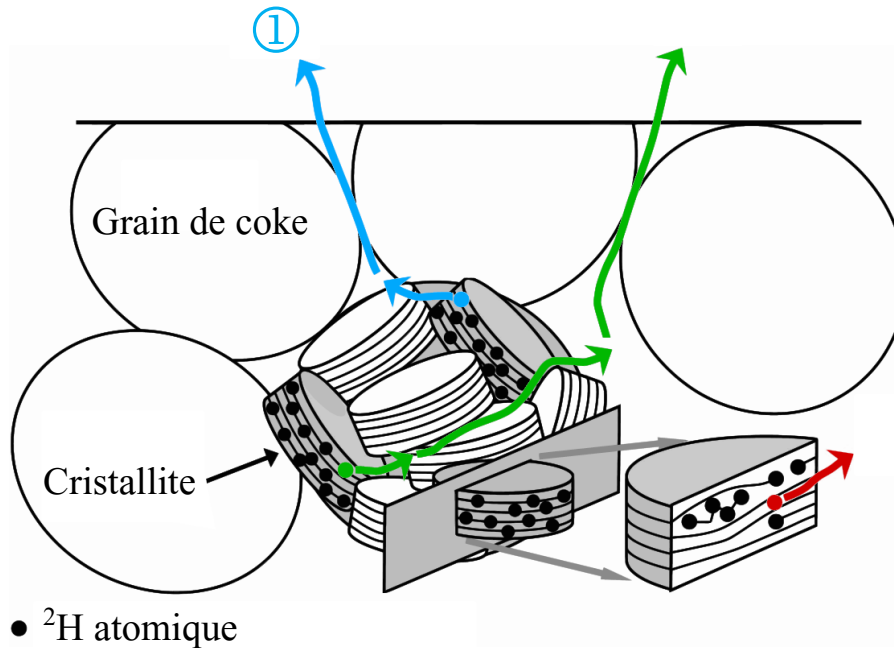
1,7 µm | Saturation ~ 75 %

3,2 µm | Saturation ~ 60 %

Comportement thermique du ^2H sous atmosphère inerte

3 chemins de migration

① Dépiégeage du ^2H retenu à **proximité des surfaces libres** avec relâchement quasi instantané dans la porosité ouverte (3 eV)

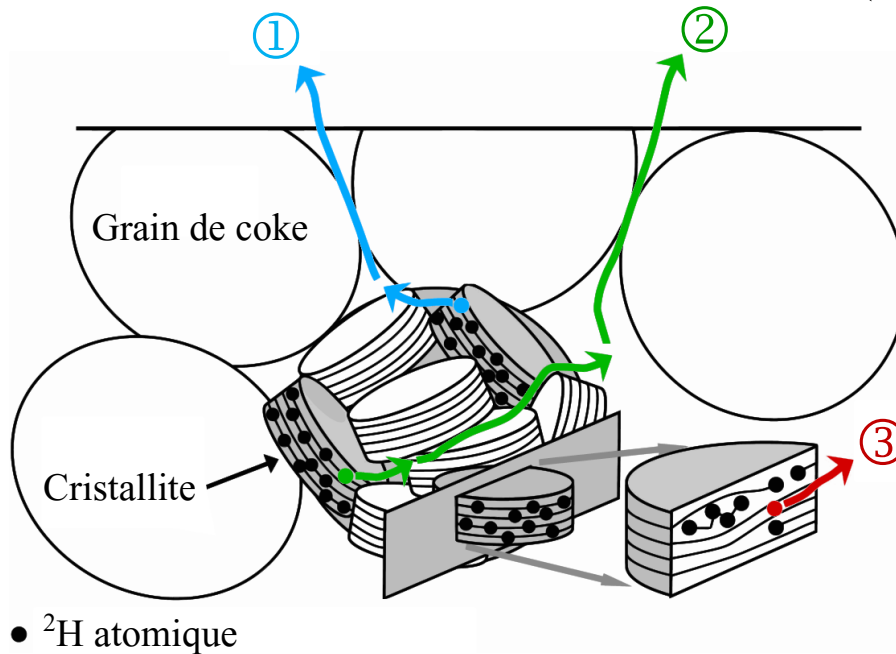


Comportement thermique du ^2H sous atmosphère inerte

3 chemins de migration

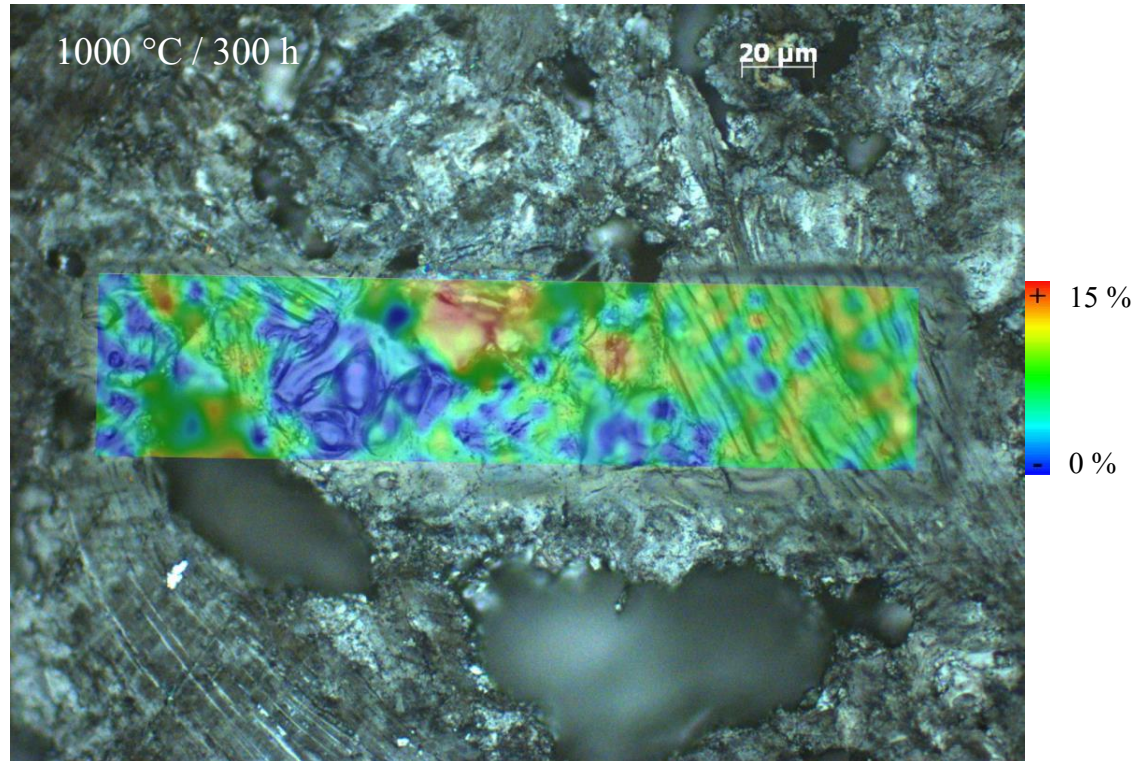
① Dépiégeage du ^2H retenu à **proximité des surfaces libres** avec relâchement quasi instantané dans la porosité ouverte (3 eV)

② Dépiégeage du ^2H retenu à la **surface des cristallites** et diffusion intragranulaire apparente (dissociations-recombinaisons – 1,4 eV)



③ Dépiégeage du ^2H retenu en **position interstitielle** et diffusions interplanaire + intragranulaire (1,4 eV)

Comportement thermique du ^2H sous atmosphère inerte

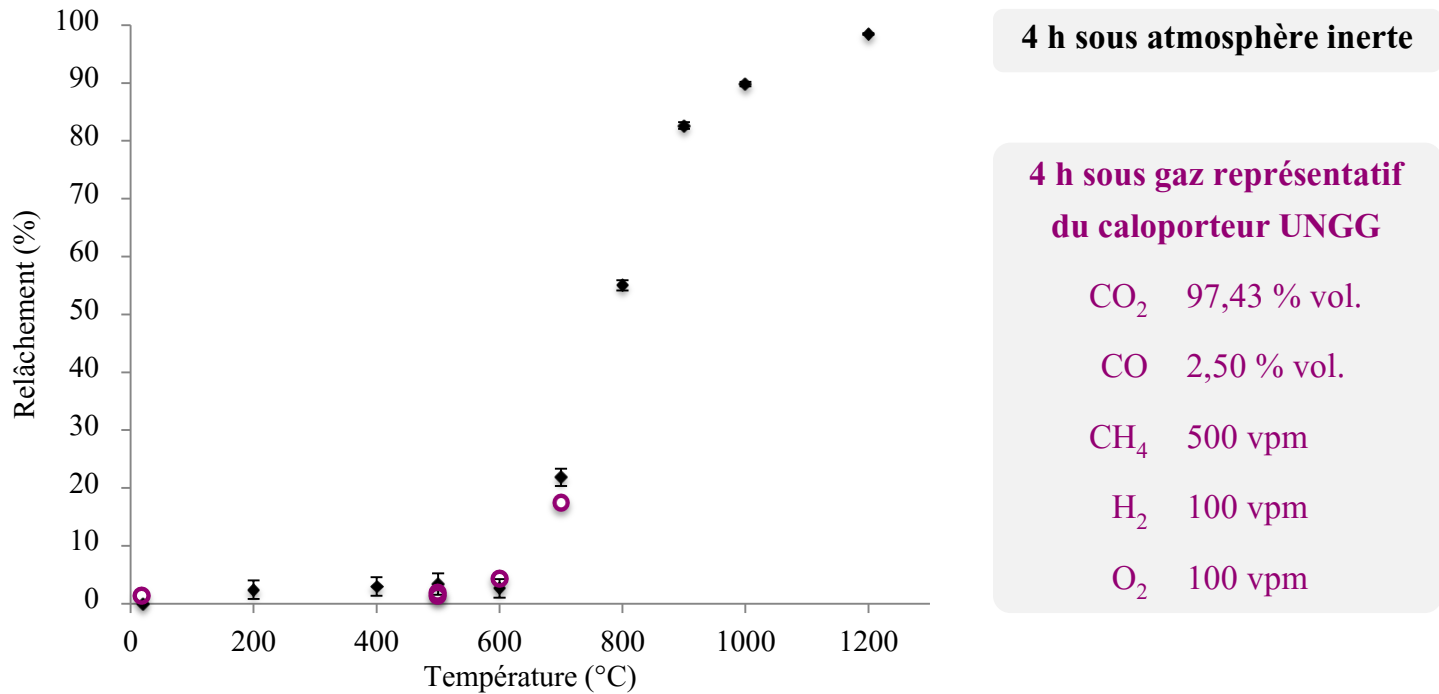


Essentiel du ^2H retenu dans les grains

1000 °C / 300 h | Grain ~ 5 % ^2H retenu / « Points chauds » > 10 %

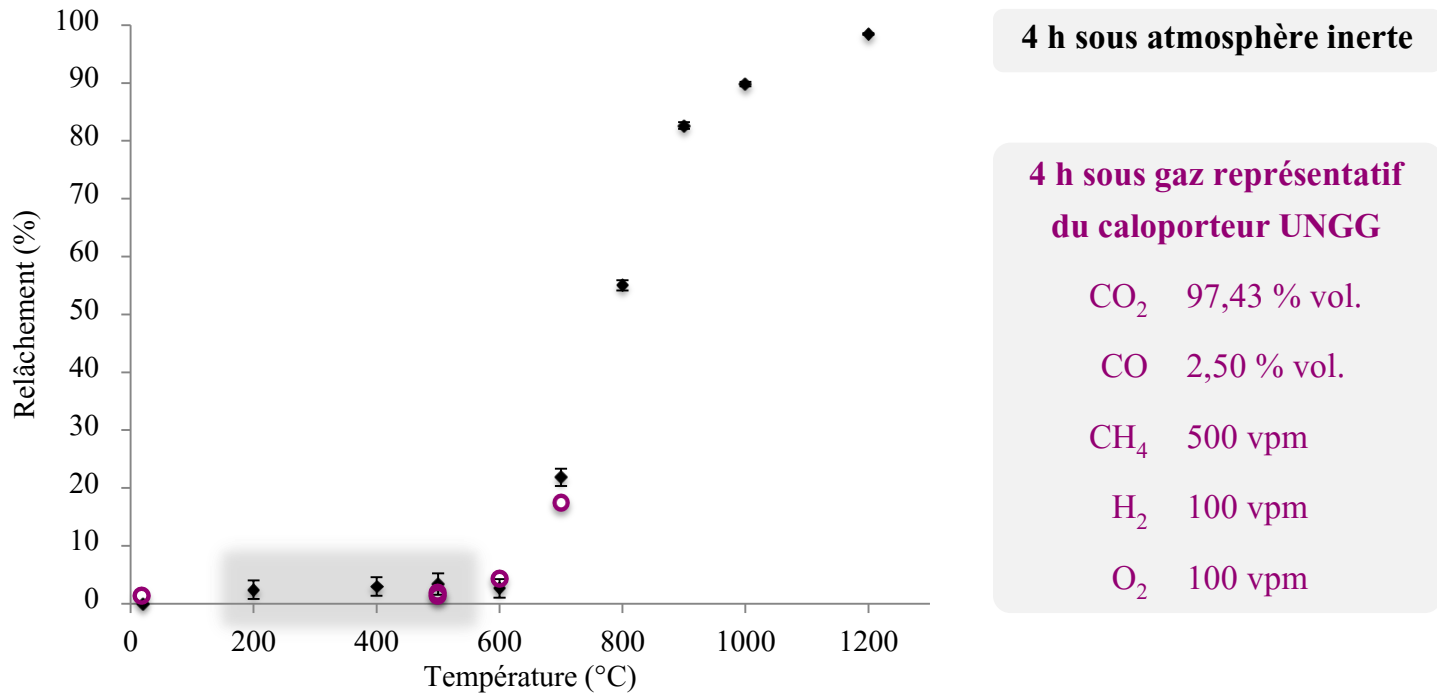
Liant < 1 % ^2H retenu

Comportement thermique du ^2H sous caloporteur UNGG



Relâchements similaires sous atmosphère inerte et sous gaz caloporteur

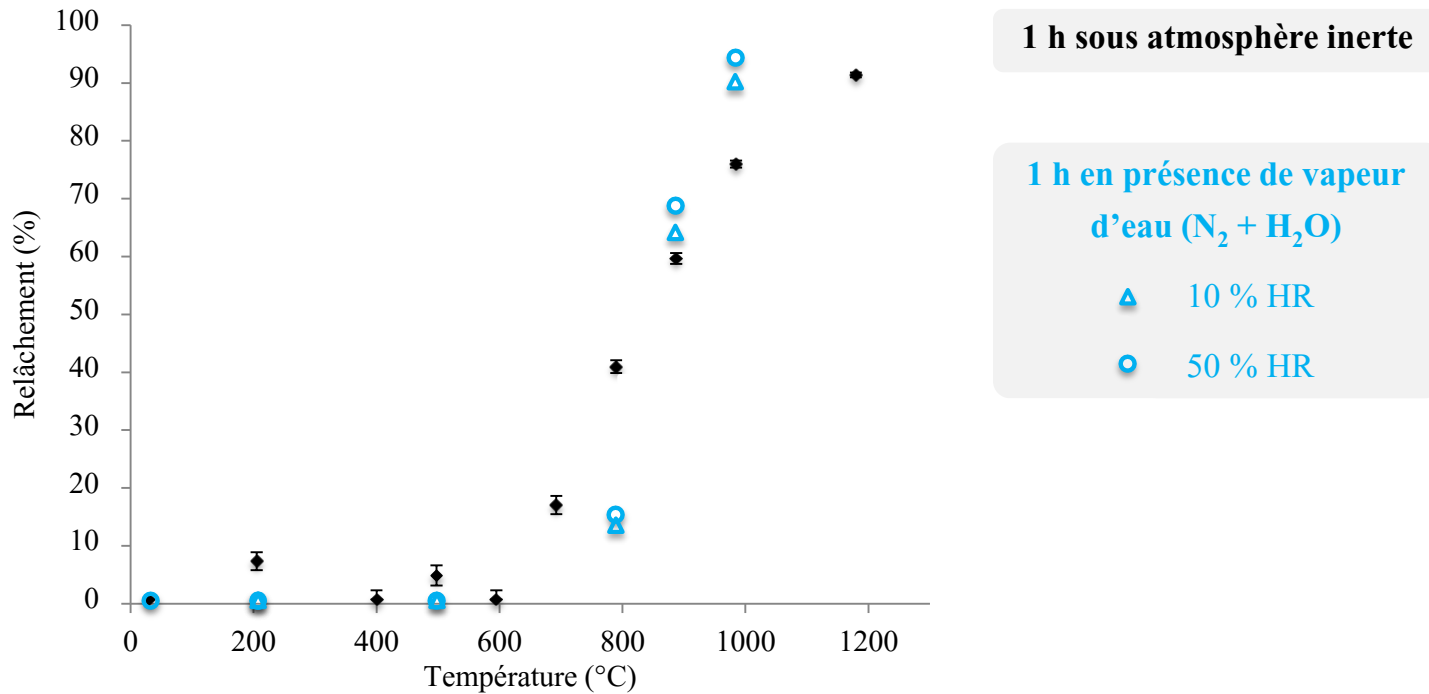
Comportement thermique du ^2H sous caloporteur UNGG



Relâchements similaires sous atmosphère inerte et sous gaz caloporteur

Extrapolation au ^3H | Relâchement thermique en réacteur < 10 % (~ h) / 30 % (11 ans EPP)
 Essentiellement localisé à **proximité des surfaces libres**
 Effets de l'**irradiation neutronique** et de la **corrosion radiolytique** ?

Comportement thermique du ^2H en présence de vapeur d'eau

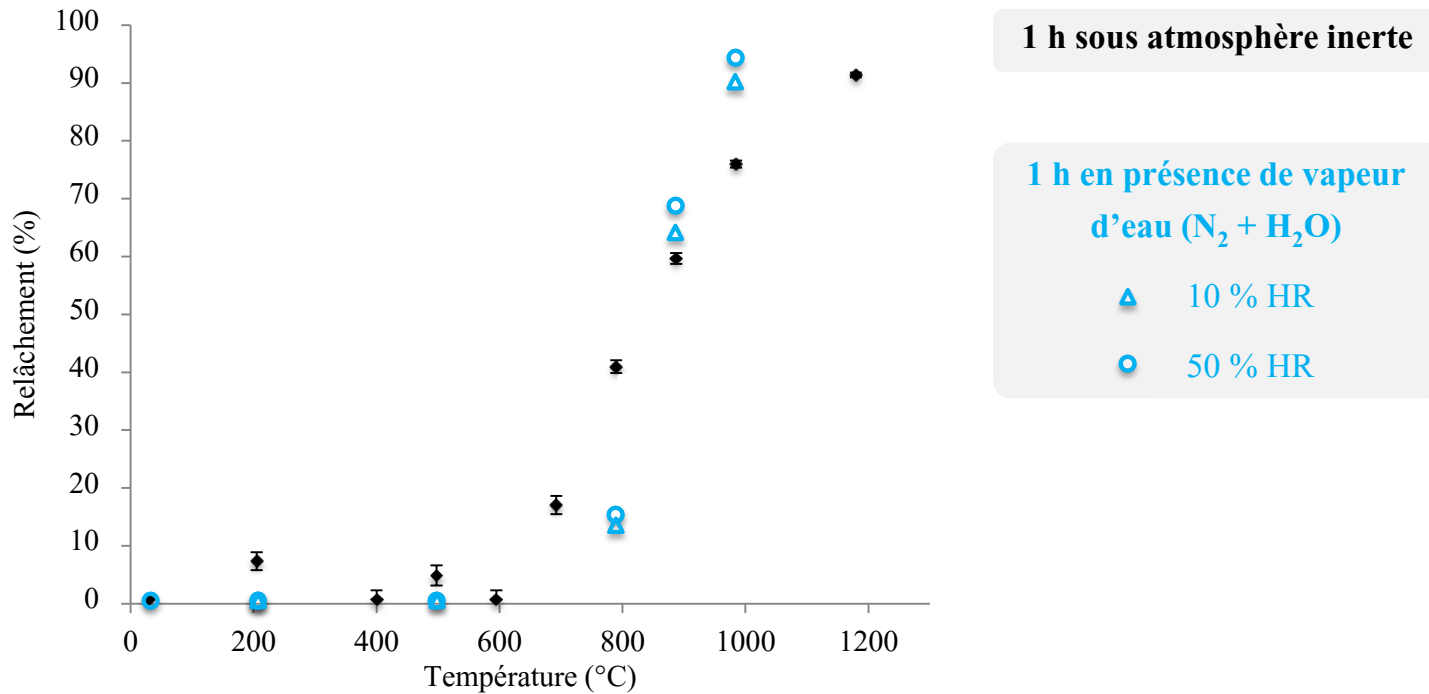


Relâchements sous vapeur d'eau fortement dépendant de la température

< 500 °C (jusqu'à 12 h) | **Aucun relâchement** observé (idem atmosphère inerte)

800 °C (1 h) | Relâchement **plus faible sous H_2O** (liaisons C dues à l'oxydation ?)

Comportement thermique du ^2H en présence de vapeur d'eau



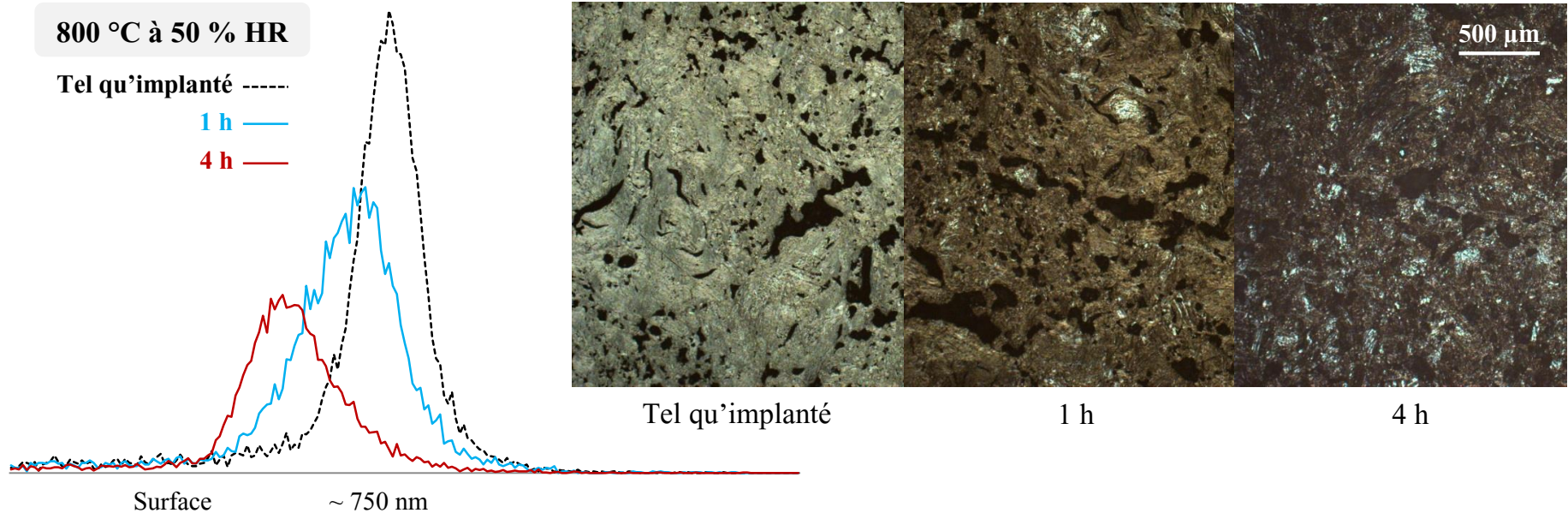
Relâchements sous vapeur d'eau fortement dépendant de la température

< 500 °C (jusqu'à 12 h) | **Aucun relâchement** observé (idem atmosphère inerte)

800 °C (1 h) | Relâchement **plus faible sous H_2O** (liaisons C dues à l'oxydation ?)

800 °C (4 h) à 1000 °C (1 h) | **Consommation de la zone implantée** (gazéification de la surface)

Comportement thermique du ^2H en présence de vapeur d'eau



Relâchements sous vapeur d'eau fortement dépendant de la température

< 500 °C (jusqu'à 12 h) | **Aucun relâchement** observé (idem atmosphère inerte)

800 °C (1 h) | Relâchement **plus faible** sous H_2O (liaisons C dues à l'oxydation ?)

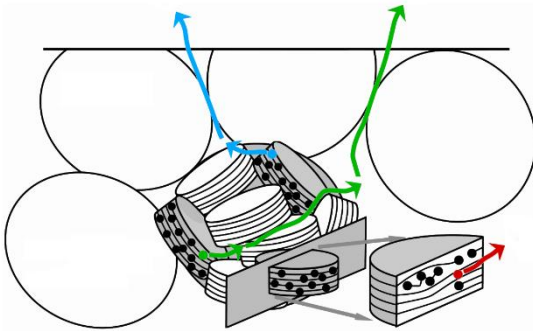
800 °C (4 h) à 1000 °C (1 h) | **Consommation de la zone implantée** (gazéification de la surface)

Principales conclusions

Migration du 2H | Relâchement > **500-600 °C** / **Total > 1200 °C**

3 régimes de relâchement (dépendants de la température)

Relâchement préférentiel à **proximité des surfaces libres** et dans les **zones de liant**



Extrapolation au 3H | Relâchement thermique en réacteur < **30 % en 11 ans EPP**

Relâchement **moins important en présence de vapeur d'eau**
(décontamination en 3H plus efficace sous atmosphère inerte)



Merci de votre attention !