




Vitrifier les déchets nucléaires

PAR MARION CHAMPION

Aldo Russello, technicien, et Florent Lemont, chef du Laboratoire des procédés innovants de conditionnement, expliquent le procédé d'incinération-vitrification Shiva

Ils sont plus d'une centaine à travailler sur la vitrification. Ils élaborent des verres, conçoivent des procédés ou étudient les effets du temps.

Elle est chimiste. Elle élabore les formules des verres qui confineront les déchets des combustibles usés des réacteurs. Avec ses travaux, Sophie Schuller constitue le point de départ d'une longue chaîne de métiers et de compétences qui font de Marcoule le premier pôle de recherche

sur les verres radioactifs. Car c'est à Marcoule que le procédé de vitrification, actuellement utilisé dans les usines d'Areva à La Hague, est né. Ici, chercheurs, techniciens et ingénieurs s'attachent à formuler des verres, les caractériser, les optimiser, et à mettre au point les technologies qui permettent de fusionner verres et déchets pour fournir le colis de déchets vitrifiés. « Lorsque j'ai été embauché, en 1978, j'étais le seul physicien entouré de chimistes, se souvient Étienne Vernaz, assistant scientifique du département. Au fil des ans, le CEA a diversifié ses études. De 

III nouvelles se sont ajoutées au programme de vitrification, comme celles sur le comportement à long terme des verres, entamées au début des années 1980. Avec ces nouvelles études sont apparus de nouveaux besoins, de nouvelles compétences et les métiers liés à la vitrification ont évolué. » Aujourd'hui, aux côtés des chimistes, travaillent des physicochimistes des matériaux, des géologues, des géochimistes, des modélisateurs, des mathématiciens et des informaticiens... Au total, ils sont plus d'une centaine à travailler sur le verre au Département d'étude du traitement

et du conditionnement des déchets et se répartissent autour de quatre grands axes d'étude. « Ceux qui élaborent les formules des verres adaptés aux différents types de déchets. Ceux qui travaillent sur le creuset chaud et la nouvelle technologie, dite du creuset froid, installée à La Hague en 2010. Ceux qui étudient le comportement des verres à long terme. Et enfin, ceux qui mettent au point les procédés du futur, dont l'un des avantages serait, par exemple, de traiter un spectre plus large de déchets », poursuit Étienne Vernaz. Les métiers et les recherches sur la vitrification

Vêtu d'aluminium des pieds à la tête, Sophie Schuller s'apprête à couler un liquide jaune orangé sur une plaque de métal. Un liquide à l'aspect de lave en fusion qui n'est autre que du verre fondu, tout juste sorti du four.

Nous sommes au Laboratoire d'étude et de développement de matrices de conditionnement, où sont imaginées et élaborées les formules des verres de confinement des déchets. Aux côtés d'une vingtaine d'ingénieurs et de techniciens, Sophie Schuller recherche la formule du verre le plus adapté au confinement, c'est-à-dire le plus capable d'intégrer les radioéléments des déchets. « Au laboratoire, nous travaillons sur trois formules de verre pour trois types de déchets : les produits de fission résultant du traitement des combustibles issus des réacteurs à eau légère et des réacteurs graphite-gaz, et les effluents de rinçage issus du démantèlement de l'usine UP2 de La Hague. Pour chaque formule notre objectif est d'obtenir un verre homogène, stable sur le long terme et réalisable à l'échelle industrielle. » Sa spécialité ? Les verres adaptés aux combustibles usés des réacteurs à eau légère. « Je cherche à optimiser la formule existante pour une future utilisation en creuset froid. Au départ, l'idée naît sur le papier. L'industriel nous fournit un cahier des charges précisant le taux de déchets qui sera contenu dans le verre. Je développe la formule et commence le travail de paillasse pour obtenir un verre



LA FORMULE DU VERRE

“ Si sa structure est bien homogène, la formulation est validée ”

SOPHIE SCHULLER vérifie la qualité du verre

“simulé”, c'est-à-dire non radioactif. Pour élaborer le verre, je mélange différents composés chimiques, sous forme de poudre, selon les propriétés que je souhaite obtenir, et les chauffe dans un four, entre 1 100 °C et 1300 °C. Après trois heures, je coule le verre pour le refroidir et l'analyse pour une première validation de sa qualité : de

nombreuses méthodes de caractérisation très pointues sont mises en œuvre. Si sa structure est bien homogène, la formulation peut être retenue. Il ne reste plus qu'à passer aux essais à l'échelle industrielle. Et c'est à ce stade que nous en sommes pour les verres qui seront réalisés en creuset froid. Tout ce processus de formulation, de sa mise en équation sur papier jusqu'à sa validation industrielle, a pris plus de six ans de recherche. »

Sophie Schuller, chimiste

Bac technologique F6 option chimie – École préparatoire aux grandes écoles math Sup/Spé option chimie) – parcours universitaire jusqu'à la maîtrise de chimie, Université Paul Sabatier à Toulouse – Diplôme d'ingénieur – Physico-chimie des Matériaux à Polytech Montpellier – Doctorat en sciences physiques à l'université de Montpellier

Le Prototype évolutif de vitrification (PEV), concrétisation du projet Areva Vitrification 2010, vitrifie en actif, à La Hague, des effluents réels grâce à la nouvelle technologie de creuset froid. Sur l'un des trois niveaux du prototype s'active Éric Tronche, chercheur en génie des procédés et chargé, pour le Laboratoire de développement des procédés de vitrification, de préparer et d'effectuer les derniers essais. « Des essais réalisés avec des matériaux non radioactifs pour l'instant ! Ils permettent d'optimiser le prototype avant son transfert à l'industriel, et d'établir un dossier de spécifications recensant toutes les conditions à mettre en œuvre pour une production industrielle. Nous simulons, par exemple, des pannes ou des défaillances techniques et cherchons à y apporter des solutions qui pourront servir aux futurs opérateurs. » Ces essais, il les réalise sur un prototype à échelle 1 : « Avec cet équipement, nous pouvons assurer nous-mêmes le transfert à l'industriel puisque nous sommes capables de réaliser des essais en condition réelle produisant des tonnes de verre. »

Le principal atout du laboratoire ? « Notre savoir-faire et une forte demande de notre partenaire industriel. Autour de la future technologie de creuset froid, mais aussi autour du procédé utilisé actuellement à La Hague, le creuset chaud, pour lequel le CEA est bailleur de procédé. »



LES PROCÉDÉS POUR VITRIFIER

“ Apporter des solutions aux futurs opérateurs ”

ÉRIC TRONCHE observe du verre résultant du traitement des combustibles enrichis en molybdène des réacteurs graphite-gaz

Éric Tronche, chercheur en génie des procédés

Bac technologique F6 chimie – DUT de génie chimique, option technologie des industries chimiques – maîtrise des sciences et techniques des procédés physico-chimiques à Toulouse – DEA Génie des procédés à l'ENSI génie chimique de Toulouse – Doctorat Génie des procédés de l'Institut national Polytechnique de Toulouse

évoluent en fonction des besoins scientifiques et industriels. Comme le projet Areva Vitrification 2010 qui a monopolisé nombre de techniciens, chercheurs et ingénieurs, la nouvelle technologie, dite du creuset froid, a été mise au point dans les laboratoires du CEA. Elle permet d'incorporer une plus grande palette de déchets radioactifs dans un même colis et donc de réduire encore le volume des déchets. Elle permettra aussi d'augmenter la capacité de production de l'usine de La Hague. Des atouts attrayants pour l'industriel qui en attend un gain de productivité et un gain financier.

D'autres pays, comme les États-Unis, sont intéressés par nos recherches et notamment par le creuset froid. Cette technologie pourrait donc dès demain devenir une référence en matière de vitrification sur la scène internationale. » ■

Verre ou ciment, quel déchet pour quel conditionnement ?

Le verre pour les déchets de haute activité et peut-être bientôt pour les déchets de moyenne activité à vie longue.

Le ciment pour les déchets de faible ou moyenne activité.

Les procédés de vitrification

Le creuset chaud

Les produits de fission sont d'abord calcinés puis incorporés à de la fritte de verre et fondus dans un pot métallique chauffé à environ 1 100 °C. Le mélange obtenu est coulé dans un conteneur en acier.

Le creuset froid

Il n'y a plus de pot métallique en contact direct avec le verre fondu. Dans le creuset froid, c'est le verre lui-même qui joue le rôle d'auto-creuset. Il est solide car refroidi en périphérie et en fusion à l'intérieur car chauffé par induction.

Les procédés du futur comme Shiva

Dans une enceinte, deux torches à plasma brûlent les déchets radioactifs introduits sur un bain de verre maintenu en fusion dans un creuset froid. Les radioéléments s'intègrent progressivement dans le verre, qui est ensuite coulé pour être conditionné en colis.

Que deviendront les verres de confinement des déchets nucléaires, dans plusieurs milliers d'années? C'est la question que se posent Thierry Marcillat et Christophe Jegou, au Laboratoire d'étude des matériaux et des procédés actifs, situé dans l'installation Atalante. Leur recherche? Le comportement à long terme des verres radioactifs. « Plus précisément, il s'agit de mieux connaître l'influence des dégâts d'auto-irradiation sur l'évolution des propriétés du verre avec le temps. Est-ce que le verre se fragilise, gonfle...? Et comment réagira-t-il au contact

de l'eau? », précise Christophe Jegou, responsable du laboratoire. Mais comment fait-on pour étudier un verre vieux de 10000 ans, sans attendre si longtemps? « L'astuce consiste à y introduire du curium 244, un actinide à vie courte, qui vieillit artificiellement le verre. » Dans le laboratoire, une chaîne de cellules blindées est consacrée à ces études sur les verres vieilliss. Ce matin, des téléopérateurs y élaborent des verres radioactifs. Thierry Marcillat est l'un d'eux: « Avec l'équipe, je pèse et mélange, hors de la cellule, les différents éléments qui composeront le verre. J'introduis ensuite le mélange en cellule. Et à partir de cet instant il n'est possible de travailler qu'avec des bras articulés: tout est plus long, plus méticuleux et demande beaucoup de concentration. Je pèse donc le curium dans la cellule et le mélange par ultrasons aux autres éléments. Le tout va dans



LE COMPORTEMENT À LONG TERME

“ Connaitre l'influence des dégâts d'auto-irradiation ”

THIERRY MARCILLAT (à gauche) et **CHRISTOPHE JEGOU** devant la chaîne de cellules blindées consacrée aux études sur le comportement à long terme

un four de fusion pour obtenir entre cinq et dix grammes de verre, que je transmets à mes collègues de la caractérisation. » Les techniciens et ingénieurs pourront ainsi analyser les évolutions du verre radioactif dans le temps. « Si ces recherches nous permettent d'approfondir nos connaissances fondamentales, nous travaillons

surtout en fonction du besoin industriel, reprend Christophe Jegou. Ainsi, depuis quelques années Areva souhaite produire des verres plus chargés en actinides pour réduire le volume des déchets. Nous avons donc étudié ces verres pour vérifier qu'ils gardent bien toutes leurs propriétés de confinement au fil du temps. »

Thierry Marcillat, téléopérateur

Bac S - BTS de chimie, génie chimique et technologie industrielle à Marseille - Diplôme universitaire de criminalistique scientifique, Faculté de Saint Jérôme à Marseille

Christophe Jegou, chercheur

Bac S - DEUG A option physique-chimie, université de Rennes - École d'ingénieur (Institut des sciences de l'ingénieur en thermique énergétique et matériaux) spécialité matériaux - DEA de chimie avancée à l'état solide, Université de Nantes - Doctorat Polymères, interfaces et états amorphes, Université de Montpellier

Ils forment un duo complémentaire, l'un est chef de laboratoire, l'autre en charge de la technique, et tous deux travaillent pour le futur. Florent Lemont et Aldo Russello imaginent et fabriquent les procédés de vitrification du futur, pour une gamme plus large de déchets. L'un de ces procédés est Shiva, pour "Système hybride de vitrification avancée". « Avec Shiva, nous pourrions traiter plusieurs types de déchets, faiblement et moyennement radioactifs à vie longue: les déchets organiques, comme le plastique, mais aussi inorganiques, liquides, solides et même des métaux », explique Florent Lemont. Multifonction, ce système réunit trois opérations au sein d'un même équipement: l'incinération des déchets, la vitrification et la post-combustion des gaz provenant de l'incinération.

Un gage de compacité utile pour les utilisations en cellule blindée! Aujourd'hui, chaque élément de Shiva pris séparément - que ce soient les torches à plasma, le creuset ou l'induction - arrive à maturité. « Ces dernières années, nous avons surtout travaillé à la fiabilisation des torches à plasma, reprend Aldo Russello. L'objectif était d'obtenir une torche fiable fonctionnant très longtemps aux très hautes températures. » L'objectif est atteint, mais le prochain défi sera de faire fonctionner tous ces éléments ensemble et sur de longues durées. « L'un des bons côtés d'être une petite structure comme la nôtre, ajoute Florent Lemont, c'est que cela nous oblige à être polyvalent. Sur Shiva, Aldo est l'équipe technique à lui tout seul! » Lorsqu'un problème surgit, le chef de laboratoire émet des idées et discute de leur faisabilité avec l'"équipe technique". « C'est le fil conducteur de ma carrière: mettre en pratique ce que le chercheur



LES PROCÉDÉS DU FUTUR

“ Imaginer et fabriquer les procédés du futur ”

ALDO RUSSELLO (à gauche) et **FLORENT LEMONT** en salle de commande de Shiva

imagine, poursuit Aldo Russello. Au laboratoire, Florent est notre émissaire, il va au-devant de ceux qui nous subventionnent et revient à chaque fois avec des projets et des perspectives de recherche. » Leurs prochains essais? Des tests d'endurance pour valider le

procédé et être représentatif d'une utilisation industrielle. « Areva semble s'intéresser à ce type de solutions alternatives pour les usines du futur. Avec Shiva, nous espérons avoir le même succès que nos collègues du creuset froid d'ici quelques années. »

Aldo Russello, technicien

Bac S - DUT mesures physiques, option techniques instrumentales, IUT de Montpellier