

## PNGMDR 2022-26

# Définition des scénarios de stockage de l'uranium appauvri, de l'uranium de retraitement et des matières thorifères

(Action MAT.3 - Article 7 de l'arrêté du 9.12.22  
d'application du Ve PNGMDR)

**Identification**  
SFIRPASFP.23.0018

Décembre 2023

Page : 1/33



## SOMMAIRE

<b>1. Introduction</b>	<b>4</b>
<b>2. Contexte de la demande</b>	<b>5</b>
<b>3. Matières radioactives mentionnées par l'article 7 de l'arrêté PNGMDR du 9 décembre 2022</b>	<b>7</b>
<b>3.1</b> <i>Définition d'une matière radioactive au sens du code de l'environnement</i>	7
<b>3.2</b> <i>Description des matières uranifères et thorifères mentionnées par l'article 7 de l'arrêté PNGMDR du 9 décembre 2022 et les enjeux associés vis-à-vis de leur gestion à long terme</i>	7
3.2.1 Uranium issu du retraitement des combustibles usés	7
3.2.2 Uranium appauvri	8
3.2.3 Thorium sous la forme de nitrates et d'hydroxydes	10
<b>3.3</b> <i>Synthèse des enjeux liés aux caractéristiques intrinsèques des matières uranifères et thorifères</i>	11
<b>4. Options de gestion des matières uranifères et thorifères mentionnées par l'article 7 de l'arrêté PNGMDR du 9 décembre 2022</b>	<b>13</b>
<b>4.1</b> <i>Orientations retenues pour la gestion des déchets FA-VL et la déclinaison aux matières uranifères et thorifères</i>	13
<b>4.2</b> <i>Démarche d'élaboration des options de gestion des matières uranifères et thorifères</i>	14
<b>4.3</b> <i>Comportement des matières uranifères et thorifères en stockage dans les formations argileuses</i>	14
4.3.1 Stabilité des matières en conditions de stockage	14
4.3.2 Comportement en solution des radionucléides en solution	15
4.3.3 Rétention des radionucléides	17
4.3.4 Migration depuis le stockage vers la biosphère	20
<b>4.4</b> <i>Analyse des paramètres permettant de définir les options de gestion des matières uranifères et thorifères</i>	23
4.4.1 Cas du stockage de l'uranium issu du retraitement des combustibles usés	23
4.4.2 Cas du stockage de l'uranium appauvri	24
4.4.3 Cas du stockage du thorium sous la forme de nitrates	25
4.4.4 Cas du stockage du thorium sous la forme d'hydroxydes	28
<b>4.5</b> <i>Définition des options de gestion des matières uranifères et thorifères</i>	30
<b>5. Conclusion et perspectives</b>	<b>31</b>
<b>6. Références bibliographiques</b>	<b>32</b>

# 1. Introduction

Ce rapport vise à répondre à la demande portée par l'article 7 de l'arrêté du 9 décembre 2022 associée à la 5<sup>ème</sup> édition du PNGMDR [1] qui stipule que « *Pour l'application de l'article D. 542-83 du code de l'environnement et sur la base de l'action nommée MAT.3 du PNGMDR, l'Andra, en lien avec les propriétaires des matières radioactives, remet au ministre chargé de l'énergie, avant le 31 décembre 2023, un rapport définissant des scénarios de stockage de l'uranium appauvri, de l'uranium de retraitement et des matières thorifères, en cohérence avec la stratégie de gestion des déchets de faible activité à vie longue (FA-VL)* ».

L'uranium appauvri et l'uranium de retraitement, issus du secteur électronucléaire, et les matières thorifères, issues du secteur de l'industrie non électronucléaire, sont des substances radioactives qui présentent un niveau de radioactivité peu élevé mais suffisant pour que leur prise en charge nécessite des études adéquates. De part leur caractère valorisable à plus ou moins long terme, ces matières radioactives ne sont pas des déchets radioactifs et gérées comme tels mais, dans l'éventualité où elles seraient requalifiées en déchets radioactifs, le plan national de gestion des matières et déchets radioactifs (PNGMDR) a préconisé dès sa première édition en 2007 [2] qu'elles fassent l'objet d'études de solutions de gestion à long terme.

Dans la continuité de cette préconisation, cette approche prudente a été déclinée dans l'arrêté du 9 décembre 2022 associé à la 5<sup>ème</sup> édition du PNGMDR [1] par cet article 7. Ainsi, la définition de scénarios de stockage prescrite par cet article répond à la recherche de solutions de gestion<sup>1</sup> à long terme pour l'uranium appauvri, l'uranium de retraitement et les matières thorifères dans le cas où ces matières seraient requalifiées en déchets radioactifs.

Préalablement à la présentation de possibles solutions de gestion à long terme, ce rapport décrit les matières radioactives mentionnées par cet article 7 puis présente et analyse les enjeux liés à leurs caractéristiques et leur comportement en situation de stockage de manière à définir d'éventuelles solutions de gestion adaptées.

---

<sup>1</sup> Dans la suite du document, le terme de « solution de gestion » sera préféré à « scénario de stockage ».

## 2. Contexte de la demande

Dès la première édition de l'inventaire national, publiée en 2004 et intitulée « Inventaire national des déchets radioactifs et des matières valorisables » [3], les matières valorisables, « à savoir les substances contenant de la radioactivité, mais considérées aujourd'hui comme dotées d'un potentiel de valorisation dans le futur », sont incluses à cet inventaire suivant la recommandation du rapport Le Bars<sup>2</sup> [4].

Conformément au champ couvert par cette première édition de l'inventaire national, les matières valorisables ont également été prises en compte dès la première édition du Plan National de Gestion des Matières et Déchets Radioactifs (PNGMDR) portant sur la période 2007-2009 « afin de ne pas laisser de zones d'ombres dans la gestion des déchets radioactifs » [2]. En effet, les prescriptions relatives au PNGMDR 2007-2009 fixées dans le décret n° 2008-357 du 16 avril 2008 pris pour l'application de l'article L. 542-1-2 du code de l'environnement stipulaient en seconde partie de l'article 13 que « L'ensemble des propriétaires de matières radioactives valorisables mène, au plus tard le 31 décembre 2010, à titre conservatoire, des études sur les filières possibles de gestion dans le cas où ces matières seraient à l'avenir qualifiées de déchets ». Cette prescription a été reconduite par le PNGMDR suivant, couvrant la période de 2010 à 2012 (cf. Article 10 du décret n° 2012-542 du 23 avril 2012 [5]), et a été précisée dans ce même cadre par l'article 4 de l'arrêté du 23 avril 2012 pris en application du décret n° 2012-542 du 23 avril 2012 [6] qui stipulait que « Pour le cas particulier du thorium, AREVA et RHODIA mènent de manière approfondie ces études sur les filières possibles de gestion dans le cas où ces matières seraient à l'avenir qualifiées de déchets à court, moyen ou long terme. Ils examinent en particulier, en lien avec l'ANDRA, la possibilité et les conséquences, notamment en termes d'emprise, de conception et de coût, de leur prise en charge dans les centres de stockage existants ou envisagés ».

A ce titre, en réponse à ces prescriptions, les propriétaires de matières radioactives, ex-AREVA, EDF, ex-RHODIA, ont remis aux ministres concernés<sup>3</sup> différentes études conservatoires de gestion possibles à long terme du thorium, de l'uranium appauvri et de l'uranium de recyclage issu du traitement des combustibles usés. L'analyse des caractéristiques de ces matières telles que les périodes radioactives, les quantités en jeu ou les activités radiologiques ont conduit à éliminer, parmi les options de gestion envisageables, les filières de stockage correspondantes aujourd'hui au CSA et au CIRES. En conclusion de ces études conservatoires, considérant différentes caractéristiques de site d'implantation, le stockage à faible profondeur (35-40 m) dans un site argileux de faible perméabilité a été retenu comme la solution de gestion à étudier pour les trois types de matières sans que cela ne remette en cause à ce stade leur caractère valorisable.

Poursuivant cette approche prudente et de manière à approfondir les études sur les filières de gestion des matières thorifères, l'arrêté du 7 novembre 2014 pris pour application du décret n° 2013-1304 du 27 décembre 2013 [7] relatif au PNGMDR portant sur la période 2013-2015 stipulait à l'article 1<sup>er</sup> qu'« Areva et Solvay étudient les conditions de gestion de l'hydroxyde de thorium et du nitrate de thorium, dans le cas où ils seraient requalifiés en déchets » et, pour se faire, qu'ils demandent « à l'ANDRA [...] de réaliser, à leurs frais, une étude sur le stockage de ces substances, en tenant compte des filières de gestion existantes et en projet ».

Par la suite, l'arrêté du 25 février 2017 associé à la 4<sup>e</sup> édition du PNGMDR et couvrant la période de 2016 à 2018 prescrivait aux articles 4, 7 et 18 que l'Andra remette « au ministre chargé de l'énergie une étude de faisabilité du stockage d'uranium appauvri/uranium de retraitement/hydroxyde de thorium et du nitrate de thorium sur la base d'un inventaire radiologique et chimique détaillé de ces substances transmis par leurs propriétaires. »

<sup>2</sup> En 1999, le Gouvernement a confié au président du Conseil d'administration de l'Andra, Yves Le Bars, la mission de lui proposer toute réforme visant à fiabiliser l'inventaire des déchets radioactifs et notamment son extrapolation par des prévisions à moyen et long terme. Ce rapport est à l'origine de l'élaboration périodique de l'inventaire national des déchets et matières radioactives dont la première édition a été publiée en 2004.

<sup>3</sup> i.e. ministres chargés de l'énergie, de la sûreté nucléaire et de la radioprotection, de la défense, de l'environnement et de la recherche.

Dans la continuité, conformément à l'Avis n° 2020-AV-0363 de l'ASN du 8 octobre 2020 [8] et à la note d'orientation du PNGMDR, la poursuite des travaux autour des solutions de gestion des matières en cas de requalification en déchets a été déclinée au sein de l'action MAT.3<sup>4</sup> de l'actuelle édition du PNGMDR, portant sur la période 2022-2026, notamment par la demande que soient développés *« des scénarios de stockage concrets de l'uranium appauvri, de l'uranium de retraitement et des matières thorifères » « de manière cohérente avec la stratégie de gestion des déchets FA-VL »*.

Ainsi, le présent rapport, prescrit par l'article 7 de l'arrêté du 9 décembre 2022 [1], a pour objectif de définir des scénarios de stockage pour les matières uranifères et thorifères en cohérence avec la stratégie de gestion des déchets de faible activité à vie longue (FA-VL). Ces scénarios de stockage sont définis au regard des différents enjeux liés à la gestion des matières radioactives comme les caractéristiques intrinsèques des matières uranifères et thorifères leur comportement en situation de stockage mais aussi sur les grandes orientations retenues pour la gestion des déchets de faible activité à vie longue.

---

<sup>4</sup> ACTION MAT.3 – Poursuivre l'étude des enjeux de gestion des matières en cas de requalification comme déchets

### 3. Matières radioactives mentionnées par l'article 7 de l'arrêté PNGMDR du 9 décembre 2022

#### 3.1 Définition d'une matière radioactive au sens du code de l'environnement

Par la loi n° 2006-739 du 28 juin 2006 de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs [9] une matière radioactive est définie à l'article L542-1-1 du code de l'environnement comme étant « *une substance radioactive<sup>5</sup> pour laquelle une utilisation ultérieure est prévue ou envisagée, le cas échéant après traitement* ». Les matières radioactives se distinguent ainsi des déchets radioactifs, définis comme étant « *des substances radioactives pour lesquelles aucune utilisation ultérieure n'est prévue ou envisagée ou qui ont été requalifiées comme tels par l'autorité administrative en application de l'article L. 542-13-2* », par l'existence d'opérations de valorisation, de transactions commerciales ou de perspectives de valorisation établies, prévues ou envisagées. Le sujet des plans de valorisation des matières radioactives, objet de l'article 5 de l'arrêté du 9 décembre 2022, associé à l'action MAT.1<sup>6</sup> du PNGMDR 2022-2026, ne sera que très légèrement évoqué au chapitre 3.2 du présent rapport qui décrit de façon exhaustive les différentes matières radioactives mentionnées par l'article 7 de l'arrêté du 9 décembre 2022.

Dans le cadre de l'obligation, pour les responsables d'activités nucléaires et les entreprises mentionnées à l'article L. 1333-10 du code de la santé publique, d'établir, de tenir à jour et de transmettre périodiquement à l'Andra les informations relatives à l'inventaire des déchets et des matières radioactives, l'article 4 de l'arrêté du 9 octobre 2008 [10] établit une liste de 25 catégories de matières radioactives. Sont concernées par le présent rapport :

- La catégorie n° 21 qui regroupe l' « *Uranium issu du retraitement des combustibles usés, sous toutes ses formes physico-chimiques* » ou URT ;
- La catégorie n° 22 qui regroupe l' « *Uranium appauvri, sous toutes ses formes physico-chimiques* » ou U<sub>app</sub> ;
- La catégorie n° 23 qui regroupe le « *Thorium, sous la forme de nitrates et d'hydroxydes* » ou NTh pour le cas des nitrates et HBTh pour le cas des hydroxydes bruts.

#### 3.2 Description des matières uranifères et thorifères mentionnées par l'article 7 de l'arrêté PNGMDR du 9 décembre 2022 et les enjeux associés vis-à-vis de leur gestion à long terme

##### 3.2.1 Uranium issu du retraitement des combustibles usés

L'uranium issu du retraitement des combustibles usés (URT), est produit par l'usine de La Hague (Orano) sous forme de nitrate d'uranyle au moyen du procédé PUREX (Plutonium Uranium Refining by EXtraction) puis est principalement convertie en poudre d'oxyde noir. Il est entreposé en fûts dans les parcs uranifères sur le site Orano du Tricastin (voir Figure 3-1). Selon l'édition 2018 de l'Inventaire National [11], l'inventaire en URT s'élève à près de 32 000 tonnes sur le territoire national.

L'uranium de retraitement sous forme de poudre U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> est conditionné dans des fûts métalliques, noirs (200 L) ou bleus revêtus d'époxy (213 L ou 223 L) qui accueillent en moyenne 290 kg d'URT chacun. En nombre de colis à fin 2016, l'inventaire en URT correspond ainsi à environ 110 000 fûts, ce qui représente un volume de fûts inférieur à 30 000 m<sup>3</sup>.

<sup>5</sup> Une substance radioactive, au sens du code de l'environnement (Art. L542-1-1), est « *une substance qui contient des radionucléides, naturels ou artificiels, dont l'activité ou la concentration justifie un contrôle de radioprotection.* »

<sup>6</sup> ACTION MAT.1 – Elaborer des plans de valorisation des matières radioactives.



Figure 3-1 : parc d'entreposage de fûts d' $U_3O_8$  (URT) sur le site Orano du Tricastin

De 1994 à 2013, cette matière uranifère a été recyclée dans la fabrication de combustibles URE (Uranium de Retraitement Enrichi) qui pouvaient alimenter les quatre réacteurs de la centrale 900 MWe de Cruas-Meysses. Selon les plans de valorisation établis en réponse à l'article 5 de l'arrêté du 9 décembre 2022, EDF a relancé cette filière en 2023 et il est prévu de l'étendre à certains réacteurs du palier 1300 MWe.

Concernant les teneurs en radioéléments qui peuvent constituer un enjeu pour la gestion de la matière en cas de requalification en déchets, l'URT, qui présente quelques variabilités selon sa provenance (*i.e.* combustibles REP ou combustibles UNGG), est principalement composé d'isotopes de l'uranium. En raison de son origine, il contient également, en très faible quantité, d'autres actinides tels que les isotopes du plutonium puis en quantités infimes, des produits de désintégration des quatre chaînes radioactives tels que les isotopes du thorium, du radium ( $^{226}\text{Ra}$  et  $^{228}\text{Ra}$ ), du neptunium ( $^{237}\text{Np}$ ), du protactinium ( $^{231}\text{Pa}$ ), de l'actinium ( $^{227}\text{Ac}$ ), du  $^{210}\text{Pb}$  ainsi que des produits d'activation ou de fission tels que le  $^{36}\text{Cl}$ , le  $^{79}\text{Se}$ , le  $^{93}\text{Mo}$ , le  $^{99}\text{Tc}$  et l' $^{129}\text{I}$ .

En termes de toxiques chimiques, l'URT comporte principalement de l'uranium en grande quantité. Les autres éléments toxiques pouvant éventuellement présenter un enjeu pour la gestion à long terme<sup>7</sup> sont absents ou seulement présents à l'état de traces. Par ailleurs, l'URT ne présente pas d'éléments qui pourraient à terme générer des perturbations chimiques.

### 3.2.2 Uranium appauvri

L'uranium appauvri ( $U_{\text{app}}$ ) est un sous-produit du procédé d'enrichissement de l'uranium naturel mis en œuvre sur le site du Tricastin qui est actuellement entreposé dans les parcs uranifères du site du Tricastin et de Bessines (voir Figure 3-2). Sous forme de poudre  $U_3O_8$ , l'uranium appauvri est conditionné dans des emballages métalliques, étanches, pseudocubiques, appelés DV70 et de volume utile égal à  $3,3 \text{ m}^3$ . En nombre de colis à fin 2016, l'inventaire en  $U_{\text{app}}$  s'élève à environ 41 000 conteneurs DV70, ce qui représente un volume de DV70 de l'ordre de  $135 000 \text{ m}^3$ .

<sup>7</sup> *i.e.* amiante, antimoine, arsenic, béryllium, bore, cadmium, chrome, cuivre, cyanure, mercure, nickel, plomb et sélénium.



Figure 3-2 : parc d'entreposage de DV70 d' $U_3O_8$  ( $U_{app}$ ) sur le site Orano du Tricastin

Depuis 1987, certains réacteurs du parc électronucléaire français ont recours au combustible MOx (pour Mélange d'Oxyde de plutonium et d'Oxyde d'uranium) élaboré à l'usine Melox de Marcoule (Orano) à partir de plutonium (environ 9 %) et d'uranium appauvri (environ 90 %) issus respectivement du procédé de recyclage de l'usine de La Hague et du procédé d'enrichissement de l'usine Georges Besse II. La consommation de l'uranium appauvri dans cette filière est légèrement supérieure à 100 tonnes par an. Pour le futur, en raison du potentiel énergétique que présente cette matière composée d'une faible proportion d' $^{235}U$  fissile et d'une grande proportion d' $^{238}U$  fertile, des perspectives de valorisation sont envisagées soit par un second cycle d'enrichissement, soit au sein de la filière de réacteurs de 4<sup>ème</sup> génération en développement. Par ailleurs, d'autres pistes d'utilisation ou de valorisation de l'uranium appauvri sont déjà mises en œuvre ou étudiées telles que :

- l'utilisation à fin 2021 de plus de 80 000 tonnes d' $U_{app}$  comme barrière biologique autour de l'uranium issu du retraitement des combustibles usés sur le site du Tricastin (utilisation appelée à continuer sur la durée) ;
- l'engagement de programmes de R&D par Orano sur différentes pistes de valorisation de l'uranium appauvri hors réacteur nucléaire (par ex : bétons de haute performance, catalyseurs pour la synthèse de différentes molécules...).

En raison de son origine, bien que l'uranium appauvri soit composée de près de 97 % d' $U_3O_8$ , cette matière comporte un peu plus de 2 % de fluorure d'uranyle ( $UO_2F_2$ ), moins de 1 % d'eau et quelques éléments toxiques à l'état de traces tels que le fer, le nickel ou le chrome. Ainsi, l'activité radiologique de la matière est essentiellement due aux isotopes de l'uranium, présents à hauteur d'un peu moins de 0,3 % d' $^{235}U$ , de 0,002 % d' $^{234}U$  et d'environ 99,8 % d' $^{238}U$ . L'uranium est également le principal élément toxique constituant de cette matière. Enfin, la présence de fluor au sein de l'uranium appauvri, peut éventuellement avoir des effets sur les processus d'évolution à long terme en situation de stockage.

### 3.2.3 Thorium sous la forme de nitrates et d'hydroxydes

Le thorium sous la forme de nitrates et d'hydroxydes bruts provient de la transformation, dans les années 60, d'uranothorianite de Madagascar dans l'usine du Bouchet (CEA) et, dans les années 70-90, de monazite sur le site de La Rochelle (Solvay), respectivement pour l'extraction d'uranium et pour celle de terres rares.

Le minerai d'uranothorianite en provenance de Madagascar, composé essentiellement d'un mélange d'oxyde de thorium et d'oxyde d'uranium, a été traité industriellement en vue de l'obtention d'un sel de thorium pur, le nitrate, et d'un concentré d'uranium, l'uranate. Les fûts métalliques recevant le nitrate lors du procédé ont été protégés avec un revêtement glycérophtalique et sac en polyéthylène en raison de l'acidité de la solution due au procédé de dissolution. Les fûts obtenus sont entreposés sur le centre CEA de Cadarache. Ce nitrate de thorium aujourd'hui propriété d'Orano présente un inventaire qui s'élève à fin 2016 à 5 500 tonnes de matière.

L'exploitation de la monazite dans l'usine de Rhône-Poulenc en vue de séparer et de récupérer des terres rares ainsi que certains oxydes a entraîné la production d'hydroxydes bruts de thorium de 1970 à 1987 et de nitrates de thorium de 1978 à 1994. Les premiers sont actuellement entreposés sur le site de La Rochelle (Solvay) et leur masse s'élève à près de 22 000 tonnes tandis que les seconds également entreposés sur le site de La Rochelle (voir Figure 3-3) sous forme de solution, sous forme cristallisée et sous forme coulée constituent un inventaire à fin 2016 d'un peu moins de 11 000 tonnes.

Orano et Solvay envisagent de valoriser l'ensemble des matières thorifères pour des applications médicales (oncologie) déjà en cours, au sein d'un futur parc de réacteurs à sel fondus via un cycle U/Pu dans lequel s'inscrit le parc électronucléaire actuel, au sein d'un nouveau cycle dit « Th/<sup>233</sup>U » dans le cadre du développement de réacteurs dédiés<sup>8</sup> ou bien via des ventes purement commerciales pour l'industrie hors filière nucléaire.

Le thorium sous forme de nitrates détenu par Orano est mis en doubles poches plastiques puis conditionné dans des fûts en acier noir de 115 L ou de 220 L chacun placés en sur-fûts en acier inoxydable de volume utile compris entre 205 L et 541 L. Ce placement en sur-fûts a été réalisé de 2005 à 2012 afin de garantir durablement leur étanchéité et leur gestion sûre en réponse à la demande de l'ASN. Le volume total des sur-fûts de nitrates s'élève à fin 2016 à 6 171 m<sup>3</sup> pour un inventaire de 22 010 colis.

Le thorium sous forme de nitrates détenu par Solvay est conditionné dans des cubitainers en polyéthylène de 1 m<sup>3</sup> lorsque les nitrates sont sous forme de solution, dans des fûts en polyéthylène noir de 120 L lorsque qu'ils sont sous forme cristallisée et dans ces mêmes fûts ou dans des conteneurs en acier inoxydable de 1 m<sup>3</sup> lorsqu'ils sont sous forme coulée. Au total, le nombre de colis tout confondus de nitrates de thorium appartenant à Solvay est de l'ordre de 13 600 et représente un volume légèrement inférieur à 4 900 m<sup>3</sup>.



Figure 3-3 : parc d'entreposage de fûts de nitrates de thorium sur le site Solvay de La Rochelle

<sup>8</sup> Par exemple : Advance Heavy Water Reactor, MSR ou High Temperature Gas Reactors.

Enfin, 12 % du thorium sous forme d'hydroxydes détenu par Solvay est entreposé en vrac et constitue un volume d'environ 1 700 m<sup>3</sup> tandis que les 88 % restants sont conditionnés en fûts en polyéthylène noir de 220 L. L'inventaire pour ces derniers s'élève à 60 162 colis et représente un volume d'environ 14 600 m<sup>3</sup>.

Les procédés qui ont été mis en jeu pour produire du nitrate de thorium ont permis d'obtenir des solutions pures à plus de 99 %, que ce soit pour les nitrates de thorium produits au Bouchet et propriété d'Orano ou pour les nitrates de thorium produits à La Rochelle et propriété de Solvay. Néanmoins, bien que la composition en radionucléides à vie longue des nitrates de thorium se réduise principalement aux isotopes <sup>232</sup>Th, <sup>230</sup>Th et <sup>228</sup>Th du thorium qui, accompagnés des produits de décroissance liés aux chaînes 4N et 4N+2 tels que le <sup>228</sup>Ra, le <sup>226</sup>Ra et le <sup>210</sup>Pb, sont responsables de plus de 99,5 % de la radioactivité des nitrates de thorium, elle se compose également des isotopes <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U et <sup>234</sup>U de l'uranium en quantité très infime. Cette proportion restant négligeable, elle ne représente pas de réel enjeu en termes de toxicité chimique des nitrates de thorium.

Les hydroxydes bruts de thorium produits à La Rochelle et propriété de Solvay sont quant à eux composés d'une fraction insoluble qui contient les hydroxydes de thorium et d'uranium précipités ainsi que divers minerais présents dans la monazite et inattaqués par l'acide chlorhydrique (terres rares, Ti, Zr, Pb) et d'une fraction soluble constituée de sels d'imprégnations (chlorures de terres rares et chlorures d'ammonium). La teneur en toxiques chimiques des hydroxydes de thorium, se limitant à la présence de l'uranium, est légèrement plus significative que pour les nitrates de thorium (supérieure d'un à deux ordres de grandeur) tout en restant relativement limitée (0,4 %). L'activité radiologique des hydroxydes bruts de thorium, légèrement inférieure à celle des nitrates de thorium, est majoritairement liée à la présence du thorium (pour plus de 91 %) et la part restante a pour origine la présence d'uranium au sein de la matière.

### 3.3 Synthèse des enjeux liés aux caractéristiques intrinsèques des matières uranifères et thorifères

Les matières uranifères et thorifères objet du présent rapport représentent à fin 2016 un volume de colis entreposés de près de 193 000 m<sup>3</sup> dont plus de 85 % sont constitués des matières uranifères (70 % rien que pour l'uranium appauvri) tel qu'illustré par la Figure 3-4.

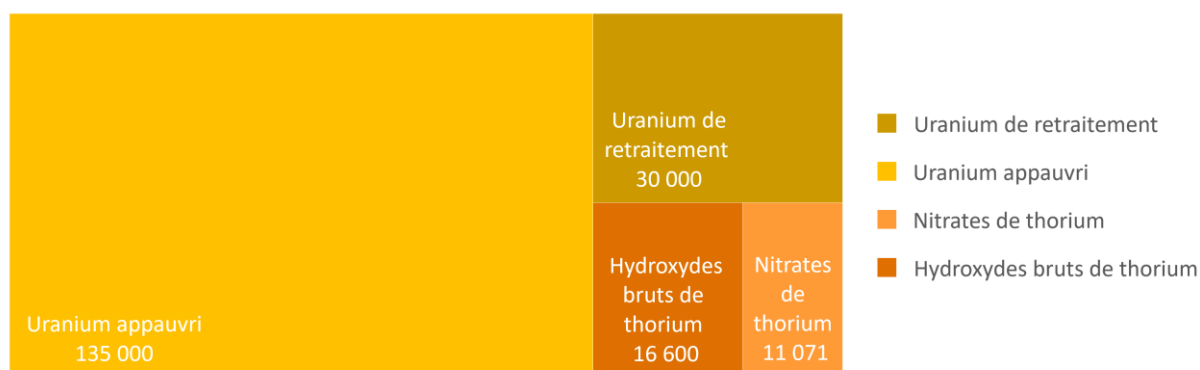


Figure 3-4 : comparaison des volumes de colis de matières uranifères et thorifères en m<sup>3</sup> de colis

Dans la mesure où leurs activités radiologiques totales sont comprises entre quelques milliers de becquerels par gramme de matières, principalement pour les matières thorifères, et quelques dizaines de milliers de becquerels par gramme de matières en ce qui concerne les matières uranifères, elles peuvent être qualifiées de « faibles ». La Figure 3-5 présente l'évolution des activités radiologiques totales des différentes matières uranifères et thorifères depuis la date de 2070 jusqu'à 1 000 000 ans. Par comparaison, en moyenne, l'activité totale des déchets FA-VL à 2070 est de l'ordre du million de Bq.g<sup>-1</sup>.

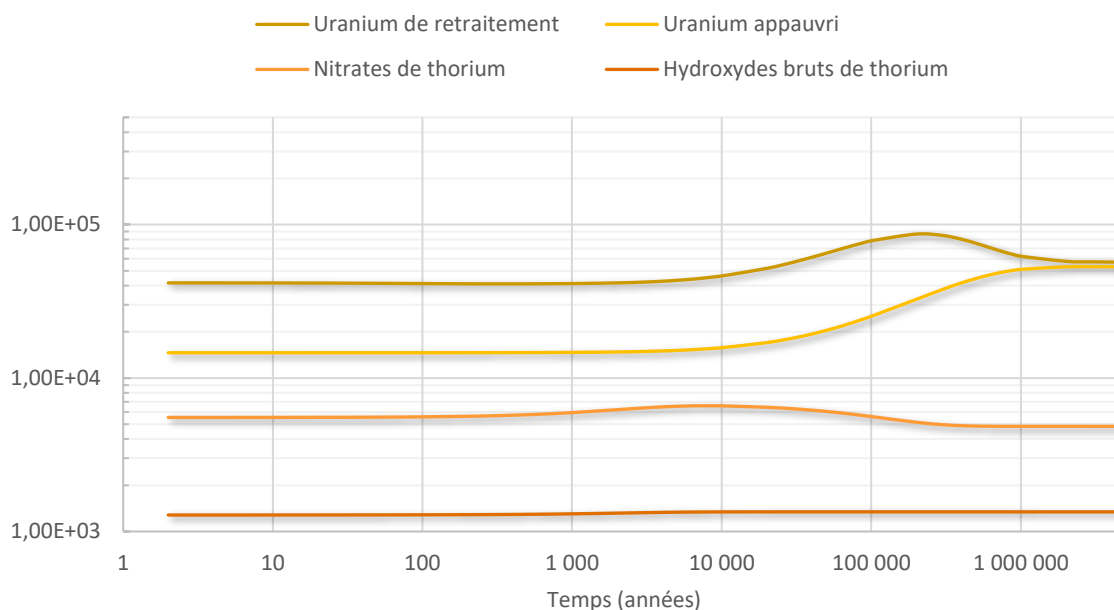


Figure 3-5 : évolution dans le temps des activités massiques totales en Bq.g<sup>-1</sup> des différentes typologies de matières

Comme indiqué au chapitre précédent du présent rapport, plus de 99 % de la radioactivité est due aux chaînes de l'uranium pour les matières uranifères et plus de 90 % est due aux chaînes du thorium pour les matières thorifères (99 % pour les nitrates de thorium). Or, certains isotopes de ces deux éléments présentent de très longues périodes radioactives (par exemple, 700 millions d'années pour l'<sup>235</sup>U, 4 milliards d'années pour l'<sup>238</sup>U et jusqu'à 14 milliards d'années pour le <sup>232</sup>Th). Les matières uranifères et thorifères soulèvent ainsi comme principal enjeu l'absence de décroissance radioactive significative sur le très long terme telle qu'illustrée par la Figure 3-5.

Compte tenu des deux caractéristiques radiologiques suscitées (*i.e.* faible niveau d'activité radiologique et longue période radioactive des principaux radionucléides qui les composent) les matières uranifères et thorifères pourraient s'apparenter à des substances radioactives de faible activité à vie longue (FA-VL). Conformément à l'arrêté associé à la 5<sup>ème</sup> édition du PNGMDR qui stipule justement à l'article 7 que les scénarios de stockage de ces matières doivent être définis « *en cohérence avec la stratégie de gestion des déchets de faible activité à vie longue (FA-VL)* », la démarche de définition des scénarios de stockage des matières uranifères et thorifères, dans le cas où ces dernières seraient requalifiées en déchets, s'appuie principalement sur les orientations retenues pour la gestion à long terme des déchets FA-VL dans le cadre du présent rapport. Ces orientations sont présentées au chapitre 4.1 du présent rapport.

## 4. Options de gestion des matières uranifères et thorifères mentionnées par l'article 7 de l'arrêté PNGMDR du 9 décembre 2022

### 4.1 Orientations retenues pour la gestion des déchets FA-VL et la déclinaison aux matières uranifères et thorifères

Les orientations retenues pour la gestion des déchets FA-VL consistent à considérer les enjeux spécifiques à cette catégorie de déchets puis à proposer des solutions de gestion proportionnées à ces enjeux. Les déchets FA-VL sont principalement caractérisés par leur faible niveau d'activité radiologique, inférieure d'environ trois et quatre ordres de grandeur respectivement à l'activité des déchets MA-VL et des déchets HA, et par la longue période radioactive des principaux radionucléides qui les composent s'étendant de plusieurs milliers à plusieurs dizaines de milliers d'années. Au regard de ces caractéristiques, les solutions de gestion adaptées aux déchets FA-VL doivent permettre d'isoler les déchets de l'homme et de l'environnement sur de très grandes échelles de temps excluant à première vue les centres de stockage de surface. Par ailleurs, le faible niveau d'activité radiologique des déchets FA-VL ne justifie pas de retenir à ce stade le stockage en couche géologique profonde comme solution de gestion.

Le principe d'un stockage dédié aux déchets FA-VL a été exprimé dès 2006 dans la loi n° 2006-739 du 28 juin 2006 de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs [9]. Les orientations générales de sûreté de l'ASN de 2008 [12] précisent par la suite que « *le stockage de déchets FA-VL est [...] une installation intermédiaire entre un centre de stockage de surface et un centre de stockage en formation géologique profonde* ». Dans ce contexte, la solution étudiée depuis de nombreuses années en France pour le stockage des déchets FA-VL, et qui constitue la solution de référence, est un stockage implanté à faible profondeur dans une formation géologique présentant des propriétés de confinement des radionucléides mobiles et toxiques chimiques. Les formations argileuses de faible perméabilité présentent de telles propriétés de confinement, stables dans le temps, qui permettent de maîtriser les phénomènes de transfert des radionucléides et des toxiques chimiques mobiles et leur cinétique dans les différents composants du stockage et dans la formation géologique environnante<sup>9</sup>, limitant de fait les impacts radiologiques et chimiques sur l'homme et sur l'environnement.

Ainsi, le concept de stockage à faible profondeur en formation argileuse constitue une solution de gestion des déchets FA-VL proportionnée aux enjeux de sûreté soulevés par les caractéristiques radiologiques de ces déchets et est *a priori* la plus adaptée. Des études au niveau esquisse d'un stockage implanté à 30 m de profondeur au toit du stockage sur un site situé sur le territoire de la communauté de communes de Vendevre-Soulaines (CCVS), sont actuellement en cours par l'Andra. Ces études visent à répondre à l'article 33 de la 5<sup>e</sup> édition du PNMGDR.

La demande formulée par l'article 7 de l'arrêté associé à la 5<sup>ème</sup> édition du PNGMDR [1] stipule que les scénarios de stockage des matières sont à définir en cohérence avec les orientations retenues pour la gestion des déchets FA-VL. En conséquence, la démarche d'élaboration des solutions de gestion des matières uranifères et thorifères présentée au chapitre 4.2 prend en compte ces orientations.

---

<sup>9</sup> Il est cependant à noter que pour des déchets à vie longue dont l'activité décroît très lentement - voire ne décroît pas sur la centaine de milliers d'années - ces propriétés de la formation hôte conduisent à maintenir dans le stockage un terme source radioactif quasi-constant dans le temps.

## 4.2 Démarche d'élaboration des options de gestion des matières uranifères et thorifères

La démarche suivie pour définir de façon macroscopique les options de gestion des matières uranifères et thorifères consiste dans un premier temps à considérer les enjeux liés aux caractéristiques intrinsèques de ces matières (*cf.* chapitre 3.3 du présent rapport). Puis, sont regardées les étapes suivantes :

- Le traitement des matières, qui correspond aux possibilités connues et envisageables à ce stade de modification des caractéristiques des matières en vue d'optimiser leur volume, leur comportement au sein du stockage, leur réactivité chimique ... ;
- Le conditionnement des matières, comprenant la possibilité de prévoir une matrice de conditionnement des matières et l'enveloppe du colis, permettant d'optimiser le volume des colis à stocker, limiter les interactions entre les matières et le milieu ... ;
- Le concept du stockage, qui comprend la nature de la roche hôte considérée, la profondeur d'implantation et l'architecture du stockage.

Les matières uranifères et thorifères présentant des caractéristiques similaires à celles des déchets FA-VL les choix retenus pour les déchets FA-VL sont reconduits dans le cadre de la définition des solutions de gestion des matières radioactives. Ainsi, à l'instar des déchets FA-VL, le concept de stockage à faible profondeur en formation argileuse est repris dans la démarche d'élaboration des options des gestions.

Par la suite, l'analyse du comportement des matières uranifères et thorifères en stockage et l'analyse des trois étapes suscitées, conduisent à proposer des options de gestion pour les matières uranifères et thorifères.

## 4.3 Comportement des matières uranifères et thorifères en stockage dans les formations argileuses

Le comportement des radionucléides au sein des systèmes de stockage est principalement lié :

- A la stabilité des substances en conditions de stockage, qui va dépendre de leur forme chimique et des conditions physico-chimiques dans lesquelles elles sont placées ;
- Au comportement en solution des radionucléides une fois relâchés de la matière, notamment leur solubilité et spéciation au sein du stockage (à proximité des matières, au sein des colis et dans les composants du stockage ...).
- A la mobilité intrinsèque des radionucléides dans les différents composants du stockage et la formation géologique environnante.

Dans le cadre d'un stockage de matières, le comportement de l'uranium et du thorium depuis leur relâchement des substances qui les contiennent jusqu'à la biosphère constitue un élément clé de la performance du stockage et de la démonstration de sûreté. Les autres éléments dont différents radionucléides en partie produits par filiation (radium, actinium, ...) sont également à considérer, notamment au regard de leur comportement dans le milieu géologique et dans les composants du stockage.

### 4.3.1 Stabilité des matières en conditions de stockage

La stabilité des matières va dépendre principalement de leur forme physico-chimique et de leur comportement (solubilité) en conditions de stockage. En premier lieu, il faut considérer l'arrivée de l'eau à leur contact ainsi que la composition de celle-ci (argileuse, cimentaire ...). Selon la composition de l'eau et ses caractéristiques, la matière sera plus ou moins stable (soluble) conduisant à un relâchement des radionucléides au sein du stockage. Une fois relâchés, les radionucléides peuvent migrer en solution, être immobilisés sur la surface de minéraux par sorption ou bien précipiter sous forme solide en équilibre chimique avec les conditions géochimiques environnantes. Le diagnostic thermodynamique permet d'évaluer la stabilité des phases minérales constitutives des matières stockées et d'examiner les phases solides néoformées qui seraient les plus stables dans l'environnement proche des déchets et seraient susceptibles de contrôler la solubilité des radionucléides

## Thorium

Les solides constituants des hydroxydes Bruts de Thorium,  $\text{Th}(\text{OH})_4(\text{s})$  et  $\text{ThO}_2(\text{s})$ , sont intrinsèquement peu solubles. Le composé  $\text{Th}(\text{OH})_4(\text{s})$  n'est néanmoins pas stable thermodynamiquement sur de larges gammes de conditions géochimiques, avec une précipitation attendue d'un solide plus stable, l'oxyde de thorium  $\text{ThO}_2(\text{s})$  dont la solubilité est de l'ordre de  $10^{-9}$ - $10^{-10}$  mol/L en conditions argileuses proche de la neutralité. La solubilité de l'oxyde de thorium est sensible à la teneur en carbonate de la solution et à l'état de cristallinité du solide (cristallin, microcristallin, amorphe...).

Les nitrates de thorium ( $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ ) sont solubles au contact de l'eau. Conjointement au relâchement du thorium, la solubilisation du sel induit une mise en solution d'ions nitrate et une acidification (par libération de protons). Le thorium remobilisé lors de la solubilisation du sel peut précipiter à partir de la solution sous forme d'un hydroxyde ( $\text{Th}(\text{OH})_4(\text{s})$ ) ou d'un oxyde ( $\text{ThO}_2(\text{s})$ ) moins soluble (limite de solubilité). Néanmoins, les conditions acides et la complexation en solution avec les ions nitrate impliquent une solubilité élevée ( $> 0,1$  mol/L) notamment de l'oxyde de thorium et donc des potentialités moindres en termes de reprécipitation du thorium dans l'environnement proche du déchet.

## Uranium

L' $\text{U}_3\text{O}_8$  n'est pas considéré stable pour des environnements de nature argileuse ou cimentaire. Le comportement de  $\text{U}_3\text{O}_8(\text{s})$  reste assez peu documenté pour ces conditions. Les cinétiques de dissolution de  $\text{U}_3\text{O}_8$  sont attendues comme variables en fonction de l'environnement géochimique (influence des espèces carbonatées, du potentiel redox, du pH...). Les caractéristiques relatives à la stabilité et au relâchement de l'uranium associé seront à spécifier suivant les conditions géochimiques prévalentes dans le stockage.

La concentration en uranium relâché lors de la déstabilisation de  $\text{U}_3\text{O}_8(\text{s})$  est contrôlée par la solubilité de la phase de solide d'uranium la plus stable pour l'environnement proche de la matière. Le diagnostic thermodynamique indique que l'oxyde d'uranium ( $\text{UO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}(\text{s})$ ) est attendu comme le solide le plus stable dans un environnement aqueux sous influence d'une formation argileuse et des conditions légèrement réductrices avec des solubilités attendues de l'ordre de  $10^{-8}$  à  $10^{-6}$  mol.L<sup>-1</sup>, notamment sensibles à la teneur en carbonates. Pour des conditions cimentaires, la forme solide d'uranium la plus stable serait soit l'uranophane, la becquerelite ou l'uranate de calcium avec des solubilités de l'ordre de  $10^{-7}$  à  $10^{-5}$  mol.L<sup>-1</sup>.

L' $\text{U}_{\text{app}}$  contient du fluor sous la forme du solide de fluorure d'uranyle,  $\text{UO}_2\text{F}_2(\text{s})$ , intermédiaire de réaction lors de la conversion de l'hexafluorure d'uranium ( $\text{UF}_6$ ) en oxyde d'uranium ( $\text{UO}_2(\text{s})$ ). Cette phase solide  $\text{UO}_2\text{F}_2(\text{s})$  est très soluble dans l'eau, notamment en conditions de stockage et lors de sa dissolution, du fluor sera libéré en solution. La présence d'ions fluorure en solution influence la solubilité de l'uranium en domaine acide, pour un pH inférieur à 5, avec la formation de complexes aqueux  $\text{UF}^{3+}$ ,  $\text{UF}_2^{2+}$ ,  $\text{UF}_3^+$  et  $\text{UF}_4^0$ . Ainsi, les calculs de solubilité de  $\text{UO}_2(\text{s})$  indiquent que celle-ci peut être augmentée d'un facteur 10 à 1000 en présence de fluor à pH < 4. Le contenu en fluor de l' $\text{U}_{\text{app}}$  est néanmoins relativement faible à 0,26 % en masse.

### **4.3.2 Comportement en solution des radionucléides en solution**

Le comportement d'une espèce en solution est régi par différents équilibres, soit en solution, soit aux interfaces. Cela fait appel aux notions fondamentales de spéciation chimique et de solubilité qui définissent respectivement la forme chimique (ions, molécules, radicaux ...) d'un élément chimique donné et sa concentration en solution au regard de l'équilibre, s'il est atteint, avec une phase solide.

La spéciation chimique d'un élément est « *la distribution d'un élément parmi des espèces chimiques définies dans un système* » (définition IUPAC, Templeton et al., 2000, [13]). Elle fait intervenir la composition isotopique de l'élément chimique considéré, ses états d'oxydation ou électroniques, sa structure moléculaire et/ou sa complexation par des ligands inorganiques et/ou organiques. Certains éléments chimiques peuvent ainsi, pour un environnement donné, présenter plusieurs espèces chimiques affectant ainsi ses propriétés de transport. Le pH, le potentiel d'oxydoréduction (potentiel redox), la température, les concentrations des principaux ligands en solution (carbonate, sulfate, nitrate, fluorure, chlorure, molécules organiques...), les interfaces minérales, constituent les paramètres majeurs

contrôlant la spéciation et la solubilité des éléments chimiques en solution. La spéciation des radionucléides est un paramètre clé contrôlant leur mobilité, depuis les matières jusqu'aux différents exutoires.

Quelle que soit la forme chimique du radionucléide entrant dans le système étudié, il y aura une mise en équilibre de sa spéciation avec les conditions physico-chimiques. Cet équilibre peut être cinétiquement contrôlé. Dans les conditions d'un stockage, l'atteinte d'un équilibre chimique, au moins localement, est admise pour la plupart des radionucléides en regard des temps de transfert qui demeurent lents. Les conditions d'oxydo-réduction sont particulièrement importantes vis-à-vis du comportement de radionucléides puisqu'elles jouent un rôle prépondérant (mais pas exclusif) sur le degré d'oxydation des éléments en solution, ce dernier ayant un impact sur les processus d'interactions avec le solide. Tous les radionucléides n'ont pas la même sensibilité redox. Le thorium est stable à l'état d'oxydation +IV sous de larges gammes de conditions géochimiques, alors que l'uranium présente une sensibilité beaucoup plus importante avec des valences +IV et/ou +VI contrastées en termes de mobilité intrinsèque.

La spéciation et la solubilité des espèces chimiques en solution peuvent être évaluées par modélisation thermodynamique pour les conditions physico-chimiques du système considéré. Le diagnostic thermodynamique est complété de connaissances sur des systèmes analogues voire géochimiquement proches. Des évaluations de spéciation et de solubilité aqueuse ont été menées pour l'uranium et pour le thorium dans différentes conditions géochimiques représentatives des composants d'un stockage. Les évaluations réalisées utilisent la base de données thermodynamiques ThermoChimie (Giffaut et al., 2014, [14]). Des conditions cimentaires de type CEM 1 et des conditions argileuses réductrices et oxydantes sont considérées pour ces évaluations.

### Thorium

Le thorium sera présent en solution sous un état d'oxydation +IV pour de larges conditions physico-chimiques. La solubilité du thorium est attendue être contrôlée par l'équilibre avec le solide  $\text{ThO}_2(\text{s})$ . Pour des conditions argileuses ou cimentaires, la solubilité du thorium est faible de l'ordre de  $10^{-7}$  à  $10^{-8}$  mol.L<sup>-1</sup> sur une large gamme de compositions chimiques. En milieu oxydant, la solubilité du thorium est semblable à celle obtenue en milieu réducteur du fait de l'insensibilité du thorium au redox (Th(+IV)).

La présence de sels sulfate et/ou nitrate en solution est un paramètre identifié comme augmentant la solubilité du thorium dans l'eau. Les calculs thermodynamiques réalisés par Amphos (2015) indiquent que cet effet resterait limité, inférieur à un ordre de grandeur de la solubilité du thorium jusqu'à 1M de  $\text{NaNO}_3$  ajouté à une eau argileuse (pH ~7). Ces évaluations préliminaires demeurent néanmoins à être confirmées aussi bien en conditions argileuses que cimentaires.

### Uranium

L'uranium est sensible aux conditions redox et peut apparaître théoriquement sous les degrés d'oxydation +IV ou +VI dans les conditions environnementales naturelles. Les paramètres majeurs affectant la chimie de l'uranium sont le potentiel rédox (Eh) et le pH du système ainsi que la concentration en ions carbonate et calcium au pH > 7. La concentration aqueuse en silice peut également être un paramètre important qui va affecter principalement la précipitation potentielle de différentes phases solides. A noter aussi, l'influence des ions phosphates sur la solubilité et la complexation de l'uranium dans les conditions proches de la neutralité mais également des ions fluorure et sulfate au pH < 6.

En milieu réducteur et pour des conditions argileuses, les espèces d'U(VI) sont stables dans l'eau porale sous la forme de complexes de carbonates d'uranyle avec les espèces ternaires calciques  $\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_3^{2-}$  et  $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$  attendues comme dominantes. De nombreux travaux traitent de la spéciation de l'U(VI) en présence de carbonates dissous et de la formation en solution d'espèces aqueuses Ca-U(VI)-carbonate :  $\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_3^{2-}$  et  $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$  (Bernhard et al., 2001, [15] ; Joseph et al., 2011 [16] ; Vercouter et al., 2015, [17] ; Jo et al., 2018, [18] ; Maia et al., 2020 ; Shang et Reiller, 2020, [19]).

La phase solide contrôlant la solubilité de l'uranium serait sous forme d'un dioxyde d'U(IV) amorphe hydraté  $\text{UO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}(\text{am})$  avec une solubilité d'environ  $10^{-6}$  mol/L. En conditions plus oxydantes, l'uranium

est sous degré d'oxydation VI et sa solubilité est contrôlée par l'équilibre vis-à-vis de l'uranophane ( $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2(\text{SiO}_3\text{OH})_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ ) ou bien la becquerelite ( $\text{Ca}(\text{UO}_2)_6\text{O}_4(\text{OH})_6 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ ) à environ  $5 \cdot 10^{-5} \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ .

En conditions cimentaires, les conditions hyperalcalines devraient stabiliser l'uranium sous son degré d'oxydation +VI. Les travaux expérimentaux sur la solubilité de l'uranium en milieux cimentaires indiquent des solubilités comprises entre  $10^{-7}$  et  $10^{-5} \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  (Figure 4-1). Les analyses thermodynamiques indiquent que la solubilité de l'uranium serait contrôlée par des phases solides de type  $\text{CaU}_2\text{O}_7 \cdot 3\text{H}_2\text{O}(\text{cr})$ , la becquerelite ou l'uranophane.

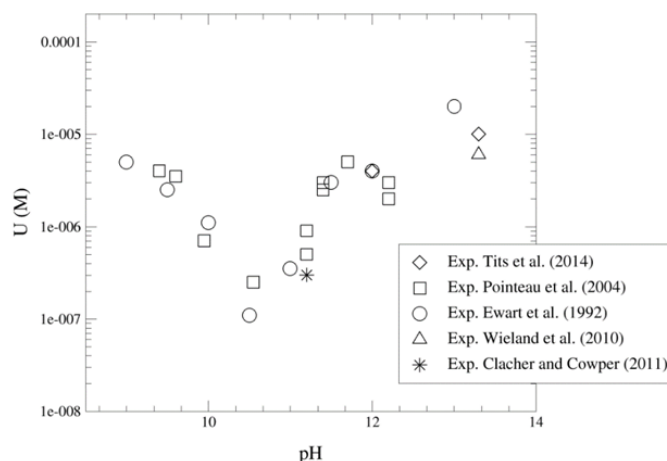


Figure 4-1 : Mesures des concentrations limites de U(VI) dans différentes eaux cimentaires (indiquées par les différences de pH). Les valeurs reportées sont celles issues des travaux de Ewart et al. (1992), Pointeau et al. (2004b), Tits et al. (2014), Wieland et al. (2010) et Clacher and Cooper (2011)

### 4.3.3 Rétention des radionucléides

Les phénomènes d'interaction avec les surfaces des solides soustraient les radionucléides de la solution aqueuse, contribuant ainsi à leur immobilisation. Les processus physico-chimiques à l'interface solide/liquide peuvent en effet permettre le piégeage des radionucléides présents en solution (sorption, substitution, incorporation, précipitation de surface, ...). Les radionucléides interagissent plus ou moins avec les surfaces suivant leur nature, leurs propriétés en solution et le type de surfaces (qu'elles soient minérales ou organiques). Les phénomènes de piégeage, dénommés plus généralement phénomènes de rétention, ont donc pour principale conséquence de réduire la concentration des radionucléides en solution ; plus l'interaction est forte, plus la diminution de la concentration en solution est importante.

D'un point de vue phénoménologique, la rétention comprend un ensemble de processus d'interaction entre une espèce en solution et une phase solide. Divers phénomènes peuvent être responsables de la rétention des radionucléides, néanmoins les processus de sorption sur des sites de surface des minéraux sont attendus comme dominants dans les milieux géologiques et dans les composants cimentaires (colis, structure de génie civil ...).

Indépendamment des phénomènes mis en jeu, la rétention peut être quantifiée macroscopiquement pour un radionucléide donné au travers du coefficient de distribution, noté  $R_d$  ( $\text{m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ ).

$$R_d = \frac{\text{Concentration en radionucléides sur et/ou dans le solide (mol}\cdot\text{kg}^{-1}\text{)}}{\text{Concentration en radionucléides en solution (mol}\cdot\text{m}^{-3}\text{)}}$$

Pour un même élément chimique, les phénomènes de rétention sont considérés comme comparables entre isotopes, les  $R_d$  définis pour un isotope d'un élément sont applicables à tous les isotopes (e.g. le fractionnement entre isotopes est possible mais les effets sur le  $R_d$  sont moindres).

Aux faibles concentrations, les processus de sorption sont généralement décrits comme réversibles avec une relation de proportionnalité entre la quantité retenue par la phase solide et la concentration en équilibre (e.g. après sorption) en solution. Cette hypothèse de proportionnalité et de réversibilité

est traduite au travers du modèle  $K_d$  ( $m^3.kg^{-1}$ ) (ou modèle de sorption linéaire « réversible ») qui s'utilise dans les équations de transport. Lorsque la concentration augmente, la saturation progressive des « sites » de sorption à la surface de la phase solide limite la quantité totale de matière retenue par la phase solide, le modèle  $K_d$  n'est alors plus applicable ; d'autres modèles notamment ceux dérivés des équations de Langmuir permettent de représenter macroscopiquement les phénomènes de rétention dans les équations de transport.

Les principaux facteurs contrôlant la rétention des radionucléides sont les suivants :

- La spéciation et le degré d'oxydation des radionucléides en solution. D'une façon générale, la rétention d'un élément dépend de sa spéciation en solution. En particulier, l'état d'oxydo-réduction ainsi que la complexation par des ligands (carbonates, molécules organiques ...) sont des paramètres influents ; notamment, la complexation des radionucléides en solution tend à inhiber leur rétention conduisant ainsi à une baisse du  $R_d$ .
- La composition chimique des eaux, en particulier le pH, la force ionique et la présence d'ions compétiteurs. Outre leur influence sur la spéciation des éléments, ces paramètres agissent sur les propriétés des surfaces des phases solides (protonation, déprotonation des sites, saturation/compétition d'ions sur sites actifs, ...) et les différents processus d'interactions associés.
- La nature et la teneur des phases minérales. Les capacités intrinsèques de rétention sont très variables d'une phase solide à l'autre. Les minéraux argileux et les phases cimentaires (type CSH...) sont généralement des minéraux de dimension submicronique qui présentent de grandes surfaces réactionnelles avec des sites spécifiques d'interactions. Pour un matériau donné, toute modification de la minéralogie peut potentiellement conduire à des évolutions de ses capacités de rétention. Ce point est plus spécifique pour les matériaux cimentaires qui sont caractérisés par une évolution progressive de leur minéralogie au cours de leur dégradation (état sain → état dégradé/altéré → état carbonaté).
- La nature et la concentration des radionucléides. Les interactions entre les radionucléides et les phases solides à l'origine de leur comportement en rétention sont essentiellement fonction des familles auxquelles les radionucléides appartiennent et de leur degré d'oxydation. La concentration en solution des radionucléides joue également un rôle avec un effet de diminution des capacités d'interactions au-delà d'un certain seuil de concentration qui est propre à leur nature.

La réactivité des radionucléides avec les phases solides est accessible expérimentalement au travers d'expériences d'interaction en laboratoire dont les protocoles sont aujourd'hui bien établis pour de nombreux systèmes tels que les systèmes argileux, les matériaux cimentaires et les sols. De nombreuses mesures expérimentales de rétention des radionucléides existent dans la littérature et dans le cadre des projets Andra (Cigéo, projet FA-VL, dossiers de sûreté au CSM et CSA) et d'homologues étrangers. Ces mesures permettent d'identifier les grandes caractéristiques du comportement en rétention de l'uranium, du thorium et des autres radionucléides. En plus de la connaissance des propriétés intrinsèques des radionucléides dans les milieux argileux et composants cimentaires, il convient également de retenir la présence potentielle de composés relâchés par les matières (tels que des sels solubles : nitrate, fluorure, chlorure, ou molécules organiques ...). Des expériences dédiées sont alors nécessaires pour évaluer les effets des composés des déchets en termes de caractéristiques de rétention.

### Thorium

Le thorium est stable en solution sous un degré d'oxydation +IV, que ce soit en conditions argileuses et cimentaires. Il n'y a pas pour le thorium une sensibilité directe aux conditions redox. Les radionucléides de degré d'oxydation +IV présentent une interaction forte avec les surfaces des phases solides comme les minéraux argileux ou les hydrates cimentaires.

Les mesures réalisées pour les roches argileuses (argilites du Callovo-Oxfordien, argiles tégulines du site de la communauté de communes de Vendevre-Soulaïnes, argiles à Opalinus du Mont-Terre en Suisse...) rapportent une forte rétention avec des coefficients de partage élevés supérieurs au  $m^3.kg^{-1}$ . Aucun effet des conditions oxydantes n'a été mis en évidence (insensibilité directe du thorium aux conditions redox).

Pour les matériaux cimentaires, des valeurs de rétention élevées ( $> 1 m^3.kg^{-1}$ ) sont également reportées dans la littérature, y compris pour les états dégradés et/ou carbonatés.

## Uranium

En conditions argileuses, l'uranium devrait être présent en solution majoritairement sous un degré d'oxydation +VI (U(VI)) en tant que complexes ternaires carbonatés d'uranyle principalement  $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^0$ . La présence de carbonate dissous stabilise le degré d'oxydation +VI même pour des conditions réductrices à pH voisin de la neutralité (~ -200 mV ENH représentatives des roches argileuses sans contact avec l'atmosphère).

Beaucoup d'études expérimentales traitent de la rétention de l'uranium (surtout sous degré U(VI)) sur les minéraux argileux (Tournassat et al., 2018, [18]). Étant donné sa sensibilité aux conditions redox et aux conditions géochimiques, notamment la présence de carbonates dissous, la rétention de l'uranium demeure encore aujourd'hui un sujet d'études et de recherche notamment vis-à-vis de son comportement à long terme (*e.g.* processus à cinétique lente) et de la réduction possible de U(VI) en U(IV) en conditions argileuses *in situ* légèrement réductrices à réductrices.

L'évaluation des valeurs de rétention renvoie à la maîtrise des conditions géochimiques dans les systèmes carbonates et à la présence d'oxygène dissous dans l'eau porale (interface avec l'atmosphère, eau météorique ...).

Dans les roches argileuses non influencées par l'atmosphère (profondeur > 8-10 m), les données acquises pour les argiles tégulines du site de Soulaines et les argilites du Callovo-Oxfordien indiquent des valeurs de sorption faibles à modérées avec des coefficients de partage compris entre 0,005 et 0,1  $\text{m}^3.\text{kg}^{-1}$ . Des valeurs moindres de  $K_d$  seraient attendues dans des conditions de milieux argileux à proximité de la surface où des conditions plus oxydantes prévaudraient.

De manière générale, la rétention de l'uranium en milieux argileux, notamment lorsque le milieu argileux est situé à proximité de la surface, demeure un sujet à considérer en termes de valeurs de paramètres (et domaine de sensibilité) de rétention.

Dans les milieux cimentaires, une spéciation de l'uranium sous le degré d'oxydation +VI est attendue, la présence de calcium dans les matériaux cimentaires stabilise l'uranium sous forme de complexes aqueux d'uranyle U(+VI) « Ca-uranium ». La rétention de l'uranium dans les matériaux cimentaires a été étudiée pour différents travaux qui font état de valeurs de coefficients de partage élevées (> 1  $\text{m}^3.\text{kg}^{-1}$ ) dues à la forte réactivité de l'uranium avec les phases solides, notamment le calcium constitutif des hydrates cimentaires (CSH).

Pour les états cimentaires carbonatés, une rétention moindre (0,1-0,01  $\text{m}^3.\text{kg}^{-1}$ ) est mise en évidence du fait de la disparition progressive des hydrates cimentaires (CSH) et la complexation avec les carbonates dissous.

## Autres radionucléides et toxiques chimiques

Les connaissances acquises pour le projet Cigéo et les études conduites lors des caractérisations du site de Soulaines permettent de disposer d'un bon état de connaissances vis-à-vis du comportement de nombreux radionucléides et toxiques chimiques en milieux argileux et cimentaires.

Le radium a notamment fait l'objet de travaux dédiés vis-à-vis des systèmes argileux (Missana et al., 2017, [20]) et cimentaires (Olmeda et al., 2019, [21]). Ces études ont montré une faible sensibilité du radium aux conditions d'oxydoréduction (+ II) et ont mis en avant une rétention relativement importante avec des valeurs de coefficient de partage supérieures à 0,1  $\text{m}^3.\text{kg}^{-1}$  pour des milieux argileux ou cimentaires.

Il existe également des données de rétention relatives à la plupart des actinides/lanthanides contenus dans les matières (Pa, Ac ...) qui témoignent d'une forte rétention en milieux argileux et cimentaires.

## Principaux effets des perturbations induites par les nitrates de thorium

Les colis de stockage contenant des nitrates de thorium libéreront des nitrates en solution lors de la resaturation en eaux du stockage. La présence de ces sels en concentrations pluri-molaires peut induire des conditions géochimiques particulières qui peuvent impacter la migration des radionucléides dans le stockage et au sein du milieu géologique.

L'ion nitrate est considéré comme un oxydant « fort » d'un point de vue du redox. Sa réactivité induit la mise en place localement de conditions « oxydantes » ( $E_h > 400$  à  $600$  mV) qui peuvent modifier l'état d'oxydation et la spéciation des radionucléides en solution et également modifier leurs propriétés d'interaction avec les solides. La réactivité des nitrates est attendue comme principalement induite par l'activité microbienne (*e.g.* respiration anaérobie), elle-même favorisée par la présence de nitrates. L'ion nitrate est un composé énergétique fort qui permet également d'étendre les domaines d'occurrence des micro-organismes notamment pour des conditions cimentaires (Albina et al., 2019, [22]). La réactivité des nitrates (*e.g.* dénitrification) implique une consommation des nitrates (une diminution des concentrations) associée également à une production potentielle de gaz  $N_2$ . La production de gaz  $N_2$  par dénitrification est un sujet à considérer dès lors que des matières contiennent des sels de nitrate. Lorsque les nitrates sont consommés, les conditions initialement réductrices peuvent à terme se restaurer.

La mise en place localement de conditions « oxydantes » induites par la réactivité des nitrates aurait un effet sur les radionucléides sensibles aux conditions redox. Ainsi, le comportement du thorium (et le radium) serait peu affecté alors que celui de l'uranium pourrait être davantage modifié.

Le relâchement des sels en solution (et l'absence de réactivité à proximité des lieux de leur relâchement) conduirait également à augmenter localement les concentrations en sels dissous en solution. L'augmentation de la force ionique conduit à modifier les conditions d'interactions des radionucléides avec les solides (milieux argileux ou cimentaires). Les travaux conduits sur les effets des sels dissous, notamment dans le cadre du projet FA-VL, ont mis en évidence pour les matériaux cimentaires une dégradation des paramètres de rétention de l'uranium et du radium en fonction de la concentration en sels avec des effets marqués ( $>$  facteur 10) au-delà de concentrations supérieures à 1M. Pour les roches argileuses, une forte concentration de nitrates en solution aurait des effets marqués principalement pour les radionucléides alcalins et alcalino-terreux (Ra) et un impact moindre pour le thorium et l'uranium. Toutefois, ces éléments n'ont pas fait l'objet d'études dédiées pour ces conditions.

A l'échelle du stockage, les effets de la perturbation induite par la présence (et la réactivité) des ions nitrates sont des sujets à considérer (devenir du gaz  $N_2$ , potentiel mobilité accrue de certains radionucléides...) et à évaluer.

Par ailleurs, la présence d'ions nitrates peut conduire au marquage chimique des éventuelles nappes situées à proximité du stockage. Le cas échéant, l'étude de la migration des nitrates vers les nappes concernées doit permettre de s'assurer du respect de la limite de qualité des eaux brutes utilisées pour la production d'eau.

#### 4.3.4 Migration depuis le stockage vers la biosphère

Le transfert des radionucléides par la voie eau dans le stockage depuis le déchet jusqu'à la biosphère se fait au travers du système de stockage qui, en plus des colis de stockage, des ouvrages contenant les colis et des structures du stockage (couverture, génie civil, matériau de remplissage ...) comprend :

- Le milieu géologique comprenant la formation hôte peu perméable et les formations encaissantes/environnantes potentiellement aquifères ;
- Les milieux naturels de surface en interface avec la biosphère (+ les organismes vivants s'y développant et incluant les populations humaines).

En effet, les principales caractéristiques du site vont gouverner en partie le transfert effectif des radionucléides depuis les déchets jusqu'aux différents exutoires.

Au-delà de leurs propriétés d'interaction, les radionucléides et les composés chimiques sont mobilisés en fonction des caractéristiques hydro-dispersives globales du stockage et de son environnement naturel et de leurs évolutions dans le temps. Les gradients hydrauliques et les propriétés hydro-dispersives intrinsèques (conductivité hydraulique, coefficient de diffusion...) constituent les grandes caractéristiques régissant les écoulements d'eaux et les transferts des radionucléides à grande échelle. Parmi les caractéristiques clés d'un site vis-à-vis du transfert des radionucléides, il convient de différencier :

- Les phénomènes convectifs (advectifs) où les solutés sont transportés par entrainement avec les molécules d'eau. Ces phénomènes sont dominants dans les formations où les conductivités hydrauliques et les gradients de charges sont élevés. Les gradients de potentiels hydrauliques sont généralement régulés à grande échelle en lien avec le fonctionnement hydrogéologique mais ils peuvent être gouvernés plus localement à des échelles de l'ordre décimétrique. Les flux convectifs associés aux écoulements s'organisent ainsi selon la géométrie et les caractéristiques des milieux ouvragés ou géologiques et des gradients de charges distribués aux différentes échelles.
- Les phénomènes diffusifs où le déplacement des solutés est régi par les gradients de potentiel chimique sous l'effet des processus de diffusion moléculaire. Les mouvements diffusifs tendent à homogénéiser les gradients de potentiel, ce qui se traduit macroscopiquement par un flux de solutés en présence d'un gradient de potentiel chimique. Le transport par diffusion tend de manière globale à réduire les concentrations en radionucléides des ouvrages de stockage (concentrations les plus élevées) vers le milieu géologique ou les ouvrages de fermeture où les radionucléides sont initialement absents.

Les formations argileuses présentent de meilleures propriétés de transfert, en regard de formations plus perméables telles que les sables ou certains calcaires. Pour autant, le mode de transfert dominant dans les formations argileuses, y compris la formation hôte, n'est pas nécessairement la diffusion (cf. exemple illustratif donné Figure 4-2, dans le contexte du projet FA-VL [rapport d'étape 2015]) ; le mode de transfert peut être (légèrement) convectif ou co-dominant convectif/diffusif (cas où les flux convectifs et diffusifs sont plus ou moins équivalents), selon les valeurs des paramètres hydro-dispersifs et de gradient hydraulique observées. En outre, les formations argileuses en surface/sub-surface peuvent être le siège d'un transfert par diffusion « montante », significatif ou de faible ampleur, selon les propriétés hydro-dispersives et l'intensité du gradient hydraulique (globalement descendant dans l'exemple FA-VL).

Au final, sur la base des valeurs des paramètres clés retenus pour les différents composants du stockage (formation hôte, stockage, couverture, ...), ces différents types de fonctionnement régissant la migration par transfert des radionucléides ne sont néanmoins pas réductibles et s'évaluent dans le cadre des évaluations de performance et du transport des radionucléides.

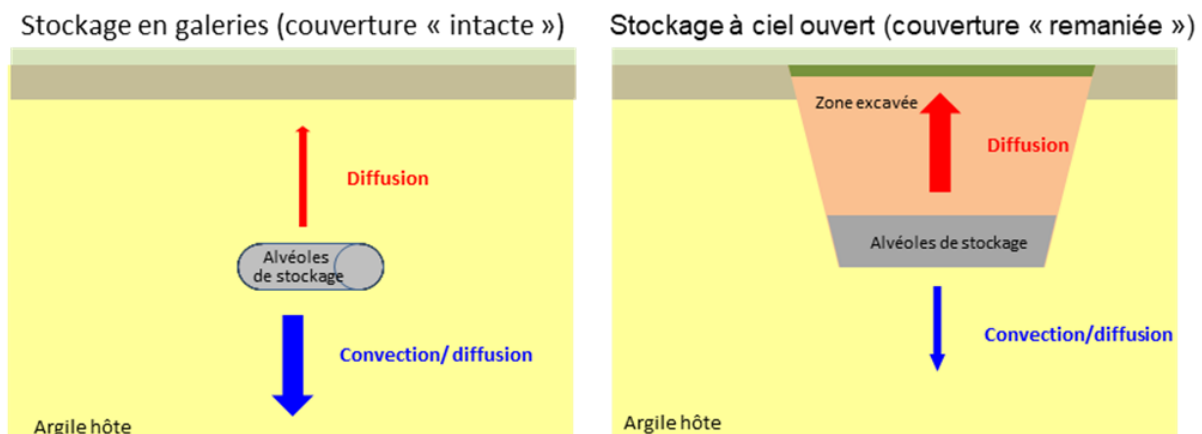


Figure 4-2 : Exemple illustratif issu du projet FA-VL (rapport d'étape 2015) - Schéma des poids relatifs des voies de transfert et des processus de transfert associés pour le stockage en galeries souterraines (à gauche) et le stockage à ciel ouvert (à droite)

Les investigations de site permettent de construire une représentation numérique du milieu géologique et des paramètres hydro-dispersifs et hydrauliques s'y rapportant. Ces modèles numériques sont supports aux évaluations quantitatives hydrogéologiques et de transport des radionucléides (incluant le relâchement des radionucléides, la prise en compte de la solubilité, des interactions avec les solides par une approche  $K_d$ , de la décroissance et de la filiation radioactives ...).

Les phénomènes de précipitation par atteinte de la limite de solubilité ou de rétention, tels que présentés dans les paragraphes précédents, réduisent la mobilité des radionucléides dans le milieu géologique

en réduisant les flux et en augmentant les temps de transfert. Plusieurs hypothèses peuvent être formulées pour tenir compte d'éventuelles perturbations chimiques (conditions oxydantes altérant les paramètres de rétention  $K_d$ , ...). Des études de sensibilité multi-paramétriques peuvent permettre d'établir un domaine de fonctionnement possible. Des indicateurs de type débit molaire sont généralement quantifiés à différentes localisations, en particulier aux interfaces des différents composants du système (limites de la couche formation hôte, de la couverture en surface ...).

Au-delà des caractéristiques du stockage et de la formation hôte attendue comme peu perméable, les caractéristiques hydrauliques des formations encaissantes contribuent au devenir des radionucléides dans le milieu naturel en régulant localement/régionalement les flux de radionucléides vers les exutoires (naturels ou artificiels).

Les composants ouvragés considérés peuvent également contribuer à limiter les flux d'eau et favoriser la migration lente des radionucléides. Les propriétés de transfert des couvertures en argiles et ouvrages en bétons sont à considérer de ce point de vue.

Au sein de la biosphère, la migration des radionucléides est associée à un ensemble de voies de transfert au sein du milieu accessible à l'homme, dont la modélisation conceptualisée permet de déterminer l'impact radiologique lié à tout relâchement potentiel du stockage. Son évaluation se justifie dès lors que des radionucléides sont supposés atteindre un exutoire naturel (aquifères, rivière, sols contaminés, ruissellement provenant de sols contaminés, ...) ou artificiel (pompage), considéré comme un point d'entrée possible du modèle biosphère via l'utilisation d'eau d'origine souterraine. La Figure 4-3 illustre de manière générique les différentes voies de transfert des radionucléides jusqu'aux exutoires où des évaluations de l'impact radiologique (indicateur final) peuvent être réalisées.

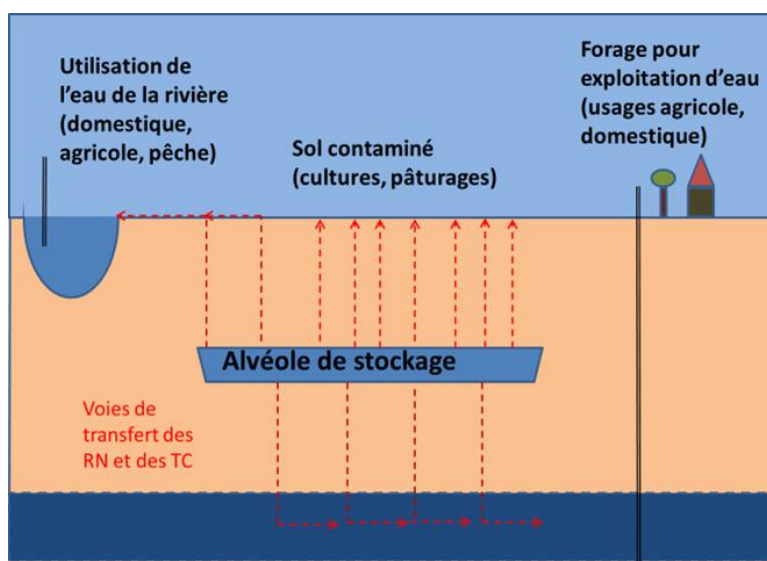


Figure 4-3 : Schéma conceptuel des différentes voies de transfert des radionucléides jusqu'aux exutoires

Comme discuté ci-avant, les caractéristiques du site et des composants du stockage (couverture par exemple) sont des éléments clés de la migration des radionucléides. Leurs évolutions au cours du temps sont à considérer dans les évaluations du transport des radionucléides.

Les phénomènes liés à la géodynamique externe (érosion, interactions atmosphériques ...) peuvent modifier significativement la géométrie du milieu (évolution géomorphologique, diminution de l'épaisseur de la formation de surface...), le système hydrographique, les propriétés chimiques et hydro-dispersives des composants du stockage. Ces évolutions diffèrent selon les échelles de temps considérées et les différents scénarios climatiques s'y rapportant. Ces phénomènes peuvent induire notamment des évolutions associées aux exutoires (nature, position, caractéristiques, ...).

L'intégration de ces phénomènes au sein des évaluations du transport des radionucléides peut être réalisée via différentes hypothèses et conceptualisations, par exemple une prise en compte des effets de l'érosion (diminution d'épaisseur de la couche géologique de surface, en lien avec la vitesse d'érosion,

à différents horizons temporels le cas échéant) sous forme d'une évolution temporelle des paramètres hydro-dispersifs (gradient hydraulique, conductivité hydraulique, coefficient de diffusion, ...) dans les épaisseurs érodées considérées. Ce type de conceptualisation a notamment pu être testée lors des évaluations de performance en support au rapport d'étape 2015 du projet FA-VL. Les connaissances de ces phénomènes sont essentielles dans le but d'alimenter les différentes évolutions attendues. Des modélisations plus complexes en amont des simulations du transport des radionucléides peuvent permettre dans ce cas de supporter le choix des hypothèses. C'est notamment le cas de l'évolution des systèmes hydrogéologiques/hydrologiques.

#### **4.4 Analyse des paramètres permettant de définir les options de gestion des matières uranifères et thorifères**

Sur la base de l'analyse du comportement des matières uranifères et thorifères en stockage dans les formations argileuses réalisée au chapitre 4.3 du présent rapport, le recours ou non d'un traitement préalablement au conditionnement de la matière et à son stockage ainsi que le conditionnement et l'architecture de stockage à considérer de manière à assurer la gestion durable des matières et des déchets radioactifs « *dans le respect de la protection de la santé des personnes, de la sécurité et de l'environnement* » sont étudiés aux chapitres 4.4.1 à 4.4.4 ci-après pour chacune des typologies de matières afin de définir les options de gestion des matières uranifères et thorifères qui devraient faire l'objet d'études plus approfondies dans le cas où ces matières seraient requalifiées en déchets.

##### **4.4.1 Cas du stockage de l'uranium issu du retraitement des combustibles usés**

###### 4.4.1.1 Traitement

Dans le cadre de la présente demande du PNGMDR, Orano et EDF n'envisagent pas un quelconque traitement visant à réduire les volumes ou encore à conférer à l'uranium actuellement sous forme  $U_3O_8$  une stabilité physico-chimique accrue.

###### 4.4.1.2 Conditionnement

La première option retenue pour le conditionnement de l'uranium issu du retraitement des combustibles usés consiste en un stockage direct des fûts métalliques de 200 L. Cette option présente l'avantage de limiter les manipulations mais n'offre pas de confinement optimal sur le long terme en raison de la corrosion progressive des fûts qui est de nature à dégrader la stabilité mécanique du stockage (risque de tassement, de déformation des conteneurs corrodés) et de produire de l'hydrogène pouvant retarder la resaturation du milieu voire installer des surpressions dans le stockage (risque de fracturation). De plus, la géométrie cylindrique des fûts et leurs petits volumes peuvent complexifier l'exploitation du stockage (par exemple : perte de place, nombreux mouvements, moindre stabilité mécanique des alvéoles en phase d'exploitation).

La deuxième option serait un reconditionnement complet de l'uranium dans un conteneur en matériau cimentaire, plus durable que le conteneur métallique, avec enrobage dans une matrice cimentaire. En effet, ainsi qu'indiqué au chapitre 4.3.3 du présent rapport, les propriétés du béton (*i.e.* milieu cimentaire) permettent de retarder le relâchement de l'uranium du colis. *A priori* ce colisage permettrait un confinement plus durable et permettrait de répondre à d'éventuelles contraintes sur la dispersibilité des déchets. Ce complément de colisage conduirait à faire diminuer le débit de dose au contact des colis. Toutefois, ce gain potentiel en termes de confinement devrait être apprécié au regard des risques liés aux opérations de conditionnement, à leur impact en termes de dosimétrie sur les travailleurs ainsi qu'au regard de l'augmentation des volumes à stocker qui serait de l'ordre d'un facteur 2.

Une troisième option pourrait être un sur-conditionnement des fûts dans un conteneur en matériau cimentaire, avec blocage des fûts par un liant hydraulique à l'intérieur du conteneur de stockage. Ceci conférerait une meilleure durabilité du colis avec des manipulations limitées et une augmentation de volume également limitée. De plus, l'utilisation d'un sur-conteneur de plusieurs  $m^3$ , pourrait permettre de simplifier l'exploitation, en limitant le nombre de mouvements, mais aussi assurer une meilleure stabilité mécanique par rapport aux fûts métalliques. Le volume pourrait alors être équivalent au volume des conteneurs de stockage conçus pour accueillir les colis d'uranium appauvri,

dans une optique de standardisation des équipements et alvéoles. Par ailleurs, l'option pourrait évoluer vers une variante sans blocage des fûts par un liant hydraulique.

Enfin, le recours à un conteneur métallique dit « durable », tel qu'envisagé pour le centre de stockage Cigéo (*i.e.* conteneur en acier noir), est une piste de réflexion. Néanmoins, bien que ce conteneur permette de retarder l'arrivée d'eau au contact de la matière, il n'apporte aucune performance supplémentaire de confinement sur le long terme puisque l'activité de l'uranium n'aura pas ou peu décru avant l'arrivée de l'eau compte tenu de sa période radioactive. De plus, la corrosion du conteneur en acier noir conduit à la production d'hydrogène dans le stockage.

#### 4.4.1.3 Architecture de stockage

La démarche présentée au chapitre 4.2 du présent rapport, qui indique que les choix retenus pour les déchets FA-VL sont reconduits dans le cadre de la définition des solutions de gestion des matières radioactives, conduit à privilégier le concept de stockage à faible profondeur en formation argileuse comme solution de gestion pour l'ensemble des matières uranifères et thorifères mentionnées par l'article 7 de l'arrêté PNGMDR du 9 décembre 2022, renforcé par le fait qu'un milieu argileux apparaît le plus à même de limiter la mobilité de l'uranium.

L'expérience de l'Andra dans la modélisation de ce milieu permettrait, lors d'une étape ultérieure, de quantifier sur le long terme la migration de l'uranium hors du stockage. Par ailleurs, une argile située à faible profondeur, en interface avec le milieu atmosphérique (conditions plus oxydantes) est plus susceptible de rendre mobile l'uranium, alors que ce n'est pas le cas pour une argile isolée de l'atmosphère, à plus grande profondeur (conditions plutôt réductrices). Ainsi, pour l'option de stockage direct des fûts d'uranium issu du retraitement des combustibles usés, un stockage à une profondeur permettant de garantir un environnement réducteur pourrait compenser les capacités de confinement modérées de ces colis. Les matériaux cimentaires constitutifs des alvéoles de stockage seront également de nature à réduire la mobilité de l'uranium. Enfin, bien que peu documenté, le confinement de l'uranium dans des milieux autres qu'argileux (roches granitiques par exemple) n'apparaît pas meilleur que dans l'argile, qui est donc à privilégier.

Par la suite, les deux types d'architectures de stockage aujourd'hui étudiées pour un stockage à faible profondeur, à savoir un stockage en galeries souterraines et un stockage à ciel ouvert refermé par une couverture argileuse reconstituée pourraient faire l'objet d'évaluations de sûreté après-fermeture qui permettraient d'évaluer l'architecture type la plus favorable à la réduction des impacts radiologiques et des toxiques chimiques et ainsi d'orienter les choix à faire en terme d'architecture de stockage.

#### 4.4.1.4 Conclusion

En se fondant sur l'analyse des options de conditionnement de l'uranium de retraitement et d'architectures de stockage envisageables pour celui-ci, les deux options de gestion retenues, dans le cas où cette matière serait requalifiée en déchets, pour l'étude de son stockage sont les suivantes :

- Un stockage direct des fûts métalliques à faible profondeur dans un milieu argileux ;
- Un sur-conditionnement en conteneur en matériau cimentaire des fûts métalliques puis un stockage à faible profondeur dans un milieu argileux.

Ce choix repose sur l'intérêt de simplifier les opérations de reconditionnement pour réduire les risques associés (pour la première option retenue), et sur les avantages que présente la deuxième option retenue en termes de performance de confinement des colis.

### 4.4.2 Cas du stockage de l'uranium appauvri

#### 4.4.2.1 Traitement

De même que pour l'uranium issu du retraitement des combustibles usés, à ce stade des études sur le stockage des matières uranifères et au regard de la connaissance, Orano n'envisage aucun traitement visant à réduire les volumes ou encore à conférer à l'uranium actuellement sous forme  $U_3O_8$  une stabilité physico-chimique accrue.

#### 4.4.2.2 Conditionnement

La première option retenue pour le conditionnement de l'uranium appauvri consiste en un stockage direct des conteneurs métalliques DV70. Cette option présente l'avantage de limiter les manipulations mais n'offre pas de confinement optimal sur le long terme, en raison de sa corrosion progressive qui engendrerait les mêmes risques soulevés dans le cas du stockage direct des fûts métalliques de l'uranium issu du retraitement des combustibles usés (*cf.* chapitre 4.4.1.2 du présent rapport).

La deuxième option serait un reconditionnement complet de l'uranium appauvri dans un conteneur en matériau cimentaire, plus durable que le conteneur métallique, avec enrobage dans une matrice cimentaire. Néanmoins, à l'instar du cas du reconditionnement de l'uranium issu du retraitement des combustibles usés (*cf.* chapitre 4.4.1.2 du présent rapport), ce gain en termes de confinement doit être apprécié au regard des risques liés aux opérations de conditionnement, à leur impact en termes de dosimétrie sur les travailleurs ainsi qu'au regard de l'augmentation des volumes à stocker qui serait de l'ordre d'un facteur 2.

Une troisième option pourrait être un sur-conditionnement des conteneurs métalliques DV70 dans un conteneur en matériau cimentaire, avec blocage des colis par un liant hydraulique à l'intérieur du conteneur de stockage. De même que pour le cas du sur-conditionnement des colis d'uranium issu du retraitement des combustibles usés (*cf.* chapitre 4.4.1.2 du présent rapport), ceci conférerait une meilleure durabilité du colis avec des manipulations limitées, une augmentation de volume également limitée et participerait à la stabilité mécanique du stockage. Dans une optique de standardisation des équipements et alvéoles, le conteneur pourrait être identique à celui retenu pour le sur-conditionnement des colis d'uranium issu du retraitement des combustibles usés.

Concernant les propriétés chimiques de l'uranium appauvri, pour les trois options suscitées, la présence de traces de fluor est susceptible de dégrader le confinement des radionucléides en milieu oxydant et acide ( $\text{pH} < 4$ ) à proximité des déchets (*cf.* chapitre 4.3.1 du présent rapport) et d'augmenter la mobilité de l'uranium appauvri par rapport à celle de l'uranium issu du retraitement des combustibles usés. Toutefois, même si l'impact du fluor mérite d'être étudié, son influence ne devrait pas être discriminante quant au choix de l'option de gestion, en milieu argileux carbonaté, la concentration en fluor étant contrôlée par la solubilité de la fluorite.

#### 4.4.2.3 Architecture de stockage

Les éléments présentés au chapitre 4.4.1.3 du présent rapport, dans le cas de l'identification des options de gestion pour le stockage de l'uranium issu du retraitement des combustibles usés, sont reconduits pour le stockage de l'uranium appauvri. Ainsi, le concept de stockage à faible profondeur en formation argileuse est retenu comme solution de gestion de l'uranium appauvri.

#### 4.4.2.4 Conclusion

Pour des raisons similaires au cas du stockage de l'uranium issu du retraitement des combustibles usés, les deux options de gestion retenues, dans le cas où cette matière serait requalifiée en déchets, pour le stockage de l'uranium appauvri sont les suivantes :

- Un stockage direct des conteneurs DV70 à faible profondeur dans un milieu argileux ;
- Un sur-conditionnement en conteneur en matériau cimentaire des conteneurs DV70 puis un stockage à faible profondeur dans un milieu argileux.

Ce choix repose sur l'intérêt de simplifier les opérations de reconditionnement pour réduire les risques associés (pour la première option retenue), et sur les avantages que présente la deuxième option retenue en termes de performance de confinement des colis.

### 4.4.3 Cas du stockage du thorium sous la forme de nitrates

Les nitrates de thorium, selon leur provenance et leur procédé de fabrication, se présentent sous plusieurs formes (*i.e.* en solution, sous forme cristallisée ou sous forme coulée), au sein de plusieurs

typologies de colis (*i.e.* fûts métalliques de 115 L ou 220 L, cubitainers en polyéthylène de 1 m<sup>3</sup>, fûts en polyéthylène noir de 120 L ou conteneurs en acier inoxydable de 1 m<sup>3</sup>). En conséquence, les options de traitement et de conditionnement des colis de nitrates de thorium en vue de leur mise en stockage doivent être adaptées selon ces spécificités.

#### 4.4.3.1 Traitement

Les substances en solution n'étant pas acceptées en stockage il est nécessaire de procéder à un traitement des nitrates actuellement entreposées en solution (seulement 1 % de l'inventaire des matières thorifères). Le procédé de traitement aujourd'hui éprouvé et le plus adapté consisterait en une reconcentration et solidification à 140 °C des nitrates en solution. Cependant, par ce procédé, le thorium resterait sous la forme de nitrates.

Comme présenté au chapitre 4.3.3 du présent rapport, les nitrates de thorium étant très solubles au contact de l'eau, ils sont particulièrement défavorables au confinement du thorium. En effet, la solubilisation des nitrates remobilise le thorium et, acidifiant le milieu, limite la reprécipitation du thorium sous forme d'oxyde ou d'hydroxyde (ThO<sub>2</sub>(s) ou Th(OH)<sub>4</sub>(s)). Par ailleurs, la dégradation des nitrates de thorium au cours du temps engendre la production d'azote (N<sub>2</sub>(gaz)) susceptible de perturber les propriétés mécaniques du milieu. Enfin, la présence de nitrate favorise l'activité microbienne au sein du stockage, et installe des conditions redox-oxydantes qui engendrent des conditions physico-chimiques défavorables au confinement des radionucléides.

Une option de traitement qui permettrait de limiter les problématiques dues aux sels de nitrates serait l'insolubilisation des nitrates en phosphates de thorium. Le principal avantage de ce procédé réside dans le fait que les phosphates de thorium sont largement moins solubles que les sels de nitrates de thorium. Bien que la mise en œuvre de ce procédé nécessiterait des manipulations significatives de la matière, occasionnant des risques d'exposition aux rayonnements ionisants, ce traitement est le seul susceptible de s'affranchir du stockage de nitrates dont l'impact chimique sur la solubilité du thorium est significatif. Il serait donc à privilégier, du point de vue de la stabilité physico-chimique du stockage.

Enfin, une autre option de traitement des nitrates de thorium qui aurait uniquement pour objectif de réduire le volume final de colis à stocker serait de traiter les nitrates cristallisés (environ 35 % de l'inventaire en matières thorifères) pour produire des nitrates coulés. La mise en œuvre d'un tel traitement nécessiterait des manipulations significatives, causant des risques d'exposition aux rayonnements ionisants pour les opérateurs compte tenu des débits de doses importants au contact de ces matières. Par ailleurs, les sels de nitrates seraient conservés par ce procédé ce qui en fait une option de traitement peu pertinente par rapport aux impacts en situation de stockage.

#### 4.4.3.2 Conditionnement

Le stockage direct des matières contenues dans des conteneurs métalliques (conteneurs en acier inoxydables de 1 m<sup>3</sup> pour les nitrates sous forme coulée, ou encore en fût ou sur-fûts métalliques de 115 L à 541 L pour les nitrates sous forme cristallisée ou coulée) serait une première option envisageable. Néanmoins, le maintien du thorium sous la forme de nitrates présentant l'inconvénient d'être solubles, ainsi que la présence de produits de corrosion des enveloppes métalliques, ne permettraient pas de préserver de façon optimale l'intégrité de l'environnement immédiat des colis.

Une seconde option consisterait en un sur-conditionnement des colis de nitrates de thorium dans des conteneurs de stockage métalliques ou en matériau cimentaire avec blocage des colis par un liant hydraulique à l'intérieur du conteneur. Ceci permettrait d'améliorer le confinement ou encore d'adapter le colis à stocker aux contraintes d'exploitation du stockage. Les propriétés mécaniques seraient ainsi améliorées, la manutention facilitée, en particulier dans le cas de sur-conteneurs en matériau cimentaire, avec des gains lors de l'exploitation du stockage du fait de la réduction du nombre de conteneurs à stocker. Le foisonnement qui en découlerait serait cependant à prendre en compte. Ce mode de conditionnement présente par ailleurs l'avantage de limiter les manipulations nécessaires (pas d'ouverture de fûts) et donc de réduire l'exposition aux rayonnements ionisants potentielle due aux débits de dose élevés des nitrates de thorium. La cimentation à l'intérieur du sur-conteneur serait également de nature à limiter l'impact oxydant des nitrates tout en améliorant

les propriétés de confinement du colis et en limitant encore les débits de dose. La présence de fûts en polyéthylène pour certains des nitrates de thorium sous forme cristallisée peut toutefois contribuer à dégrader le milieu en raison de la formation à long terme de complexants organiques susceptibles d'augmenter la vitesse de migration des radionucléides.

Une troisième option de conditionnement pourrait être de transvaser directement la matière dans les conteneurs de stockage de préférence en matériau cimentaire. Un tel reconditionnement suppose l'ouverture des colis actuels (opérations susceptibles de générer des débits de dose significatifs) puis un transfert de la matière dans un conteneur robuste. Il possède l'avantage de limiter les volumes à stocker par rapport aux volumes actuellement entreposés, en particulier dans le cas des colis appartenant à Orano qui ont été placés en sur-fûts afin d'en améliorer les conditions d'entreposage. Ce mode de conditionnement améliorerait les propriétés de confinement (surtout par rapport à un stockage direct), d'autant plus que l'utilisation d'un conteneur en matériau cimentaire pourrait également limiter l'impact oxydant des nitrates. Enfin, il permettrait également d'éviter la présence de matières organiques (*i.e.* polyéthylène constituant les fûts de 120 L et cubitainer de 1 m<sup>3</sup>) dans le stockage. Toutefois, ces opérations nécessiteraient de nombreuses manipulations de la matière, entraînant des risques d'exposition aux rayonnements ionisants pour les opérateurs compte tenu des débits de doses élevés au contact de la matière. Cette option devra par conséquent être appréciée au regard des bénéfices apportés, en particulier par le retrait des matières organiques.

Enfin, une option complémentaire pourrait consister à mélanger dans le conteneur de stockage les nitrates de thorium avec une matrice cimentaire de sorte à limiter l'impact des nitrates, à condition de privilégier un conteneur en béton. Néanmoins, le caractère solide et compact des nitrates rend cette option complexe à mettre en œuvre.

Il est à noter que quel que soit l'option retenue, la présence de composants ouvragés du stockage en matériau cimentaire est également de nature à limiter l'impact des nitrates sur leur environnement immédiat.

#### 4.4.3.3 Architecture de stockage

La démarche présentée au chapitre 4.2 du présent rapport, qui conclut que les choix retenus pour les déchets FA-VL sont reconduits dans le cadre de la définition des solutions de gestion des matières radioactives, conduit à privilégier le concept de stockage à faible profondeur en formation argileuse comme solution de gestion pour l'ensemble des matières uranifères et thorifères mentionnées par l'article 7 de l'arrêté PNGMDR du 9 décembre 2022, renforcé par le fait qu'un milieu argileux apparaît le plus adapté pour limiter la mobilité du thorium.

L'expérience de l'Andra dans la modélisation de ce milieu permettra, lors d'une étape ultérieure, de quantifier sur le long terme la migration du thorium hors du stockage. Contrairement à celle de l'uranium, la mobilité du thorium ne dépend pas des conditions d'oxydoréduction du milieu. Ainsi, elle n'est pas influencée par la profondeur d'implantation du stockage et reste dans tous les cas plus faible que celle de l'uranium. Par ailleurs, les matériaux cimentaires constitutifs des alvéoles de stockage seront également de nature à réduire la mobilité du thorium.

Par la suite, l'architecture de stockage en galeries souterraines et celle à ciel ouvert refermé par une couverture argileuse reconstituée, aujourd'hui étudiées pour un stockage à faible profondeur, pourraient faire l'objet d'évaluations de sûreté après-fermeture qui permettront d'évaluer l'architecture type la plus favorable à la réduction des impacts radiologiques et des toxiques chimiques et ainsi d'orienter les choix à faire en termes d'architecture de stockage.

#### 4.4.3.4 Conclusion

Tout en tenant compte de la diversité de formes physico-chimiques des nitrates de thorium (*i.e.* en solution, sous forme cristallisée ou sous forme coulée) les options de gestion retenues prennent en considération les avantages et inconvénients issus d'un éventuel traitement c'est à dire d'une part préserver les propriétés physico-chimiques de l'environnement et limiter la mobilité du thorium, d'autre part gérer les débits de dose élevés au contact des nitrates de thorium) ainsi que ceux liés aux différents modes de conditionnement.

Ainsi, les trois options de gestion retenues, dans le cas où cette matière serait requalifiée en déchets, pour l'étude du stockage du thorium sous la forme de nitrates sont les suivantes :

- La transformation des nitrates en phosphates et leur conditionnement dans un conteneur en matériau cimentaire avec enrobage dans une matrice cimentaire puis un stockage à faible profondeur dans un milieu argileux ;
- Un sur-conditionnement des fûts métalliques en conteneur en matériau cimentaire avec enrobage dans une matrice cimentaire puis un stockage à faible profondeur dans un milieu argileux ;
- Le transvasement des nitrates de thorium actuellement contenus dans des conteneurs en polyéthylène (fûts ou cubitainers) en conteneur en matériau cimentaire puis un stockage à faible profondeur dans un milieu argileux.

#### 4.4.4 Cas du stockage du thorium sous la forme d'hydroxydes

##### 4.4.4.1 Traitement

Différents traitements des hydroxydes bruts de thorium sont proposés par Solvay de façon à réduire leur volume ou encore pour les transformer en une forme physico-chimique plus adaptée au stockage.

Une première option de traitement appelée « procédé Valor + » permet de concentrer le thorium pour atteindre une densité d'environ 1 tonne de thorium par m<sup>3</sup> conditionné ; à comparer à la densité initiale avant traitement qui est de 0,13 tonnes de thorium par m<sup>3</sup> conditionné. À la suite de ce traitement, le volume total de ces matières thorifères conditionnées en conteneurs atteindrait 1 920 m<sup>3</sup> (hors cimentation potentielle) sous forme de nitrates coulés au lieu des 14 600 m<sup>3</sup> sous leur forme initiale d'hydroxydes. Ce traitement permet aussi de réduire considérablement l'humidité résiduelle des matières à stocker et par conséquent d'éviter la formation de vides une fois l'eau retirée pouvant dégrader la stabilité de l'ouvrage et de la couverture de stockage. Toutefois, il conduirait à produire une quantité significative de déchets induits (environ 11 000 m<sup>3</sup>) pour lesquels Solvay retient un stockage en ISDD (Installation de Stockage de Déchets Dangereux) comme filière de stockage de référence. Ce procédé produirait également 2 400 tonnes de déchets classés FA-VL<sup>10</sup>. Enfin, les matières thorifères résultant de ce traitement présenteraient une concentration accrue en thorium, ce qui pourrait augmenter l'impact en cas d'intrusions humaines involontaires. Par ailleurs, ce traitement hydro-métallurgique nécessiterait un investissement financier significatif, avec un impact dosimétrique en exploitation du procédé pour transformer les hydroxydes en nitrates. La présence de nitrates favorisant la mobilité du thorium compte tenu de ses capacités à solubiliser le thorium, cette option n'est donc pas retenue en priorité à ce stade.

Une seconde option consiste à réaliser un traitement thermique des hydroxydes bruts de thorium par calcination en four à 900 °C. Il conduirait à la production d'un volume réduit de conteneurs de stockage. Ce traitement permet également de limiter considérablement l'humidité résiduelle des matières à stocker. Néanmoins, il nécessiterait de nombreuses manipulations pouvant engendrer des risques d'exposition des opérateurs aux rayonnements ionisants, les débits de dose au contact des conteneurs avant traitement étant toutefois modérés. Le caractère pulvérulent des produits à stocker pourrait également conduire à envisager la cimentation des matières produites afin de notamment limiter les risques liés au caractère dispersable des déchets en cas notamment d'incendie et de chutes de charges en phase d'exploitation du stockage. En cas de cimentation, le foisonnement serait alors à prendre en compte. Toutefois la qualité des colis produits compte tenu de la cimentation apporterait des caractéristiques favorables pour leur stockage pendant la période d'exploitation mais aussi vis-à-vis des propriétés de confinement et de leur tenue mécanique.

##### 4.4.4.2 Conditionnement

Une première option pourrait être de conditionner directement les fûts en polyéthylène d'hydroxydes bruts de thorium dans des conteneurs de stockage métalliques ou en matériau cimentaire afin de limiter les manipulations (pas d'ouverture de fûts) et les contraintes de radioprotection, tout en permettant de réduire le nombre de colis à transférer, avec éventuellement un blocage en matériau cimentaire pour limiter les vides et améliorer le confinement des radionucléides. Le foisonnement qui en découlerait

<sup>10</sup> Ces déchets seraient similaires aux déchets RRA classés déchets FA-VL.

serait cependant à prendre en compte. Le conteneur en matériau cimentaire pourrait être privilégié en raison de ses propriétés de confinement et de robustesse mécanique et de l'absence de corrosion à l'origine de la production de gaz ainsi que de l'influence possible des produits de corrosion sur la qualité du milieu. La présence de polyéthylène des fûts serait en outre de nature à produire par dégradation dans le stockage des substances organiques complexantes susceptibles d'augmenter significativement la vitesse de migration des radionucléides. Et la présence d'une humidité résiduelle (50 %) pourrait avoir un impact vis-à-vis de la tenue mécanique du stockage.

Une deuxième option consisterait à conditionner directement les hydroxydes bruts de thorium dans des conteneurs métalliques ou en matériau cimentaire. Ces opérations de conditionnement nécessitent d'ouvrir les fûts en polyéthylène et de transvaser les hydroxydes dans un conteneur de stockage. Par ailleurs, comme précédemment indiqué, un conteneur métallique serait *a priori* moins performant qu'un conteneur en matériau cimentaire. En outre, la présence d'humidité résiduelle des hydroxydes bruts de thorium pourrait avoir un impact vis-à-vis de la préservation de la qualité de l'argile hôte. En effet, dans la mesure où le volume de déchets diminuerait alors avec la sortie progressive de l'eau constituante des colis, les taux de vide engendrés pourraient être alors de nature à dégrader mécaniquement les argiles environnant les ouvrages de stockage, en particulier la couverture. Néanmoins, ce mode de conditionnement présente l'avantage de réduire les volumes de conteneurs à stocker et l'avantage de supprimer les fûts en polyéthylène qui peuvent dégrader le milieu environnant. L'impact dosimétrique d'une telle opération serait à considérer, même si les débits de doses sont inférieurs à ceux des nitrates de thorium.

Une troisième option qui permet de favoriser le confinement des radionucléides dans le stockage et à supprimer les risques liés à leur caractère dispersable serait la cimentation directe des hydroxydes bruts de thorium en conteneurs métalliques ou en matériau cimentaire. Les matières organiques apportées par les fûts en polyéthylène seraient supprimées permettant ainsi d'écarter les risques de formation de substances organiques complexantes. Cependant, la présence d'une humidité résiduelle qui peut avoir un impact vis-à-vis de la tenue mécanique du stockage serait maintenue sauf si un traitement est réalisé au préalable. Cette option de conditionnement amènerait par ailleurs à augmenter significativement les volumes à stocker selon le taux d'incorporation du ciment et engendrerait de nombreuses manipulations et contraintes de radioprotection.

#### 4.4.4.3 Architecture de stockage

Les éléments présentés au chapitre 4.4.3.3 du présent rapport, dans le cas de l'identification des options de gestion pour le stockage du thorium sous la forme de nitrates, sont reconduits pour le stockage du thorium sous la forme d'hydroxydes. Ainsi, le concept de stockage à faible profondeur en formation argileuse est retenu comme solution de gestion du thorium sous la forme d'hydroxydes.

#### 4.4.4.4 Conclusion

Selon les options de gestion retenues les volumes de colis de stockage d'hydroxydes bruts de thorium peuvent être significativement différents. Le procédé Valor+, quoique complexe, est le plus à même de réduire les volumes de matières à stocker. Néanmoins, il produit des nitrates de thorium qui présentent des caractéristiques susceptibles de dégrader les propriétés de rétention des matériaux cimentaires et des argiles. Cette première option de traitement n'est donc pas retenue à ce stade. De même, le stockage direct des hydroxydes bruts de thorium n'est pas retenu comme option de gestion pour le stockage.

Ainsi, les deux options de gestion retenues, dans le cas où cette matière serait requalifiée en déchets, pour l'étude du stockage du thorium sous la forme d'hydroxydes sont les suivantes :

- Le traitement thermique des hydroxydes bruts de thorium et leur conditionnement dans un conteneur en matériau cimentaire avec enrobage dans une matrice cimentaire puis un stockage à faible profondeur dans un milieu argileux ;
- Le traitement thermique des hydroxydes bruts de thorium et leur conditionnement en vrac dans un conteneur en matériau cimentaire puis un stockage à faible profondeur dans un milieu argileux.

## 4.5 Définition des options de gestion des matières uranifères et thorifères

L'analyse des paramètres qui permettent de définir les options de gestion a conduit à identifier deux à trois options adaptées *a priori* par typologie de matière. Le concept de stockage à faible profondeur en formation argileuse est retenu pour l'étude du stockage des trois catégories de matières mentionnées par l'article 7 de l'arrêté PNGMDR du 9 décembre 2022 [1] (*i.e.* l'uranium issu du retraitement des combustibles usés, l'uranium appauvri et le thorium, sous la forme de nitrates et d'hydroxydes), de même que pour les déchets FA-VL compte tenu du faible niveau d'activité des matières et de la longue durée de vie des principaux radionucléides qui les composent.

Ainsi, en cas de requalification des matières en déchets, les options de gestion retenues intègrent, en sus du stockage à faible profondeur dans un milieu argileux, les paramètres suivants :

- Pour l'uranium issu du retraitement des combustibles usés (*cf.* catégorie n° 21 de l'article 4 de l'arrêté du 9 octobre 2008 [10]) :
  - ✓ L'absence de traitement de la matière et un stockage direct des fûts métalliques,
  - ✓ L'absence de traitement de la matière et un, sur-conditionnement dans un conteneur en matériau cimentaire avec blocage des colis par un liant hydraulique avant stockage ;
- Pour l'uranium appauvri (*cf.* catégorie n° 22 de l'article 4 de l'arrêté du 9 octobre 2008 [10]) :
  - ✓ L'absence de traitement de la matière et un stockage direct des conteneurs DV70,
  - ✓ L'absence de traitement de la matière et un, sur-conditionnement dans un conteneur en matériau cimentaire avec blocage des colis par un liant hydraulique avant stockage ;
- Pour le thorium sous la forme de nitrates (*cf.* catégorie n° 23 de l'article 4 de l'arrêté du 9 octobre 2008 [10]) :
  - ✓ La transformation des nitrates en phosphates, cimentation à cœur et conditionnement dans un conteneur en matériau cimentaire avant stockage,
  - ✓ *Pour les nitrates de thorium conditionnés en fûts métalliques uniquement* - l'absence de traitement de la matière, sur-conditionnement dans un conteneur en matériau cimentaire avec blocage des colis par un liant hydraulique avant stockage,
  - ✓ *Pour les nitrates de thorium conditionnés en fûts PE uniquement* - l'absence de traitement de la matière, transvasement dans un conteneur en matériau cimentaire avant stockage ;
- Pour le thorium sous la forme d'hydroxydes (*cf.* catégorie n° 23 de l'article 4 de l'arrêté du 9 octobre 2008 [10]) :
  - ✓ Le traitement thermique de la matière, cimentation à cœur et conditionnement dans un conteneur en matériau cimentaire avant stockage,
  - ✓ Le traitement thermique de la matière, conditionnement en vrac dans un conteneur en matériau cimentaire avant stockage.

Pour l'ensemble de ces options de gestion, les vides inter-colis au sein des alvéoles du stockage seraient comblés par un matériau de remplissage cimentaire.

Par ailleurs, bien qu'un site en formation argileuse ait été exclusivement pris en compte pour la définition des options de gestion des matières uranifères et thorifères, en cohérence avec les éléments présentés tout au long du rapport, d'autres types de roche pourraient être envisagés dans le cadre de la poursuite des travaux sur la gestion des matières radioactives en cas de requalification en déchets.

## 5. Conclusion et perspectives

En réponse à l'article 7 de l'arrêté du 9 décembre 2022 associée à la 5<sup>ème</sup> édition du PNGMDR [1] ce rapport a défini des scénarios de stockage pour l'uranium appauvri, l'uranium de retraitement et les matières thorifères. Ces scénarios ont été construits en cohérence avec la stratégie de gestion des déchets de faible activité à vie longue (FA-VL) et se sont ainsi fondés sur les connaissances du stockage à faible profondeur dans un milieu argileux . Ils ont permis d'identifier différentes options de gestion notamment en matière de traitement éventuel et de conditionnement des matières précitées.

Si à l'avenir tout ou partie de ces matières étaient requalifiées en déchets, des études spécifiques et plus approfondies devraient être menées sur la base de l'inventaire des matières dont la requalification serait envisagée, à la fois en termes de volume et de typologie.

La définition d'un inventaire permettra la réalisation des évaluations préliminaires de sûreté afin d'identifier les caractéristiques fondamentales à considérer pour la définition d'un site de stockage adapté. Ces évaluations s'appuieront également sur le retour de l'ASN concernant la démarche de sûreté long terme établie pour la faible profondeur et sur les études réalisées en réponse à l'article 33 de l'arrêté du 9 décembre 2022 associée à la 5<sup>ème</sup> édition du PNGMDR [1], en particulier si la requalification concerne des matières apparentées aux déchets FA-VL du fait de leurs caractéristiques.

Par la suite, des travaux de reconnaissances géotechniques ainsi que des études environnementales seraient alors réalisées sur le ou les sites identifiés. L'approfondissement des études de sûreté sur ce(s) site(s) pour le ou les concepts de stockage qui seraient alors esquissés pour l'inventaire ainsi constitué permettrait également à ce stade d'identifier les options de gestion les plus adaptées parmi celles identifiées dans le présent rapport.

## 6. Références bibliographiques

- [1] Arrêté du 9 décembre 2022 pris en application du décret n° 2022-1547 du 9 décembre 2022 prévu par l'article L. 542-1-2 du code de l'environnement et établissant les prescriptions du plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs. Journal officiel de la République française, N° 0286.
- [2] Plan National de Gestion des Matières et Déchets radioactifs 2007-2009. Autorité de sûreté nucléaire (ASN). Ministère de l'Ecologie, de l'Energie, du Développement durable et de l'Aménagement du territoire (2006). 147 p.
- [3] Edition 2004 de l'Inventaire national des déchets radioactifs et des matières valorisables, Rapport de synthèse. Disponible à l'adresse : [https://inventaire.andra.fr/sites/default/files/documents/pdf/fr/edition\\_2004\\_-\\_inventaire\\_national\\_-\\_rapport\\_de\\_synthese.pdf](https://inventaire.andra.fr/sites/default/files/documents/pdf/fr/edition_2004_-_inventaire_national_-_rapport_de_synthese.pdf)
- [4] Rapport de la mission sur la méthodologie de l'inventaire des déchets radioactifs par Yves Le Bars, Président de l'ANDRA (11 mai 2000). Disponible à l'adresse : [https://www.andra.fr/sites/default/files/2018-03/rapport\\_pdf2000.pdf](https://www.andra.fr/sites/default/files/2018-03/rapport_pdf2000.pdf)
- [5] Décret n° 2012-542 du 23 avril 2012 pris pour l'application de l'article L. 542-1-2 du code de l'environnement et établissant les prescriptions du Plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs. Journal officiel de la République française, N° 0097.
- [6] Arrêté du 23 avril 2012 pris en application du décret n° 2012-542 du 23 avril 2012 pris pour l'application de l'article L. 542-1-2 du code de l'environnement et établissant les prescriptions du Plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs. Journal officiel de la République française, N° 0097.
- [7] Décret n° 2013-1304 du 27 décembre 2013 pris pour application de l'article L. 542-1-2 du code de l'environnement et établissant les prescriptions du Plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs. Journal officiel de la République française, N° 0304.
- [8] Avis n° 2020-AV-0363 de l'Autorité de sûreté nucléaire du 8 octobre 2020 sur les études concernant la gestion des matières radioactives et l'évaluation de leur caractère valorisable remises en application du plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs 2016-2018, en vue de l'élaboration du cinquième plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs. Autorité de sûreté nucléaire (ASN) (2020). N° 2020-AV-0363. 15 p. Disponible à l'adresse : <https://www.asn.fr/content/download/172540/file/Avis%20n%C2%B0%202020-AV-0363%20de%20l%E2%80%99ASN%20du%208%20octobre%202020.pdf>
- [9] Loi n° 2006-739 du 28 juin 2006 de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs (2006). Journal officiel de la République française.
- [10] Arrêté du 9 octobre 2008 relatif à la nature des informations que les responsables d'activités nucléaires et les entreprises mentionnées à l'article L. 1333-10 du code de la santé publique ont obligation d'établir, de tenir à jour et de transmettre périodiquement à l'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs. Journal officiel de la République française, N° 0246.
- [11] Inventaire national des matières et déchets radioactifs - Les essentiels 2018. Andra (2018). Document N° PUBLI/20-0826. Disponible à l'adresse : [https://inventaire.andra.fr/sites/default/files/documents/pdf/fr/andra-les\\_essentiels-2018.pdf](https://inventaire.andra.fr/sites/default/files/documents/pdf/fr/andra-les_essentiels-2018.pdf)
- [12] Orientations générales de sûreté en vue d'une recherche de site pour le stockage des déchets de faible activité à vie longue. Autorité de sûreté nucléaire (ASN) (2008). 16 p. Disponible à l'adresse : [https://www.asn.fr/Media/Files/Guide\\_FAVL](https://www.asn.fr/Media/Files/Guide_FAVL)
- [13] Templeton, D.M., Ariese, F., Cornelis, R., Danielsson, L.-G., Muntau, H., van Leeuwen, H.P., Lobinski, R. Guidelines for terms related to chemical speciation and fractionation of elements. Definitions, structural aspects, and methodological approaches (IUPAC Recommendations 2000). Pure and applied chemistry (2000). Vol 72, N°8, pp.1453-70

- [14] Giffaut, E., Grivé, M., Blanc, P., Vieillard, P., Colas, E., Gailhanou, H., Gaboreau, S., Marty, N., Madé, B., Duro, L. Andra thermodynamic database for performance assessment: ThermoChimie. *Applied Geochemistry* (2014). Vol 49, pp.225-36 - <https://www.thermochimie-tdb.com>
- [15] Bernhard, G., Geipel, G., Reich, T., Brendler, V., Amayri, S., & Nitsche, H. (2001). Uranyl (VI) carbonate complex formation: Validation of the  $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$  (aq.) species. *Radiochimica Acta*, 89(8), 511-518.
- [16] Joseph, C., Schmeide, K., Sachs, S., Brendler, V., Geipel, G., & Bernhard, G. (2011). Sorption of uranium (VI) onto Opalinus Clay in the absence and presence of humic acid in Opalinus Clay pore water. *Chemical Geology*, 284(3-4), 240-250.
- [17] Vercouter, T., Reiller, P. E., Ansoborlo, E., Février, L., Gilbin, R., Lomenech, C., & Philippini, V. (2015). A modelling exercise on the importance of ternary alkaline earth carbonate species of uranium (VI) in the inorganic speciation of natural waters. *Applied Geochemistry*, 55, 192-198.
- [18] Tournassat, C., Tinnacher, R. M., Grangeon, S., & Davis, J. A. (2018). Modeling uranium (VI) adsorption onto montmorillonite under varying carbonate concentrations: a surface complexation model accounting for the spillover effect on surface potential. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 220, 291-308.
- [19] Shang, C., & Reiller, P. E. (2020). Determination of formation constants and specific ion interaction coefficients for  $\text{Ca}_n\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(4-2n)^-$  complexes in NaCl solution by time-resolved laser-induced luminescence spectroscopy. *Dalton Transactions*, 49(2), 466-481.
- [20] Missana, T., Colàs, E., Grandia, F., Olmeda, J., Mingarro, M., García-Gutiérrez, M., ... & Grivé, M. (2017). Sorption of radium onto early cretaceous clays (Gault and Plicatules Fm). Implications for a repository of low-level, long-lived radioactive waste. *Applied Geochemistry*, 86, 36-48.
- [21] Olmeda, J., Missana, T., Grandia, F., Grivé, M., García-Gutiérrez, M., Mingarro, M., ... & Robinet, J. C. (2019). Radium retention by blended cement pastes and pure phases (CSH and CASH gels): Experimental assessment and modelling exercises. *Applied Geochemistry*, 105, 45-54.
- [22] Albina, P., Durban, N., Bertron, A., Albrecht, A., Robinet, J. C., & Erable, B. (2019). Influence of hydrogen electron donor, alkaline pH, and high nitrate concentrations on microbial denitrification: a review. *International journal of molecular sciences*, 20(20), 5163.



AGENCE NATIONALE POUR LA GESTION  
DES DÉCHETS RADIOACTIFS

1-7, rue Jean-Monnet  
92298 Châtenay-Malabry cedex  
Tél. : 01 46 11 80 00

[www.andra.fr](http://www.andra.fr)