

Vitrification des déchets radioactifs HAVL.

Le CEA prétend que la gestion des déchets radioactifs HAVL (Haute Activité et à Vie Longue, déchets de catégorie C) est une question résolue par la vitrification. Mélangés à un verre dit nucléaire, les HAVL sont coulés dans des fûts de déchets vitrifiés.

Mais voilà, par de savants tours de passe-passe, et en paraissant s'appuyer sur des études sérieuses, le CEA annonce qu'il faudra 300 000 ans pour que ces fûts soient détruits par les eaux profondes.

C'est une immense supercherie, l'étude de documents montre que cette estimation ne s'appuie que sur des modèles très simplifiés, et sur une expérimentation réduite à quelques années.

L'enfouissement en couche profonde reste un crime contre l'humanité, il n'y a toujours pas de solution à la gestion des déchets radioactifs.

Qu'est-ce que la vitrification ? Pour la vitrification, les déchets de catégorie C sont séchés, calcinés, mélangés au verre nucléaire appelé R7T7 à la température de 1100°. Le mélange est alors coulé dans un conteneur en acier inoxydable constituant un fût d'environ 400 kg de verre hautement radioactif. Le verre est de type sodo borosilicaté contenant une trentaine d'oxydes. Le verre est un matériau désordonné ; aucun arrangement atomique périodique n'est observé à longue distance. La structure du verre garde la mémoire du désordre du liquide initial dans un état métastable «vitreux». Au niveau structural, il est difficile d'étudier un verre nucléaire aussi complexe. À l'échelle microscopique, le verre n'est pas vraiment un matériau homogène et il contient une alternance de régions de faible et de forte résistance.

Spéculations sur la durabilité des fûts de déchets vitrifiés. Les fûts doivent résister sur des temps géologiques à la dégradation sous l'effet des rayonnements intenses des radionucléides inclus, de l'importante chaleur dégagée, du lessivage par les eaux profondes qui ne manqueront pas, au fil des siècles et des millénaires, de les atteindre, et aux pressions énormes des masses de roches éboulées sous l'effet de bouleversements géologiques, Les expérimentations engagées ne durent que quelques années, et elles ne peuvent pas prendre en compte toute la complexité des facteurs pouvant altérer la durabilité sur des période si longues.

Comment arriver à prétendre une durée de vie de 300 000 ans ?

Remarquons déjà que prétendre qu'il faudra ce temps pour que les fûts disparaissent, c'est reconnaître que petit à petit ces déchets à vie longue seront relâchés dans le sous sol et entraînés par les eaux qu'ils auront contaminées. En s'appuyant sur les chiffres annoncés, de vitesse de dissolution, de nombre de fûts, c'est quelques dizaines de Kg d'éléments hautement radio toxiques qui seront relâchés par an, (voir estimation de Gilbert Tallent). Déjà à ce point il n'y a pas de confinement.

Mais il y a pire car, faute de pouvoir réaliser des expérimentations fiables, les ingénieurs du CEA s'appuient sur les doctorants de polytechnique qui élaborent des « modèles » sophistiqués supposés représenter la réalité physique des

verres et leur comportement à long terme.

Mais la complexité des phénomènes à décrire est telle qu'il est nécessaire d'effectuer les calculs dans des conditions simplifiées à l'extrême pour simuler le vieillissement des fûts vitrifiés :

Volumes très petits (10.000 atomes en général) de verres simplifiés à 3, 4 ou 5 oxydes, remplacement de l'effet de l'irradiation par l'effet de « trempe » (refroidissement quasi instantané)-dans ce cas il s'agit donc d'une simulation dans la simulation, effet de la présence d'atomes lourds calculé non pas dans un réseau vitreux mais dans un réseau cristallin cubique dans le cas du zirconium, eau pure. On en tire tout de même des résultats tout en reconnaissant que ces résultats changent beaucoup avec la composition des verres ou de l'eau d'agression.

De plus il est impossible de calculer l'effet conjugué de toutes les agressions (radioactivité intense, température élevée, lessivage par des eaux chargées, pression énorme de matériaux éboulés).

Cas de la thèse de Le Hai Kieu du 25 nov 11 à Polytechnique : (on trouvera plus de développements en annexe 1). Le doctorant a utilisé essentiellement la simulation par la méthode de Dynamique Moléculaire classique pour identifier les corrélations entre les processus atomiques de fracturation et le comportement macroscopique. Au cours du stockage, la matrice de confinement doit rester stable sous l'effet du milieu environnant ainsi que sous celui des auto-irradiations. La résistance à la fracturation est une propriété importante car elle va définir la surface de fissuration, les micro fissures étant les portes d'entrées de l'eau jusqu'au cœur du fût. Du fait de l'impossibilité de simuler un verre nucléaire complexe, riche de plus de trente constituants, des verres ternaires à base de $\text{SiO}_2\text{-B}_2\text{O}_3\text{-Na}_2\text{O}$ sont choisis. Ce travail tend à montrer qu'il y a bien modification des caractéristiques des verres irradiés : gonflement de 3 à 7%, diminution de la dureté de 30%, du module d'Young de 30%, mais augmentation de la ténacité par augmentation de la plasticité du fait de dé-polymérisation. Ces résultats sont extrapolés au verre nucléaire R7T7.

Mais il s'agit d'un travail de simulation complexe, cette simulation impliquant des situations très simplifiées de composition des verres, de la taille très faible des verres modélisés, une simulation à l'intérieur de la simulation de l'irradiation remplacée par un traitement thermique (trempe). C'est un travail théorique avec un lien très faible avec l'expérimentation et qui n'a rien à voir avec la situation très complexe d'un verre contenant des déchets HAVL, subissant une radioactivité, une chaleur intenses, l'attaque par les eaux profondes, la pression d'éboulements...

La présence d'atomes lourds (actinides), modifie-t-elle le comportement des verres ? L'agression extérieure d'eau chargée d'ions a-t-elle une influence sur la résistance mécanique ? Ces questions sont bien trop complexes pour pouvoir être théorisées.

Un tel travail mené en lien avec le CEA a d'abord pour but de donner une teinture scientifique à une décision de conditionnement des déchets radioactifs. Le document du CEA utilise ainsi une figure de ce travail en prétendant qu'il s'agit d'auto réparation du verre irradié (**voir annexe 2**), alors qu'il n'y a rien de tel dans la thèse, et en se gardant de rappeler qu'il ne s'agit pas d'une observation scientifique, mais d'un modèle calculé dans un cas excessivement simplifié.

Et si cette modélisation montre un accroissement de la plasticité, donc une

moindre fragilité d'un verre irradié, il montre aussi, et c'est lié, la dé-polymérisation, le gonflement, la diminution de la dureté.

Que peut-on entrevoir de ce que pourrait être la dégradation de ces fûts de déchets vitrifiés, au cours des temps géologiques

Les galeries effondrées à ces échelles de temps seront imprégnées d'eaux profondes, les conteneurs seront corrodés, les fûts radioactifs irradieront l'eau circulant au voisinage, induisant des composés radio-toxiques.

L'auto-irradiation des verres les rendant plus vulnérables à l'eau (d'après les calculs), l'eau entraîne des radionucléides. D'après l'étude de l'auto-irradiation, modélisée en la remplaçant par la trempe (pseudo irradiation modélisée), les Bêta et Gamma ne paraissent pas modifier sensiblement les verres. Les Alpha entraînent un gonflement, une diminution des caractéristiques physiques (densité, dureté, module d'Young de 30%), et une augmentation de la résistance à la rupture. Ces résultats, cohérents avec des expérimentations, sont liés à la dé-polymérisation due à la radioactivité, ce qui rend le verre plus mou, et qui facilite la formation de micro-fissures de dé-cohésion, alors accessibles à l'attaque par l'eau.

D'après la modélisation de l'altération par l'eau dans le cas de verres simples en eau pure, il y a une chute rapide de la vitesse d'attaque, mais dans le cas de verres plus compliqués ou d'eaux chaudes de ph élevé, l'altération est plus rapide, importante. On voit là encore la supercherie qu'il y a à prétendre estimer la durabilité à l'échelle de centaines de milliers d'années compte-tenu de la grande sensibilité aléatoire à la composition chimique des verres et de l'eau sur les altérations.

Quelle que soit l'importance des calculs effectués, ceux-ci sont impuissants à représenter la complexité des phénomènes d'altération des fûts dans des conditions extrêmes de radioactivité, de température, de pression, de lessivage, et ce pour des durées permettant de confiner la désintégration des radionucléides artificiels issus de l'industrie nucléaire. Ces fûts sont destinés à être enfouis en couches profondes, et échappant donc à toute surveillance au delà de quelques dizaines d'années.

Le CEA prétend que ses prévisions sont corroborées par l'observation de verres romains (2000 ans, sans radioactivité ni chaleur), ou verres basaltiques géologiques qui ne contiennent pas de plutonium ou autres actinides. Il s'agit d'affirmations qui relèvent plus d'acte de foi que de démarche scientifique.

Les calculs et résultats présentés n'ont pas d'autre but que de couvrir le crime contre l'humanité future que se préparent à commettre les décideurs de la politique nucléaire (essentiellement Corps des Mines, et politiques sous influence).

Pierre Péguin - juil 13- d'après le travail initié par Gilbert Tallent, suite au débat contradictoire qui s'est déroulé à Tavel (Gard Rhodanien) le 17 juin 13, face à Mr Vernaz E. de Marcoule, dont la nullité des arguments a été stupéfiante.

Annexe 1, extraits de la thèse de Le Hai Kieu du 25 nov 11 à polytechnique *(en gras, des termes qui nous ont paru significatifs).*

INTRODUCTION

Le verre est un matériau très ancien. (...) Avec le développement de l'industrie nucléaire, le problème du stockage à long terme des déchets nucléaires, dont certains se caractérisent par une période radioactive de plusieurs millions d'années, s'est posé. Pour résoudre ce problème, le verre a été choisi comme matrice de confinement en raison à sa bonne résistance chimique et mécanique à long terme et de sa capacité à incorporer de fortes concentrations de déchets radioactifs.

Au cours du stockage, la matrice de confinement doit rester stable sous l'effet du milieu environnant ainsi que sous celui des auto-irradiations. La résistance à la fracturation est une propriété importante car elle va définir la surface de fissuration. Cette dernière affecte la capacité d'échange entre le milieu environnant et le verre, ce qui influence sa vitesse d'altération par l'eau.

Pour comprendre la résistance à la fracturation d'un verre, la connaissance de la structure atomique est un facteur important car c'est elle qui contrôle la fissuration. En particulier, l'existence de zones de faibles résistances permet l'amorçage de micro-fissures, premier pas vers le développement du réseau fissuré.

Dans les verres nucléaires, une amélioration notable de la résistance à la fracturation après irradiation a été observée, mais l'origine de cette évolution n'est pas encore totalement comprise.

(...) Les résultats expérimentaux montrent la ductilité du verre à l'échelle nanométrique, alors qu'au contraire, un comportement fragile est constaté à l'échelle macroscopique.

Certaines simulations à l'échelle de la structure atomique ont apporté des explications à cette ductilité nanométrique. Il en ressort qu'il est nécessaire de comprendre l'évolution atomistique durant la fracturation d'un verre pour comprendre son comportement macroscopique.

Des verres ternaires sodo-borosilicatés ont été choisis comme modèles des verres nucléaires complexes pour la réalisation des simulations. Les propriétés structurales et mécaniques d'une large gamme de verres à base de SiO_2 , B_2O_3 et Na_2O ont ainsi été reproduites. Le développement et la validation des potentiels fait l'objet du troisième chapitre.

En utilisant les potentiels ajustés, **nous avons pu simuler la fracturation** des verres sodo-borosilicatés sains et irradiés par la Dynamique Moléculaire. (...)

Introduction du sujet de thèse (p37)

Sous irradiation, le verre nucléaire présente une **évolution de la densité et des propriétés mécaniques (dureté, module d'Young, ténacité)**. (...). D'autre part, **une dépolymérisation du réseau vitreux est observée dans la structure du verre irradié.**

Concernant le réseau borosilicaté, une augmentation du pourcentage de bores tri-coordonnés ainsi que de la concentration en oxygène non-pontant permet de transformer des sodiums compensateurs en modificateurs. **La structure du verre devient plus désordonnée** en raison de l'élargissement des distributions des angles Si-O-Si, Si-O-B et de celle de la taille des anneaux.

Au cours du stockage, les colis des verres doivent rester stables à la fois sous l'effet du milieu environnant ainsi que sous l'effet des auto-irradiations. La ténacité, c'est-à-dire la résistance à la fracturation, est une propriété importante car c'est elle qui va définir pour les fissures débouchantes, la surface d'interaction et donc d'échange entre le milieu environnant et le colis de verre. **À l'échelle microscopique, le verre n'est pas vraiment un matériau homogène et il contient une alternance de régions de faible et de forte résistance.**

Par conséquent, la formation de fissures dans le corps du verre sera modulée par les processus atomistiques eux-mêmes dépendant de la structure locale. Comme l'irradiation provoque un réarrangement des environnements locaux des atomes, un effet sur le comportement à la fracturation est attendu.

Donc, l'objectif de ma thèse est de comparer, pour mieux les comprendre, les mécanismes de fracturation dans les verres sains et irradiés. Une importance particulière sera apportée aux mécanismes de germination et de croissance des cavités, qui sont à la base des processus de fracturation dans les verres. Pour cela, **nous nous proposons d'utiliser la simulation par la méthode de Dynamique Moléculaire classique pour identifier les corrélations entre les processus atomiques de fracturation et le comportement macroscopique.** **Récemment, l'Autorité de Sureté Nucléaire a autorisé, dans le cadre de la**

spécification 300AQ60, des teneurs en radioéléments pouvant représenter jusqu'à 1019 désintégrations α/g . Pour porter cette limite à des teneurs supérieures, il est nécessaire de s'assurer du bon comportement tant mécanique que structural des verres de confinement sous l'effet d'une augmentation des flux irradiants, ce qui nécessite une meilleure compréhension des effets aux échelles à la fois macroscopiques et microscopiques. (...) Un travail d'ajustement des potentiels a été fait pour reproduire au mieux les propriétés structurales et mécaniques des verres nucléaires simplifiés à base de SiO_2 , B_2O_3 et Na_2O . (...)

C O N C L U S I O N

Ce travail de thèse s'est attaché à comprendre les mécanismes de fracturation dans des verres nucléaires simplifiés sain et irradié. **Du fait de l'impossibilité de simuler un verre nucléaire complexe, riche de plus de trente de constituants, des verres ternaires à base de SiO_2 - B_2O_3 -**

Na_2O sont choisis. Ces verres simplifiés restent intéressants à étudier car de nombreuses études ont montré des analogies entre le comportement de ces verres, en particulier le verre ternaire appelé CJ1, et celui du verre nucléaire complexe R7T7.

La première étape a consisté à développer des potentiels empiriques pour modéliser précisément les propriétés structurales et mécaniques des systèmes sodo-borosilicatés. L'environnement des atomes de bore est complexe à modéliser du fait de l'existence de deux entités locales BO_3 et BO_4 . D'autre part, les concentrations relatives de ces deux types d'entités évoluent de façon non linéaire avec la composition du verre. **Il n'a donc pas été possible avec un seul jeu de paramètres de modéliser l'évolution des propriétés structurales et mécaniques des verres SiO_2 - B_2O_3 - Na_2O sur une large gamme de composition.** (...)

De grands échantillons de verre **ont été simulés** pour tester l'effet de taille. On n'observe aucune modification majeure de la structure lorsque le nombre d'atomes varie de 10 000 à 100 000. Des systèmes de 100 000 atomes ont été utilisés pour simuler la fracturation des verres. (...) . Une fois les méthodes d'analyse mises en place, un processus de fracturation du verre CJ1 sain a été simulé. **Le mécanisme de fracturation passe par la nucléation, la croissance, puis la coalescence des cavités.** La courbe contrainte-déformation est divisée en quatre phases : la phase élastique, la phase plastique, la phase de coalescence et la phase de décohesion. Ici on considère que le verre est élastique si, sur la base des fonctions de distribution radiale, la majorité des liaisons présentent un allongement, les liaisons rompues représentant une faible part du total. Dans la phase élastique, la nucléation des cavités est prédominante, tandis que la croissance des cavités joue un rôle important dans la phase plastique. La nucléation des cavités, provient d'une part de l'élargissement des anneaux (des anneaux de taille 6, 7, 8, puis 9 se forment au cours de la fracturation), et d'autre part de la déformation des clusters d'atomes de sodium modificateurs.

(...) L'existence d'une zone plastique au front de la fissure a été confirmée. Au cours de la fracturation, l'énergie est dissipée sous deux formes : l'énergie consommée par les ruptures des liaisons, et l'énergie consommée par les phénomènes plastiques dans la process zone et autour des cavités.

À l'échelle nanométrique, les cavités affectent le comportement mécanique de l'échantillon. Lorsque leur taille est suffisamment grande, elles aident à relâcher les contraintes dans leur voisinage. C'est pourquoi l'avancée du front de fissure est limitée par la présence des cavités. (...) La ténacité est associée à la partie de l'énergie élastique perdue lors de la déformation et du bris des liaisons (elles-mêmes fonction du nombre de Na modificateurs) et de l'énergie plastique dissipée (fonction du nombre de bore tri-coordonnés). La ténacité diminue quand la concentration en atomes de sodium modificateurs augmente ou quand la concentration en atomes de bore tri-coordonnés diminue. Cette corrélation se vérifie pour les trois verres SBN55, CJ1, SBN12.

Devant la difficulté à simuler un verre irradié de grande taille par la méthode des cascades de déplacements, une approche fondée sur l'analogie entre l'effet de trempe et l'effet d'irradiation a été utilisée. Cette approche permet de simuler qualitativement l'effet de l'irradiation en utilisant un schéma de traitement thermique accéléré. **La structure du verre pseudo-irradié obtenu par cette approche a servi pour la simulation de la fracturation.** Il convient de garder à l'esprit que **l'effet de trempe utilisé pour modéliser les effets d'irradiation ne reproduit pas exactement les conséquences** des cascades de déplacements. En particulier, la formation possible de régions différentes dans les traces des cascades de déplacements n'est pas autorisée par cette méthode. Nous avons étudié ici l'influence de la mise en désordre du verre sur les processus de fracturation, mais il est possible que les effets structuraux particuliers des processus balistiques

aient d'autres conséquences inaccessibles par notre approche.

Les **effets d'irradiation sur la fracturation des verres pseudo-irradiés** ont été analysés. **Les effets dépendent de la composition du verre.** Pour un verre dont la densité et la coordinence du bore évoluent peu (SBN12), la diminution du module élastique est moindre et la modification de la phase plastique est négligeable. Au final, on observe une **diminution de la ténacité sous la pseudo irradiation essentiellement due au changement de l'élasticité.** Dans les verres CJ1 et SBN55, la concentration en atomes de bore tri-coordonnés augmente fortement sous l'effet de la pseudo irradiation, ce qui explique la **croissance de leur plasticité. La coalescence est plus lente, conduisant à un retard du seuil de décohesion. Malgré la diminution de l'élasticité, l'évolution de leur plasticité induit une augmentation de la ténacité.**

(...) Pour tester l'effet de taille sur la fracturation, de grands échantillons d'un million d'atomes ont été fracturés. Pour une même vitesse de déformation, un grand échantillon présente un comportement plus plastique. L'existence de plusieurs sites plastiques locaux permet de ralentir la croissance et la coalescence des cavités pour conduire à un retard de la décohesion. Les résultats de la simulation pour le verre CJ1 ont été validés par la mesure de la ténacité avant et après irradiation. **Une augmentation de la ténacité du verre irradié confirme les résultats obtenus par la simulation.**

(...) il est apparu une concentration plus importante des cavités dans la section atomistiques centrale, ce qui influence la fracturation des verres (**les verres deviennent plus fragiles**). La rugosité de la surface de rupture est également modifiée (la rugosité diminue).

Perspectives Des observations préliminaires ont été faites concernant la diffusion des espèces.

(...) Cette **méthode encore à l'état embryonnaire** offre de nombreuses possibilités de développements futurs pour aller progressivement vers la modélisation à l'échelle macroscopique de la fracturation des colis de verres.

Annexe 2, verres autoréparants selon Etienne Vernaz

Les exemples ci-dessous montrent comment on peut détourner le travail de la thèse ci-dessus. Non seulement la simulation développée est excessivement fragile, mais en plus on en tord le résultat. Les calculs montrent dans des cas très simplifiés un gonflement du verre, un ramollissement qui accroît la résistance à la fracturation, et un développement de fissures ouvertes à l'eau, sous l'effet de trempe (refroidissement rapide *assimilé à une irradiation!*).

A aucun moment il n'est possible de modéliser l'effet conjugué de l'irradiation, de la température, de la composition du verre, du Ph de l'eau, de la contrainte exercée par la pression des masses de roches ou d'argile effondrées. Etienne Vernaz annonce néanmoins qu'il y a autoréparation avec schéma à l'appui qui fait illusion, et ce dans deux documents :

Conférence Etienne Vernaz, Journées USTV-GDR Verres les 8 et 9 décembre 2011, p 34

<http://www.ustverre.fr/site/ustv/Rennes2011/Conférence/Vernaz.pdf>

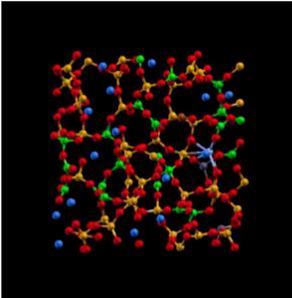
Effet de l'auto-irradiation



❖ Des verres dopés à 0,5 et 1,5% de ^{244}Cm ont été réalisés .

❖ Ils ont intégrés des doses allant jusqu'à 10^{19} α/g et simulant plus de 10 000 ans.





Le verre un matériau auto réparant !

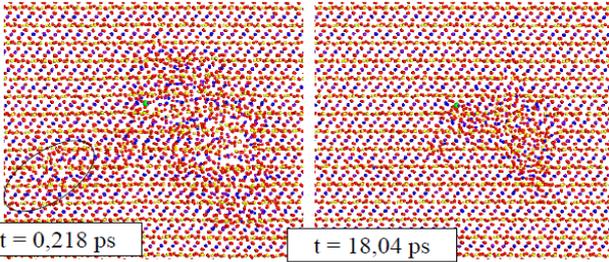
Pas d'influence néfaste de l'auto-irradiation sur le comportement à long terme des verres nucléaires.

Etienne Vernaz CEA Marcoule 34 Journées USTV-GDR Verres les 8 et 9 décembre 2011

et Le verre de l'antiquité à nos jours, Etienne Vernaz, p 49 et 50

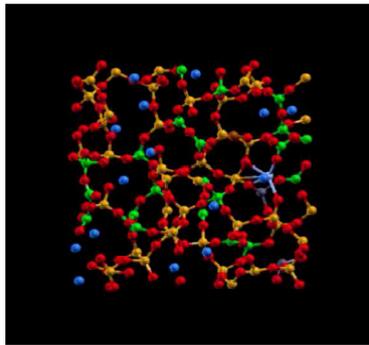
<http://www.visiatome.fr/Local/visiatome/files/493/le.Verre.de.l-antiquite.a.nos.jours.par.Etienne.Vernaz.le.13.10.2011.pdf>

Modélisation atomistique des effets d'irradiation



Modélisation par Dynamique Moléculaire d'une cascade de déplacements dans de la zirconolite avec $E_c(U^{4+}) = 12 \text{ keV}$ à $T = 320 \text{ K}$. (épaisseur = 11 \AA) Les positions des ions Ca, Zr, Ti, O, U sont colorées en bleu, violet, jaune, rouge et vert respectivement.

Le verre un matériau auto-réparant !



Si: gilded; O: red; B: green; Na: blue; Zr: chestnut ; Al: grey ; U: sky blue