



## Inventaire radiologique 2021 des déchets de graphite du CEA (Article 39 PNGMDR)

**Résumé :** Sont considérés dans ce document, les déchets de graphite des réacteurs UNGG G1/G2/G3, (environ 3804 tonnes d'empilements), des réacteurs expérimentaux à eau lourde EL2 et EL3 ou à neutrons rapides Rapsodie (environ 121 tonnes) et des déchets de chemises en graphite provenant du retraitement des combustibles des réacteurs EDF Chinon A2 et Chinon A3 (730 tonnes) entreposées sur le centre de Marcoule. L'ensemble de ces déchets de graphite est localisé sur les trois sites du CEA que sont Cadarache, Marcoule et Saclay dont environ 97 % de la masse totale à Marcoule.

Les déchets de graphite des réacteurs UNGG G1, G2 et G3 ainsi que les chemises en graphite de Chinon A2 et Chinon A3 ont fait l'objet depuis 2015, d'un programme de R&D au CEA visant à améliorer la connaissance de leurs données radiologiques. La meilleure connaissance possible de ces données contribue au dimensionnement des opérations de démantèlement des réacteurs ou des opérations de reprise de ces déchets (comme pour les chemises en graphite), de fournir les éléments dimensionnant pour le concept de stockage FAVL auquel certains sont potentiellement destinés, et ceux nécessaires à la définition d'un exutoire au juste besoin. Cette note s'inscrit dans le cadre de la réponse du CEA à l'article 39 du PNGMDR 2016-2018 et constitue le bilan de ce programme de R&D, depuis l'inventaire émis en 2015.

## SOMMAIRE

<b>1. INTRODUCTION</b> .....	<b>4</b>
<b>2. GLOSSAIRE</b> .....	<b>5</b>
<b>3. ETAT DES LIEUX</b> .....	<b>6</b>
3.1. ORIGINE ET CARACTERISTIQUES .....	6
<b>3.1.1. Réacteurs UNGG G1, G2 et G3</b> .....	<b>6</b>
<b>3.1.2. Chemises en graphite issues du retraitement des combustibles Chinon A2 et A3</b> ...	<b>6</b>
<b>3.1.3. Réacteurs EL2 et EL3</b> .....	<b>8</b>
<b>3.1.4. Réacteur Rapsodie</b> .....	<b>8</b>
3.2. INVENTAIRE PHYSIQUE DES DECHETS DE GRAPHITE .....	9
<b>4. DESCRIPTION DES METHODES D'OBTENTION DES INVENTAIRES</b> .....	<b>10</b>
4.1. METHODE D'AJUSTEMENT CALCULS/MESURES POUR LES REACTEURS G1 ET G2 (G3).....	10
4.2. CHEMISES CHA2 ET CHA3 : MESURES DANS LES FOSSES ET DISTRIBUTION STATISTIQUE DES VALEURS.....	13
4.3. REACTEURS EL2 ET EL3.....	14
4.4. REACTEUR RAPSODIE .....	14
<b>5. INVENTAIRE RADIOLOGIQUE</b> .....	<b>14</b>
5.1. INVENTAIRE DES EMPILEMENTS UNGG (G1, G2 ET G3).....	15
<b>5.1.1. Historique des inventaires radiologiques UNGG des empilements de graphite des réacteurs G1, G2, G3</b> .....	<b>15</b>
<b>5.1.2. Actualisation de l'inventaire radiologique des empilements de graphite des réacteurs G1, G2, G3</b> .....	<b>16</b>
5.2. INVENTAIRE RADIOLOGIQUE DES CHEMISES CHA2 ET CHA3 .....	17
5.3. INVENTAIRE RADIOLOGIQUE DES REACTEURS EL2 ET EL3 .....	18
5.4. INVENTAIRE RADIOLOGIQUE DU REACTEUR RAPSODIE.....	19
5.5. INVENTAIRE GLOBAL .....	20
<b>6. CONCLUSION</b> .....	<b>22</b>



## LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Caractéristiques des réacteurs UNGG G1, G2 et G3.....	6
Tableau 2 : Caractéristiques des réacteurs EL2 et EL3 du site de Saclay.....	8
Tableau 3 : Caractéristiques du réacteur Rapsodie du site de Cadarache .....	8
Tableau 4 : Inventaire pour le PNGMDR 2021 des déchets de graphite entreposés sur des sites du CEA.....	9
Tableau 5 : Inventaire radiologique des empilements UNGG du CEA Marcoule établis au titre du PNGMDR 2015 15	
Tableau 6 : Évolution des inventaires déclarés en <sup>36</sup> Cl pour les réacteurs G1, G2 et G3 suivant les méthodes de calculs 15	
Tableau 7 : Inventaire radiologique au 31/12/2021 des empilements de graphite des réacteurs G1, G2 et G3 .	16
Tableau 8 : Comparaison des inventaires déclarés en <sup>36</sup> Cl pour les réacteurs G1, G2 et G3 suivant les méthodologies de calculs des années 2015, 2019 et 2021 .....	17
Tableau 9 : Inventaire radiologique des chemises de graphite entreposées dans les fosses de MAR400 établi au titre du PNGMDR 2015 .....	17
Tableau 10 : Inventaire radiologique des chemises graphite entreposées dans les fosses de MAR400 au 31/12/2021 .....	18
Tableau 11 : Inventaire radiologique complémentaire des chemises graphite entreposées dans les fosses de MAR400 au 31/12/2021 .....	18
Tableau 12 : Inventaire radiologique du graphite des réacteurs EL2 et EL3 au 01/09/2008 et au 31/12/2021 ...	18
Tableau 13 : Inventaire radiologique complémentaire du graphite des réacteurs EL2 et EL3 au 01/09/2008 et au 31/12/2021 .....	19
Tableau 14 : Inventaire radiologique du graphite du réacteur Rapsodie au 01/01/2012 et au 31/12/2021 .....	19
Tableau 15 : Inventaire radiologique complémentaire du graphite du réacteur Rapsodie au 01/01/2012 et au 31/12/2021 .....	19
Tableau 16 : Inventaire radiologique global de l'ensemble des déchets de graphite entreposés sur les sites CEA (dont chemises CHA2/CHA3 EDF) en 2021 .....	21

## 1. INTRODUCTION

L'arrêté du 23 février 2017 pris en application du décret n°2017-231 du 23 février 2017 pris pour application de l'article L. 542-1-2 du code de l'environnement et établissant les prescriptions du Plan National de Gestion de Matières et Déchets Radioactifs (PNGMDR) demande, au titre de l'article 39, du chapitre 4 sur les déchets radioactifs de faible activité à vie longue (FA-VL) que : « *Le CEA et EDF poursuivent leurs études pour fiabiliser l'inventaire radiologique des déchets de graphite : i. afin de conforter la méthode inverse d'évaluation de l'inventaire, EDF et le CEA vérifient par des campagnes complémentaires de mesures le caractère conservatif de l'inventaire total en <sup>36</sup>Cl actuellement présenté. [...] Le CEA achève ses mesures avant le 31 décembre 2021 et remet au ministre chargé de l'énergie avant le 30 juin 2019 une étude présentant ses résultats et conclusions intermédiaires.* »

L'inventaire des déchets de graphite considéré est d'environ 4655 tonnes, qui proviennent :

- des modérateurs et réflecteurs en graphite des **3 réacteurs** plutonigènes et électrogènes **G1, G2 et G3** localisés sur le site de Marcoule (3804 tonnes).
- des **chemises de graphite** qui entouraient le combustible en provenance des réacteurs EDF **Chinon A2 et Chinon A3**. Ces chemises (sous forme de broyats) sont actuellement entreposées dans les fosses de l'atelier MAR400 de l'installation Dégainage de Marcoule (730 tonnes).
- des réflecteurs des réacteurs expérimentaux à eau lourde **EL2, EL3** sur Saclay et des bouchons de protection biologique du réacteur de recherche **Rapsodie** sur Cadarache (soit environ 121 tonnes).

Les déchets de graphite contiennent essentiellement des radionucléides issus de l'**activation neutronique des impuretés** (à l'état de traces) présentes initialement dans le graphite ou des impuretés apportées par le gaz caloporteur permettant de refroidir les réacteurs.

En fonction de la période de construction des réacteurs UNGG, la nature et les matériaux utilisés pour la fabrication du graphite de qualité nucléaire pouvaient varier, du fait notamment de l'évolution du procédé de purification au cours du temps. L'empilement de chaque réacteur est alors constitué d'une qualité de graphite particulière. Cette évolution de procédé de fabrication associée à la faible teneur des impuretés et à leurs propriétés physicochimiques (possible volatilité notamment le chlore) explique en partie **la variabilité des inventaires des RN dans le graphite**. De plus, dans un réacteur les conditions d'irradiation, de température de fonctionnement et de mise à l'arrêt des réacteurs sont différentes et accentuent cette variabilité.

Dans le cadre des précédents PNGMDR et notamment celui de 2015, il a été démontré conjointement par EDF et CEA la pertinence de la méthodologie calculs/mesures pour l'amélioration et la consolidation des inventaires des déchets de graphite provenant des empilements issus de l'exploitation de la première filière de réacteurs nucléaires à Uranium Naturel Graphite Gaz.

Le programme mis en place à partir de 2015 a permis l'acquisition de nouvelles données (prélèvements et analyses d'échantillons, validation des mesures/données) utilisées dans la méthode calculs/mesures donnant lieu

à un inventaire en  $^{36}\text{Cl}$  en 2019. En effet le  $^{36}\text{Cl}$ , de par sa longue période radioactive ( $3,0 \cdot 10^5$  ans) et son comportement mobile en milieu géologique est dimensionnant pour les études d'impact en condition de stockage. Ensuite, la méthodologie a été étendue à l'ensemble des radionucléides dans la présente note (2021) et réactualisée pour le  $^{36}\text{Cl}$ . Plus particulièrement, les inventaires du graphite des réacteurs UNGG G1, G2 et G3 ont été mis à jour suite au programme de R&D du CEA mis en place en 2015 et visant à améliorer la connaissance de leurs données radiologiques.

Concernant les chemises en graphite des éléments combustibles des réacteurs EDF de Chinon A2 et A3, la démarche est basée sur un axe expérimental. Des campagnes de mesures réalisées à partir de 2016 ont permis d'enrichir l'état des connaissances radiologiques des graphites afin d'en estimer un inventaire.

Concernant les réacteurs expérimentaux, qui ne représentent que 2,6 % de la masse totale de graphite du CEA, l'inventaire radiologique n'a pas été réévalué. Spécifiquement pour ces déchets, l'inventaire de référence est celui déclaré en 2015 dans le référentiel graphite de l'Andra et actualisé à la date du 31/12/2021.

Ce document fait donc l'objet de l'inventaire complet en radionucléides des déchets de graphite déclaré à l'Inventaire National en 2021.

## **2. GLOSSAIRE**

<b>Abréviation</b>	<b>Signification</b>
CAO	Conception Assistée par Ordinateur
CHA2	Réacteur EDF Chinon A2
CHA3	Réacteur EDF Chinon A3
EL2/EL3	Réacteur à Eau Lourde du CEA
PNGMDR	Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs
RN	RadioNucléide
UNGG	Uranium Naturel Graphite Gaz
RNR	Réacteur à Neutrons Rapides
SLA1	Réacteur EDF de St-Laurent A1
SLA2	Réacteur EDF de St-Laurent A2

### 3. ETAT DES LIEUX

#### 3.1. ORIGINE ET CARACTERISTIQUES

##### 3.1.1. Réacteurs UNGG G1, G2 et G3

Les principales caractéristiques des réacteurs UNGG G1, G2 et G3 sont présentées dans le [Tableau 1](#). Ces trois réacteurs représentent 3804 tonnes de graphite.

➤ [Tableau 1 : Caractéristiques des réacteurs UNGG G1, G2 et G3](#)

Réacteur	G1	G2	G3
Type	UNGG	UNGG	UNGG
Site	Marcoule (30)	Marcoule (30)	Marcoule (30)
1 <sup>ère</sup> divergence	Janvier 1956	Juillet 1958	Juin 1959
Date d'arrêt définitif	Octobre 1968	Février 1980	Juin 1984
Puissance thermique (MW)	46	250	250
Puissance électrique (MW)	-	38	38
Caloporteur (pression MPa*)	Air (0,1)	CO <sub>2</sub> (1,5)	CO <sub>2</sub> (1,5)
T° graphite en fonctionnement (°C)	30-230	140-400	140-400

\* Pression absolue du gaz (1 bar = fonctionnement à la pression atmosphérique)

##### 3.1.2. Chemises en graphite issues du retraitement des combustibles Chinon A2 et A3

Des déchets de chemises en graphite ont été générés par les opérations de déchemisage des éléments combustibles irradiés de Chinon A2 et Chinon A3, (réacteurs UNGG d'EDF) et sont entreposés dans l'atelier MAR400 du site de Marcoule. Ces déchets de chemises représentent 730 tonnes et se trouvent dans des fosses spécifiques sous forme de broyat et séparés des fils de selles pour environ 90 % massique et le reste sous forme de découpe avec fils de selles.

Les chemises (cf. [Figure 1](#)) étaient initialement des cylindres creux en graphite, d'environ 60 cm de long, qui entouraient les éléments combustibles. L'élément combustible reposait sur une selle support elle-même centrée dans la chemise au moyen des fils de selle en acier inoxydable (1,5 mm de diamètre environ). Ces chemises étaient nécessaires pour supporter la contrainte mécanique exercée par les cartouches de combustible empilées les unes sur les autres dans les canaux combustibles des réacteurs à empilement verticaux et à ce titre possédaient une résistance mécanique accrue résultant d'un procédé de fabrication différent du graphite d'empilement (porosité plus faible résultat d'une double imprégnation au brai).

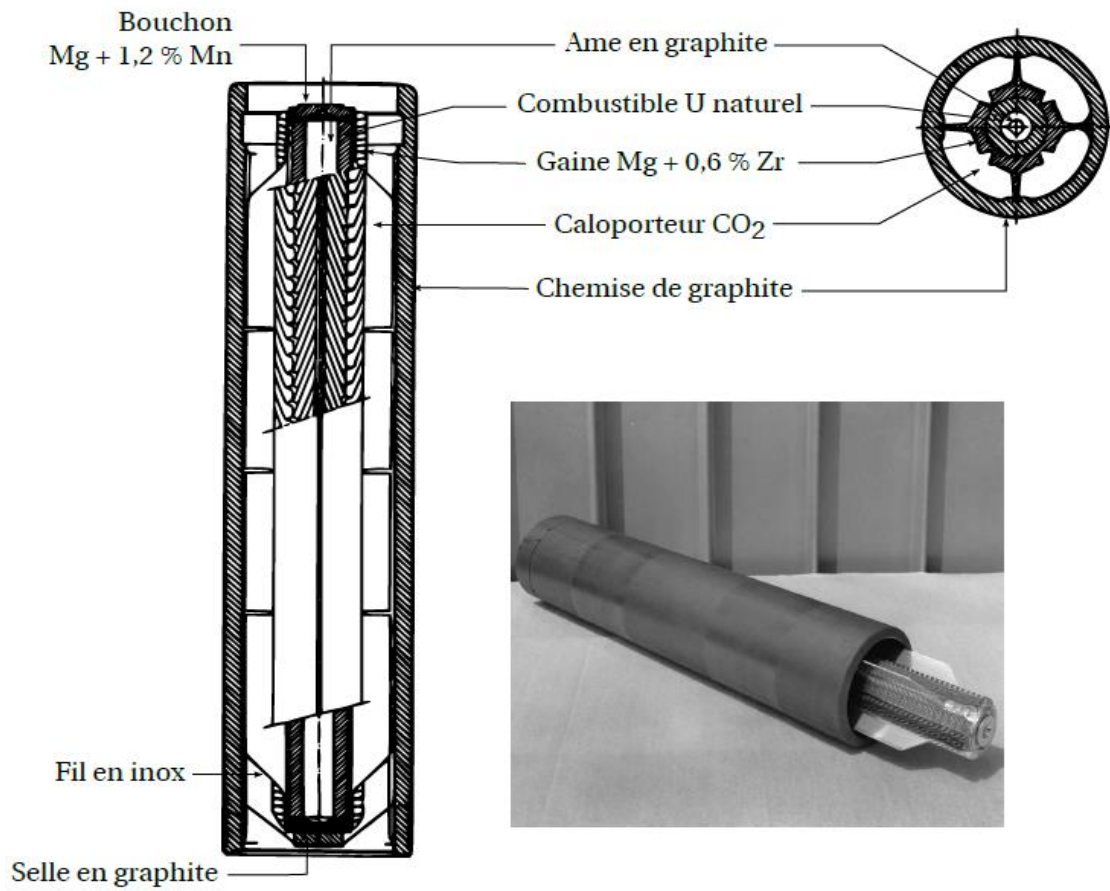


Figure 1 : Schéma de principe en coupe d'un élément de combustible à âme graphite avec chemise

### 3.1.3. Réacteurs EL2 et EL3

**EL2 et EL3** sont des réacteurs expérimentaux à eau lourde situés sur le site du CEA de Saclay ayant divergé respectivement en octobre 1952 et juillet 1957. Ils délivraient une puissance thermique de 2,5 et 18 MW. Ces deux réacteurs s'appuyaient sur une conception de cœur à uranium très faiblement enrichi et modéré à l'eau lourde. Ils ont été arrêtés en 1965 et 1979, leur combustible a été déchargé et leur réflecteur en graphite est resté en place.

➤ **Tableau 2 : Caractéristiques des réacteurs EL2 et EL3 du site de Saclay**

Réacteur	EL2	EL3
Type	Eau lourde	Eau Lourde
Site	Saclay (91)	Saclay (91)
1 <sup>ère</sup> divergence	Octobre 1952	Juillet 1957
Date d'arrêt définitif	Septembre 1965	Mars 1979
Puissance thermique (MW)	2,5	18
Modérateur	Eau lourde	Eau lourde

### 3.1.4. Réacteur Rapsodie

Le réacteur **Rapsodie**, situé sur le site du CEA de Cadarache, est un réacteur de recherche à neutrons rapides (RNR) refroidi au sodium liquide ayant divergé en 1967. D'une puissance thermique initiale de 20 MW, portée en 1970 à 40 MW, il est arrêté définitivement le 15 avril 1983. Le bouchon tournant, au-dessus du cœur du réacteur, comporte plusieurs pièces circulaires remplies, dans sa partie haute, de graphite boré.

➤ **Tableau 3 : Caractéristiques du réacteur Rapsodie du site de Cadarache**

Réacteur	Rapsodie
Type	RNR
Site	Cadarache (13)
1 <sup>ère</sup> divergence	1967
Date d'arrêt définitif	1983
Puissance thermique (MW)	20-40
Caloporteur	Na liquide
T° graphite en fonctionnement (°C)	150-550



### 3.2. INVENTAIRE PHYSIQUE DES DECHETS DE GRAPHITE

Le graphite de qualité nucléaire présent dans les réacteurs présentés ci-dessus, a eu des utilisations différentes en fonction des réacteurs. Il a principalement été employé comme modérateur, réflecteur, protection thermique (mur), chemises de combustibles et a été utilisé dans la composition des bouchons de protection biologique de réacteurs.

Le tableau suivant décrit l'utilisation et la masse des graphites propres à chaque réacteur.

➤ **Tableau 4 : Inventaire pour le PNGMDR 2021 des déchets de graphite entreposés sur des sites du CEA**

Réacteur	Utilisation dans le réacteur	Masse (t)	Contribution à la masse totale (%)
<b>G1</b>	Modérateurs, réflecteurs, bouchons	1200	25,7 %
<b>G2</b>	Modérateurs, réflecteurs, mur, bouchons	1302	28,0 %
<b>G3</b>	Modérateurs, réflecteurs, mur, bouchons	1302	28,0 %
<b>CHA2 - CHA3 (EDF)</b>	Chemises	730	15,7 %
<b>EL2</b>	Réflecteurs et colonne thermique	57	1,2 %
<b>EL3</b>	Réflecteurs et colonne thermique	52	1,1 %
<b>Rapsodie</b>	Bouchons tournants de protection biologique	12	0,3 %
Masse totale (t)		4655	100 %

Les actions du CEA visant à améliorer les inventaires radiologiques des déchets de graphite traitent, en priorité, le cas des empilements de graphite des réacteurs UNGG G1, G2, G3 (soit 81,7 % en masse des déchets de graphite du CEA) et les chemises de graphite provenant des éléments combustibles d'EDF CHA2/CHA3. Ces améliorations concernent donc 97,4 % de la masse totale des déchets de graphite entreposés sur les sites du CEA.

Les autres déchets, provenant des réacteurs expérimentaux comme Rapsodie, EL2 et EL3, ont été répertoriés mais n'ont pas fait l'objet de nouvelles études ou analyses induisant une mise à jour de leur inventaire radiologique.

Dans le paragraphe suivant, les méthodes d'obtention des inventaires radiologiques pour les déchets de graphite indiquées au **Tableau 4** sont décrites.

## **4. DESCRIPTION DES METHODES D'OBTENTION DES INVENTAIRES**

Depuis 2015, une stratégie de mise à jour des inventaires radiologiques des déchets de graphite a été mise en place. Celle des empilements des réacteurs G1, G2 et G3 est basée sur une approche d'ajustement calculs/mesures des activités radiologiques des RN d'intérêts. Cette approche est encore appelée « méthode inverse ». Pour rappel, cette méthode a été utilisée car elle permet d'obtenir un inventaire radiologique global et précis contrairement à une activité moyenne mesurée sur quelques échantillons des réacteurs (méthode du PNGMDR de 2015).

Cette stratégie nécessite le développement d'un modèle d'activation des impuretés présentes dans le graphite, sous flux neutronique, dont les paramètres sont ajustés/validés en fonction des résultats des mesures historiques du flux neutronique en fonctionnement et des mesures radiochimiques (teneur en impuretés du graphite) sur prélèvements après l'arrêt définitif du réacteur. Cette approche d'ajustement calculs/mesures des activités radiologiques des RN d'intérêts permet de tenir compte des phénomènes physico-chimiques tels que la dispersion des impuretés, les processus d'évolution des matériaux sous l'effet de l'irradiation ou de la température de fonctionnement du réacteur.

Cette méthode a permis de fiabiliser et d'affiner l'inventaire radiologique des déchets de graphite dans le cadre de la réponse à l'article 39 du PNGMDR 2016-2018 portant sur l'inventaire du  $^{36}\text{Cl}$ . Elle a été étendue pour la présente note à l'ensemble des activités des RN majoritaires et d'intérêt pour le stockage des déchets. Les mesures radiologiques ont ainsi été complétées lors des différentes campagnes d'analyses effectuées notamment depuis l'inventaire de 2015.

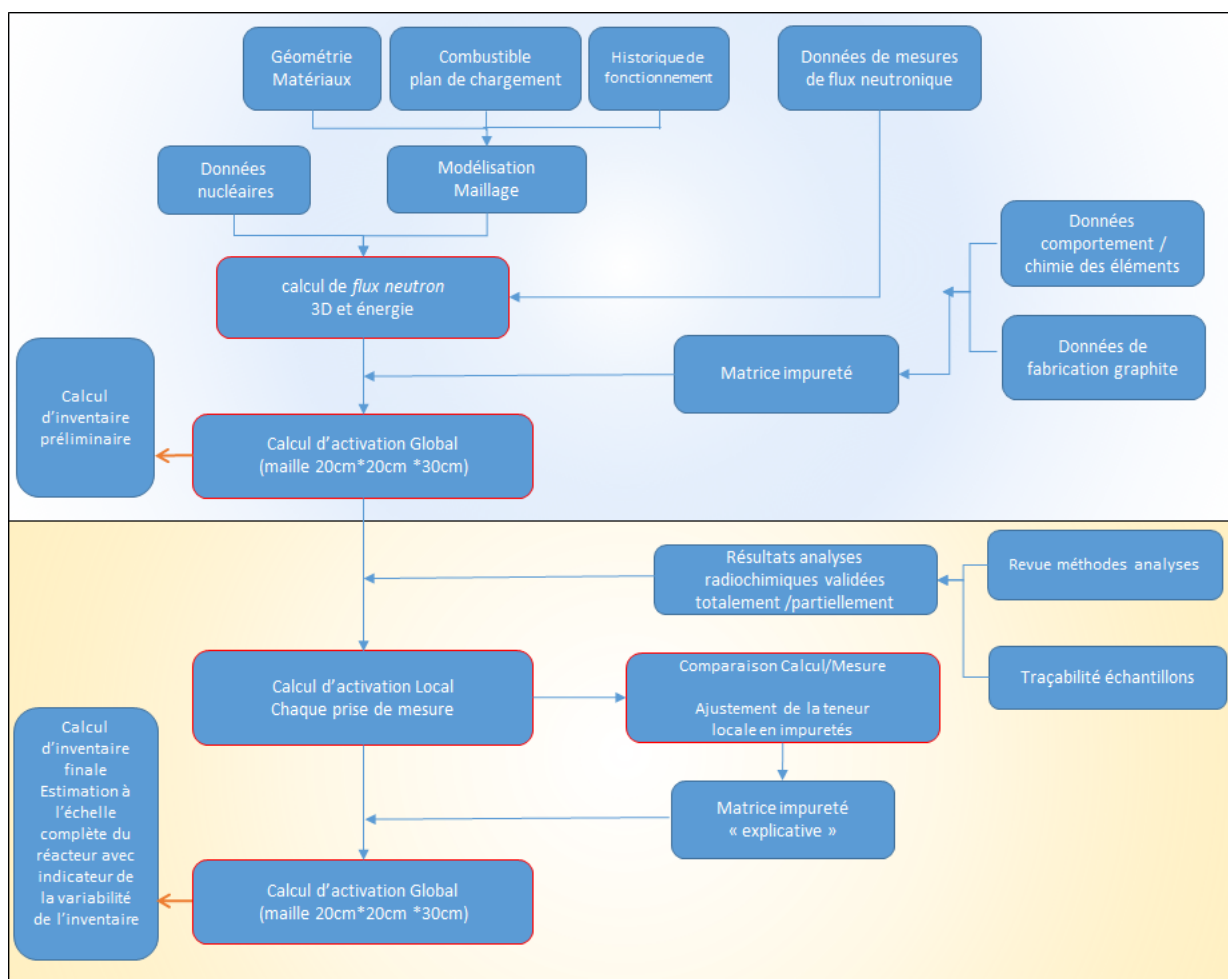
Dans le cas des réacteurs EL2 et EL3 et des déchets de chemises en graphite CHA2/CHA3, les méthodologies employées privilégient les mesures radiologiques, notamment les dernières campagnes de mesures 2016-2017 et 2019 pour CHA2/CHA3.

Dans le cas de Rapsodie, les calculs d'activation ont été privilégiés.

### **4.1. METHODE D'AJUSTEMENT CALCULS/MESURES POUR LES REACTEURS G1 ET G2 (G3)**

Le principe méthodologique retenu en vue de l'établissement des inventaires radiologiques des trois réacteurs G1, G2 et G3 est présenté par le logigramme sur la [Figure 2](#). Cette figure est composée de deux parties :

- La partie haute (zone bleue) correspond à l'étape 1 de la méthode : il s'agit d'une étape de calculs prenant en compte toutes les données nécessaires (géométrie du réacteur, plans de chargement du réacteur, historique de fonctionnement, composition chimique en impuretés du graphite). Cette étape fournit un premier inventaire radiologique du graphite.
- La partie basse (zone jaune) correspond à l'étape 2 de la méthode : il s'agit de l'étape d'ajustement calculs/mesures en fonction des mesures disponibles sur les prélèvements de graphite dans différentes zones de l'empilement graphite du réacteur. Cette seconde étape permet d'ajuster la composition des impuretés ayant l'impact le plus grand sur les radionucléides d'intérêt pour l'inventaire radiologique. A la suite de cette ajustement (ou méthode inverse), une nouvelle composition chimique en impuretés du graphite est établie et utilisée pour l'établissement de l'inventaire radiologique des empilements graphite pour le réacteur considéré.



➤ **Figure 2 : Méthodologie proposée en vue de l'établissement des inventaires radiologiques des graphites de G1, G2 et G3. En partie haute (zone bleue), l'étape 1 de la méthode avec la composition moyenne en impuretés dans le graphite à l'origine de la construction des réacteurs et en partie basse (zone jaune), l'étape 2 de la méthode en prenant en compte la comparaison entre les calculs à l'échelle locale et les mesures radiologiques sur prélèvement du réacteur**

### Etape 1 de la méthode

Lors de cette première série de calculs, les données de base (dimensions, matériaux, historique de fonctionnement) ont été récoltées et mises à jour pour l'établissement des inventaires des graphites de G1, G2 et G3 de la présente étude. Notamment, la modélisation géométrique 3D du réacteur a été réalisée à partir des plans 2D disponibles afin d'obtenir un modèle de type CAO global du réacteur. La mise à jour des données a été également réalisée avec un niveau plus fin de détails notamment au niveau du combustible et des identifications de zones sensibles (zones réflecteurs, interfaces matériaux) et des plans de chargement (réseaux d'absorbants). Le traitement de ces données d'entrées permet l'établissement d'une première cartographie de flux de neutrons dans les réacteurs (à l'aide d'un code Monte-Carlo), déclinés en énergie et en volume avec un maillage choisi équivalent à la dimension des briques de graphite.

**Dans cette première étape, les résultats des calculs de profil de flux neutroniques sont comparés aux mesures expérimentales de flux obtenus pendant le fonctionnement du réacteur en vue d'une validation globale. Cette étape a été réalisée pour les trois réacteurs G1, G2 et G3.**

En parallèle, une revue des données d'analyses et des échantillons disponibles est faite avec pour objectif de définir une composition moyenne en impuretés présentes dans les graphites à la construction des réacteurs.

A partir du flux neutronique précédemment calculé et de la matrice d'impuretés initiale du graphite, les calculs d'activation sont réalisés sur l'ensemble du réacteur (G1, G2 ou G3). Ces calculs d'activation suivent l'évolution de la composition chimique et radiologique du graphite durant l'historique d'irradiation et de décroissance correspondant au fonctionnement des réacteurs. Les résultats fournissent alors une première cartographie d'activation du bloc graphite avec le même maillage de la brique graphite. Cette modélisation complète du bloc graphite permet d'estimer l'inventaire global radiologique du graphite (pour G1, G2 ou G3). Cette cartographie d'activation est validée par une première comparaison entre les calculs et les mesures radiologiques. Elle se focalise principalement sur les formes et profils d'activités radiologiques mais aussi sur le niveau d'activité.

**A ce stade, un premier ajustement de la teneur en impuretés dans le graphite ou une reprise de calcul est possible suivant les résultats.**

## Etape 2 de la méthode

La seconde étape de la méthode permet de consolider la principale hypothèse qu'est la composition chimique du graphite. En effet, lors de la construction des réacteurs, la nature et la qualité du graphite (matériau synthétique fabriqué par fournée) utilisé n'étaient pas tout à fait les mêmes, du fait du procédé de purification qui a évolué au cours du temps. Associée à la faible teneur des impuretés (de l'ordre du ppm) et de leur volatilité, l'évolution des procédés de fabrication explique la variabilité des teneurs en impuretés, précurseurs des radionucléides dans le graphite, hors voie de réaction  $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$ , dont l'abondance naturelle du  $^{13}\text{C}$  est de 1,07 % dans le carbone. De plus, les conditions d'irradiation et de température de fonctionnement sont différentes pour chaque réacteur et accentuent la variabilité radiologique. Ainsi cette étape 2 consiste à ajuster la teneur en impuretés chimiques du graphite afin de minimiser l'écart entre le calcul et la mesure radiologique des prélèvements sur réacteur et ceci à l'échelle locale. Le calcul d'activation est réalisé sur chaque zone de prélèvement et avec un maillage plus fin, proche de la dimension des échantillons analysés. Pour chaque point de mesure, les résultats des calculs dans cette maille fine sont comparés aux valeurs mesurées. La teneur de chaque impureté est ainsi ajustée de façon à être explicative de l'activité mesurée. Cet ajustement, réalisé sur chaque précurseur de chaque radionucléide et pour chaque point de mesure permet ainsi d'avoir une matrice d'impuretés « explicative » du graphite. Cette matrice tient compte des variations de répartition stochastique des impuretés (évolution locale de concentration) et des phénomènes d'évolutions chimiques des matériaux (évolutions locales due à la température, perte par volatilisation ou autres phénomènes en lien avec les conditions de fonctionnement du réacteur). Elle permet d'obtenir la valeur moyenne de la distribution des valeurs d'impuretés qui ajuste les calculs localement et fournit également une estimation de sa dispersion.

Cette étude statistique est appliquée sur les radionucléides suivants :  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et certains actinides. Ces radionucléides sont les plus pertinents pour le stockage du graphite mais aussi en vue du démantèlement (dosimétrie par exemple).

A partir de cette méthode, la matrice « explicative » moyenne en impuretés présentes dans le graphite est mise à jour et permet de calculer l'inventaire radiologique consolidé de l'empilement du réacteur. **Cette méthode a été appliquée aux réacteurs G1 et G2.**

Pour le réacteur G3, à la suite de nombreux travaux (bibliographie sur les échantillons prélevés pour garantir leurs traçabilités, analyses d'un certain nombre de ces échantillons, établissement de méthodes de mesure rigoureuses), il a été montré qu'il n'est pas possible d'appliquer la méthode calculs/mesures. Les raisons principales sont liées au manque de représentativité et de traçabilité des échantillons prélevés durant le fonctionnement du réacteur (absence de prélèvements dans un certain nombre de zones du réacteur) et à l'absence de prélèvement ayant un historique complet de fonctionnement du réacteur (aucun prélèvement effectué après l'arrêt du réacteur). Néanmoins, les valeurs issues des analyses montrent dans l'ensemble le même ordre de grandeur que les valeurs issues du calcul.

L'inventaire radiologique mis à jour pour le graphite de G3 est basé sur les résultats du calcul d'activation neutronique effectué avec la matrice d'impuretés mise à jour (étape 1). Pour justifier le degré de confiance élevé de cet inventaire, objectif et conservatif, les points suivants peuvent être mentionnés :

- les données de base (maquette 3 D du réacteur avec géométrie, matériaux et historiques de fonctionnement) ont été vérifiées et mises à jour ;
- la composition chimique en impuretés du graphite, ayant une grande influence sur le calcul d'activation neutronique, a été établie après un travail important à la fois de bibliographie sur les données disponibles de fabrication, d'analyses et aussi d'études de comportement du graphite. Il peut être mentionné qu'un certain nombre de valeurs retenues pour les concentrations en impuretés dans le graphite englobent des valeurs réelles comme cela a pu être vérifié lors des démarches calculs/mesures menées sur les graphites des réacteurs G1 et G2. C'est principalement le cas du lithium, précurseur du tritium ( ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ ), dont la valeur initiale pour G3 est plus élevée que celle ajustée pour G2.

## 4.2. CHEMISES CHA2 ET CHA3 : MESURES DANS LES FOSSES ET DISTRIBUTION STATISTIQUE DES VALEURS

L'inventaire radiologique du graphite des chemises de Chinon A2 et A3 est basé sur un recoupement d'informations issues des données de fabrication, des opérations de déchemisage, de retraitements des éléments combustibles et de mesures d'échantillons. Ces échantillons ont été prélevés en 2008 à l'atelier MAR400 dans les fosses contenant des broyats des chemises séparés des fils de selles (environ 90 % massique de l'inventaire).

L'inventaire de 2015 a été révisé en se basant sur les résultats des campagnes de mesures réalisées en 2016-2017 et 2019. Cela représente 21 échantillons pour les analyses de  ${}^{36}\text{Cl}$  et  ${}^{14}\text{C}$  et 10 échantillons pour les autres RN. Avec les données disponibles, l'estimation de l'inventaire des fosses est basée sur le calcul de l'activité moyenne mesurée et exprimée pour les 730 tonnes des déchets de graphite.

L'application de cette méthodologie, par la prise en compte d'une statistique représentative sur un groupe de mesures et non plus seulement de points isolés, extrêmes et non représentatifs, recoupée avec les données historiques, conduit à un inventaire plus robuste que celui précédemment établi en 2015.

### 4.3. REACTEURS EL2 ET EL3

L'inventaire de ces déchets n'a pas été réactualisé compte tenu de leurs faibles masses. Les spectres radiologiques d'EL2 et EL3 sont obtenus à partir d'estimations issues de résultats de mesures d'activité spécifique, sur du graphite d'EL3 prélevé en 1984 lors du prélèvement de deux carottes. Le spectre radiologique a été complété avec d'autres RN d'intérêt ( $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ...) en introduisant comme valeurs majorantes les activités maximales mesurées sur d'autres échantillons de graphite plus fortement irradiés comme précisé ci-dessous.

Pour le réacteur EL3, entre une et cinq mesures ont été réalisées, et l'inventaire est alors considéré à partir de la valeur moyenne.

Pour le réacteur EL2, le CEA ne disposant d'aucun résultat d'analyses, l'inventaire radiologique d'EL2 a été déduit à partir des activités maximales de chaque radionucléide obtenues pour le graphite d'EL3. Cette hypothèse peut être justifiée par le fait que les réacteurs EL2 et EL3 sont du même type et qu'ils ont fonctionné durant des durées proches. De plus, EL2 a fonctionné à une puissance plus faible qu'EL3 (2,5 MWth comparé au 18 MWth de EL3) ce qui induit une plus faible activation du graphite justifiant un inventaire majorant pour EL2.

A partir de ces résultats, des calculs de décroissance radioactive ont été réalisés à la date du 1<sup>er</sup> septembre 2008 et un spectre d'activation a été établi.

Ces estimations sont donc majorantes au regard des valeurs utilisées pour compléter les inventaires radiologiques.

### 4.4. REACTEUR RAPSODIE

L'estimation de l'inventaire se base sur des calculs d'activation réalisés en 2007. La modélisation du bloc réacteur a été réalisée afin d'obtenir les flux neutroniques dans la plupart des équipements du réacteur. Du fait de l'absence de données précises sur la composition du graphite du réacteur de Rapsodie, qui porte la majeure partie des incertitudes des calculs d'activation, ceux-ci ont été réalisés à partir de la composition du graphite du réacteur Ulysse (réacteur dédié à l'enseignement d'élèves en physique des réacteurs) de Saclay. Seule exception, la teneur en bore du graphite de Rapsodie a été corrigée pour tenir compte du dopage à 5 % massique (neutrophage au sein des bouchons tournants).

A partir de cette composition chimique du graphite, les calculs d'activation ont été réalisés à la date du 01/01/2012.

## 5. INVENTAIRE RADIOLOGIQUE

Les inventaires radiologiques présentés ci-après concernent les radionucléides majoritaires et d'intérêt pour le stockage des déchets à savoir :

$^3\text{H}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{93}\text{Mo}$ ,  $^{137}\text{Cs}$

5 autres radionucléides pouvant présenter un intérêt sont également donnés :

$^{90}\text{Sr}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ .

## 5.1. INVENTAIRE DES EMPILEMENTS UNGG (G1, G2 ET G3)

### 5.1.1. Historique des inventaires radiologiques UNGG des empilements de graphite des réacteurs G1, G2, G3

Le dernier inventaire complet établi au titre du PNGMDR 2015 pour les réacteurs G1, G2 et G3 résultait à la fois de nouvelles analyses radiologiques par rapport à l'inventaire de 2009 mais également d'une amélioration des protocoles d'analyse. Cet inventaire est rappelé dans le [Tableau 5](#).

- [Tableau 5 : Inventaire radiologique des empilements UNGG du CEA Marcoule établis au titre du PNGMDR 2015](#)

Activité en TBq	G1	G2	G3	Total
<b>Masse (t)</b>	1200	1302	1302	3804
<sup>3</sup> H	25,33	73,29	84,89	<b>183,51</b>
<sup>10</sup> Be	0,006	0,0065	0,065	0,0775
<sup>14</sup> C	40,44	32,9	34,37	<b>107,71</b>
<sup>36</sup> Cl	0,0114	0,2299	0,6249	0,8662
<sup>41</sup> Ca	0,0131	0,0078	0,0036	0,0245
<sup>60</sup> Co	0,0294	0,8303	1,341	2,2007
<sup>63</sup> Ni	0,4344	12,064	10,754	<b>23,252</b>
<sup>137</sup> Cs	0,0176	0,1015	0,1217	0,2408
<b>A<sub>Tot</sub> (TBq)</b>	<b>66,28</b>	<b>119,43</b>	<b>132,17</b>	<b>317,88</b>

Du fait de sa longue durée de demi-vie ( $3,01 \cdot 10^5$  ans) et de sa mobilité en milieu géologique, le chlore 36 est susceptible d'induire un impact radiologique à long terme dans le cas d'un stockage de sub-surface FAVL. De ce fait, un focus particulier sur ce radionucléide a fait l'objet du document édité en 2019 au titre de l'avancée des calculs pour le PNGMDR. Ainsi, l'évolution au cours des différents inventaires en chlore 36 est rappelée dans le [Tableau 6](#).

- [Tableau 6 : Évolution des inventaires déclarés en <sup>36</sup>Cl pour les réacteurs G1, G2 et G3 suivant les méthodes de calculs](#)

Date des inventaires	G1	G2	G3	Total	Méthode de calculs
<b>Masse (t)</b>	1200	1302	1302	3804	
<b>2004</b>	1,56 TBq	1,69 TBq	1,69 TBq	4,94 TBq	Activités maximales mesurées
<b>2009</b>	1 TBq	0,795 TBq	0,795 TBq	2,59 TBq	Activités mesurées moyennes
<b>2015</b>	0,0114 TBq	0,229 TBq	0,624 TBq	0,86 TBq	Activités moyennes pondérées
<b>2019</b>	0,006 TBq	0,153 TBq	0,625 TBq	0,784 TBq	Ajustement calculs/mesures intermédiaire (G1 et G2)



### 5.1.2. Actualisation de l'inventaire radiologique des empilements de graphite des réacteurs G1, G2, G3

Les inventaires radiologiques des empilements en graphite des réacteurs G1, G2 et G3, calculés au 31/12/2021 sont donnés au [Tableau 7](#).

Les valeurs sont issues de l'activité massique moyenne (Bq/g), déterminées par la méthodologie d'ajustement calculs/mesures détaillée ci-dessus et appliquées à la masse complète de l'empilement de graphite des réacteurs (cf. [Tableau 4](#)).

L'inventaire actuel montre un impact fort des radionucléides  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  et  $^{63}\text{Ni}$  sur le bilan de l'inventaire du graphite des déchets UNGG.

➤ [Tableau 7 : Inventaire radiologique au 31/12/2021 des empilements de graphite des réacteurs G1, G2 et G3](#)

$A_{\text{tot}}$ (TBq)	G1	G2	G3
<b>Masse (t)</b>	1200	1302	1302
$^3\text{H}$	<b>14,86</b>	<b>24,39</b>	<b>257,29</b>
$^{10}\text{Be}$	0,0005	0,0002	0,0002
$^{14}\text{C}$	<b>26,67</b>	<b>20,52</b>	<b>20,71</b>
$^{36}\text{Cl}$	0,0069	0,19	0,60
$^{41}\text{Ca}$	0,0432	0,0076	0,22
$^{59}\text{Ni}$	0,0031	0,029	0,029
$^{60}\text{Co}$	0,0042	0,081	0,26
$^{63}\text{Ni}$	<b>0,26</b>	<b>2,83</b>	<b>3,02</b>
$^{93\text{m}}\text{Nb}$	0,0066	0,0052	0,0035
$^{93}\text{Mo}$	0,0080	0,0001	0,0007
$^{137}\text{Cs}$	0,011	0,018	0,0056
$^{90}\text{Sr}$	0,0090	0,0069	0,0026
$^{94\text{f}}\text{Nb}$	0,0006	0,0011	0,0005
$^{133}\text{Ba}$	0,0014	0,0082	0,012
$^{152}\text{Eu}$	0,020	0,012	0,0063
$^{154}\text{Eu}$	0,0097	0,035	0,077
$^{155}\text{Eu}$	0,0001	0,0019	0,0061
<b><math>A_{\text{Tot}}</math> (TBq)</b>	<b>41,93</b>	<b>48,19</b>	<b>282,29</b>
<b><math>A_{\text{Tot}}</math> (TBq) G1,G2,G3 = 372,41</b>			

En comparaison avec l'ancien inventaire de 2015, les valeurs obtenues pour les radionucléides  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  et  $^{63}\text{Ni}$  ont été revues à la baisse de façon significative pour G1 et G2. Ces écarts sont liés à une augmentation du nombre d'analyses d'échantillons et de mesures pour réaliser l'ajustement calculs/mesures.

Pour le réacteur G3, il est difficile de comparer ce nouvel inventaire à l'inventaire de 2015. En effet, comme décrit ci-avant (§ 4.1) le nouvel inventaire pour G3 est basé sur le calcul d'activation de tout le réacteur sans possibilité de l'ajuster faute d'échantillons représentatifs et en nombre suffisant alors que l'inventaire de 2015 était basé sur quelques résultats d'analyses à partir desquels l'inventaire de G3 a été extrapolé à tout le réacteur.



On constate à l'issue de l'application pour G3 de la première étape de la méthode inverse (ou ajustement calculs/mesures) que les résultats conduisent un inventaire radiologique plus élevé que celui de 2015. Cette hausse est essentiellement due à l'activité en  $^3\text{H}$ . Le taux d'impureté de lithium, précurseur du tritium, utilisé pour les calculs d'activation est issu des données bibliographiques. Cette valeur est quasiment 10 fois supérieure à celle ajustée par la méthode inverse appliquée intégralement à G2.

Concernant le  $^{36}\text{Cl}$ , l'inventaire a été également diminué par rapport aux valeurs de 2015 pour les trois réacteurs. Il n'y a pas d'évolution majeure de l'inventaire fourni en 2019 (**Tableau 8**), qui était un état d'avancement intermédiaire. L'inventaire 2021 est légèrement plus élevé que le précédent avec la prise en compte de nouvelles analyses et la finalisation de l'ajustement calculs/mesures.

- **Tableau 8 : Comparaison des inventaires déclarés en  $^{36}\text{Cl}$  pour les réacteurs G1, G2 et G3 suivant les méthodologies de calculs des années 2015, 2019 et 2021**

Date des inventaires	G1	G2	G3	Total	Méthode de calcul
Masse (t)	1200	1302	1302	3804	
2015	0,0114 TBq	0,229 TBq	0,624 TBq	0,86 TBq	Activités moyennes pondérées Ajustement calculs/mesures (G1 et G2) version 2019 Ajustement calculs/mesures (G1 et G2) version 2021
2019	0,006 TBq	0,153 TBq	0,625 TBq	0,784 TBq	
2021	0,0069 TBq	0,195 TBq	0,602 TBq	0,804TBq	

## 5.2. INVENTAIRE RADIOLOGIQUE DES CHEMISES CHA2 ET CHA3

Le spectre radiologique fourni au titre du PNGMDR 2015, globalement équivalent à celui établi en janvier 2009 est rappelé dans le tableau suivant :

- **Tableau 9 : Inventaire radiologique des chemises de graphite entreposées dans les fosses de MAR400 établi au titre du PNGMDR 2015**

Chemises	Masse (t)	$^3\text{H}$	$^{10}\text{Be}$	$^{14}\text{C}$	$^{36}\text{Cl}$	$^{41}\text{Ca}$	$^{60}\text{Co}$	$^{63}\text{Ni}$	$^{137}\text{Cs}$
A 2015 (TBq)	730	19,9	-	5,836	0,0084	-	0,19	0,23	0,0251

L'inventaire en chlore 36 a été conforté à 0,0084 TBq en 2019.

L'inventaire radiologique a été mis à jour sur la base du programme expérimental décrit ci-dessus tout en s'assurant de son caractère enveloppe et en étant le plus représentatif possible de la réalité.

Avec les données acquises depuis le PNGMDR de 2015, l'estimation de l'inventaire des fosses est donnée au **Tableau 10**. Il apparaît que les radionucléides les plus pénalisants sont le  $^3\text{H}$  puis le  $^{14}\text{C}$ . L'inventaire en chlore 36 est similaire à celui établi en 2019.

- **Tableau 10 : Inventaire radiologique des chemises graphite entreposées dans les fosses de MAR400 au 31/12/2021**

<b>m = 730 t</b>	<sup>3</sup> H	<sup>10</sup> Be	<sup>14</sup> C	<sup>36</sup> Cl	<sup>41</sup> Ca	<sup>60</sup> Co	<sup>59</sup> Ni	<sup>63</sup> Ni	<sup>93m</sup> Nb	<sup>93f</sup> Mo	<sup>137</sup> Cs
<b>A 2021 (TBq)</b>	36,9	-	7,85	0,007	-	0,06	-	0,45	-	-	0,03

D'autres RN pouvant présenter un intérêt vis-à-vis des scénarios de stockage / reprise des déchets sont donnés ci-dessous, notamment la teneur en émetteurs alpha.

- **Tableau 11 : Inventaire radiologique complémentaire des chemises graphite entreposées dans les fosses de MAR400 au 31/12/2021**

<b>m = 730 t</b>	<sup>90</sup> Sr	<sup>94f</sup> Nb	<sup>133</sup> Ba	<sup>152</sup> Eu	<sup>154</sup> Eu	<sup>155</sup> Eu	<b>ΣAlpha</b>
<b>A 2021 (TBq)</b>	-	-	-	0,02	0,11	0,02	0,0022

Ces valeurs sont celles actuellement estimées. Elles pourront faire l'objet de compléments notamment avec la détermination d'autres radionucléides de très faible activité par comparaison calculs/mesures. Cet inventaire radiologique pourra être précisé également en fonction des orientations de sûreté, des besoins de reprise et de conditionnement des déchets ou de l'exutoire.

### 5.3. INVENTAIRE RADIOLOGIQUE DES REACTEURS EL2 ET EL3

Les inventaires radiologiques estimés des réacteurs EL2 et EL3, ont été calculés à la date du 1<sup>er</sup> septembre 2008 et uniquement mis à jour pour le 31/12/2021 par calcul de la décroissance radioactive des radionucléides répertoriés. Ils sont présentés au **Tableau 12**.

- **Tableau 12 : Inventaire radiologique du graphite des réacteurs EL2 et EL3 au 01/09/2008 et au 31/12/2021**

<b>RN</b>		<sup>3</sup> H	<sup>10</sup> Be	<sup>14</sup> C	<sup>36</sup> Cl	<sup>41</sup> Ca	<sup>60</sup> Co	<sup>59</sup> Ni	<sup>63</sup> Ni	<sup>93m</sup> Nb	<sup>93f</sup> Mo	<sup>137</sup> Cs
<b>EL2</b> (m=57 t)	<b>A<sub>m</sub> 2008 (Bq/g)</b>	22221	-	11786	1300	-	427	-	5797	-	-	77
	<b>A 2008 (TBq)</b>	1,2666	-	0,6718	0,0741	-	0,0243	-	0,3304	-	-	0,0044
	<b>A<sub>m</sub> 2021 (Bq/g)</b>	10495	-	11767	1300	-	74	-	5286	-	-	57
	<b>A 2021 (TBq)</b>	0,5982	-	0,6707	0,0741	-	0,0042	-	0,3013	-	-	0,0032
<b>EL3</b> (m=52 t)	<b>A<sub>m</sub> 2008 (Bq/g)</b>	19062	-	4657	1300	-	903	-	6367	-	-	106
	<b>A 2008 (TBq)</b>	0,9912	-	0,2422	0,0676	-	0,047	-	0,3311	-	-	0,0055
	<b>A<sub>m</sub> 2021 (Bq/g)</b>	9003	-	4649	1300	-	156	-	5805	-	-	78
	<b>A 2021 (TBq)</b>	0,4686	-	0,2418	0,0676	-	0,0081	-	0,3019	-	-	0,0041

D'autres RN pouvant présenter un intérêt vis-à-vis des scénarios de stockage sont donnés ci-dessous :

- **Tableau 13 : Inventaire radiologique complémentaire du graphite des réacteurs EL2 et EL3 au 01/09/2008 et au 31/12/2021**

RN		<sup>90</sup> Sr	<sup>94f</sup> Nb	<sup>133</sup> Ba	<sup>152</sup> Eu	<sup>154</sup> Eu	<sup>155</sup> Eu
<b>EL2</b> (m=57 t)	A <sub>m</sub> <b>2008</b> (Bq/g)	88	-	259	1108	938	29
	A <b>2008</b> (TBq)	0,005	-	0,0148	0,0632	0,0535	0,0017
	A <sub>m</sub> <b>2021</b> (Bq/g)	64	-	107	560	320	4
	A <b>2021</b> (TBq)	0,0036	-	0,0061	0,0319	0,018	0,0002
<b>EL3</b> (m=52 t)	A <sub>m</sub> <b>2008</b> (Bq/g)	123	-	217	887	1080	50,5
	A <b>2008</b> (TBq)	0,0064	-	0,0113	0,0461	0,0562	0,0026
	A <sub>m</sub> <b>2021</b> (Bq/g)	89	-	90	448	368	7
	A <b>2021</b> (TBq)	0,0046	-	0,0047	0,0233	0,0192	0,0004

#### 5.4. INVENTAIRE RADIOLOGIQUE DU REACTEUR RAPSODIE

L'inventaire radiologique du graphite du réacteur Rapsodie a été calculé au 01/01/2012 et uniquement mis à jour au 31/12/2021 par calcul de la décroissance radioactive des radionucléides. Il est présenté au **Tableau 14**. Pour rappel, il est basé sur des calculs d'activation dont la principale hypothèse est la composition chimique du graphite.

- **Tableau 14 : Inventaire radiologique du graphite du réacteur Rapsodie au 01/01/2012 et au 31/12/2021**

m = 12,2 t	<sup>3</sup> H	<sup>10</sup> Be	<sup>14</sup> C	<sup>36</sup> Cl	<sup>41</sup> Ca	<sup>60</sup> Co	<sup>59</sup> Ni	<sup>63</sup> Ni	<sup>93m</sup> Nb	<sup>93f</sup> Mo	<sup>137</sup> Cs
A <sub>m</sub> <b>2012</b> (Bq/g)	1810,00	-	533,00	0,24	-	9,60	0,24	31,20	-	-	0,00
A <b>2012</b> (GBq)	22,082	-	6,503	0,003	-	0,117	0,003	0,381	-	-	0,000
A <sub>m</sub> <b>2021</b> (Bq/g)	1031,18	-	532,36	0,24	-	2,58	0,24	29,11	-	-	0,00
A <b>2021</b> (GBq)	12,580	-	6,495	0,003	-	0,031	0,003	0,355	-	-	0,000

D'autres RN pouvant présenter un intérêt vis-à-vis des scénarios de stockage sont donnés ci-dessous :

- **Tableau 15 : Inventaire radiologique complémentaire du graphite du réacteur Rapsodie au 01/01/2012 et au 31/12/2021**

m = 12,2 t	<sup>90</sup> Sr	<sup>94f</sup> Nb	<sup>133</sup> Ba	<sup>152</sup> Eu	<sup>154</sup> Eu	<sup>155</sup> Eu
A <sub>m</sub> <b>2012</b> (Bq/g)	0,00	3,12	0,00	8,64	1,44	0,00
A <b>2012</b> (GBq)	0,000	0,038	0,000	0,105	0,018	0,000
A <sub>m</sub> <b>2021</b> (Bq/g)	0,00	3,12	0,00	5,18	0,64	0,00
A <b>2021</b> (GBq)	0,000	0,038	0,000	0,063	0,008	0,000



## 5.5. INVENTAIRE GLOBAL

Avec l'application d'une méthode de calcul plus robuste des inventaires du graphite des empilements, méthode basée sur une approche calculs/mesures, complétée par la réalisation de nouvelles campagnes de prélèvements et d'analyses d'échantillons depuis 2015, l'inventaire radiologique des graphites a été précisé tout en s'assurant de son caractère enveloppe des activités radiologiques déclarées.

L'activité totale des déchets de graphite entreposés sur les sites du CEA (graphite des réacteurs et chemises Chinon A2 et Chinon A3) est de 420,73 TBq fin 2021 dont l'activité des réacteurs G1, G2 et G3 représentent environ 88,5 %. Cet inventaire réactualisé en 2021, fait suite à un effort de fiabilisation mené sur 97,4 % de la masse des déchets de graphite du CEA (G1, G2, G3 et les chemises de graphites issues de Chinon A2 et A3). Les 2,6 % restants de la masse totale (EL2, EL3 et Rapsodie) sont des estimations enveloppes basées sur les informations disponibles à ce jour.

➤ **Tableau 16 : Inventaire radiologique global de l'ensemble des déchets de graphite entreposés sur les sites CEA (dont chemises CHA2/CHA3 EDF) en 2021**

Activité (TBq) 2021	G1	G2	G3	Chemises CHA2 et CHA3	EL2	EL3	Rapsodie
<b>Masse (t) Contribution à la masse (%)</b>	1200 (25,7%)	1302 (28%)	1302 (28%)	730 (15,7%)	57 (1,2%)	52 (1,1%)	12 (0,3%)
<b>Méthode</b>	Calculs/Mesures <sup>1</sup>		Calculs <sup>2</sup>	Mesures $A_{moy}$ <sup>3</sup>	Estimation <sup>4</sup>		
<sup>3</sup> H	<b>14,86</b>	<b>24,39</b>	<b>257,29</b>	<b>36,90</b>	<b>0,60</b>	<b>0,47</b>	<b>0,013</b>
<sup>10</sup> Be	4,92E-04	1,61E-04	1,86E-04	-	-	-	-
<sup>14</sup> C	<b>26,67</b>	<b>20,52</b>	<b>20,71</b>	<b>7,85</b>	<b>0,67</b>	<b>0,24</b>	<b>0,006</b>
<sup>36</sup> Cl	<b>6,9E-03</b>	<b>1,9E-01</b>	<b>6,0E-01</b>	<b>7E-03</b>	<b>7,4E-02</b>	<b>6,8E-02</b>	<b>0,3E-05</b>
<sup>41</sup> Ca	4,3E-02	7,6E-03	2,2E-01	-	-	-	-
<sup>59</sup> Ni	3,1E-03	2,9E-02	3,0E-02	-	-	-	0,3E-05
<sup>60</sup> Co	0,0042	0,081	0,26	6E-02	4,2E-03	8,1E-03	3,1E-05
<sup>63</sup> Ni	<b>0,26</b>	<b>2,83</b>	<b>3,02</b>	<b>0,45</b>	<b>0,30</b>	<b>0,30</b>	<b>3,6E-04</b>
<sup>93m</sup> Nb	6,6E-03	5,2E-03	3,6E-03	-	-	-	-
<sup>93</sup> Mo	8,0E-03	6,0E-05	7,1E-04	-	-	-	-
<sup>137</sup> Cs	1,1E-02	1,8E-02	5,6E-03	3E-02	3,2E-03	4,1E-03	-
<sup>90</sup> Sr	9,0E-03	6,9E-03	2,6E-03	-	3,6E-03	4,6E-03	-
<sup>94f</sup> Nb	6,0E-04	1,1E-03	5,4E-04	-	-	-	-
<sup>133</sup> Ba	1,4E-03	8,2E-03	1,2E-02	-	6,1E-03	4,7E-03	-
<sup>152</sup> Eu	2,0E-02	1,2E-02	6,3E-03	2E-02	3,2E-02	2,3E-02	6,3E-05
<sup>154</sup> Eu	9,7E-03	3,5E-02	7,7E-02	1,1E-01	1,8E-02	1,9E-02	0,8E-05
<sup>155</sup> Eu	1,3E-04	1,9E-03	6,1E-03	2E-02	0,2E-03	0,4E-03	-
<b>A<sub>Tot</sub> (TBq)</b>	<b>41,93</b>	<b>48,19</b>	<b>282,29</b>	<b>45,45</b>	<b>1,71</b>	<b>1,14</b>	<b>0,020</b>
<b>A<sub>Tot</sub> (TBq) G1,G2,G3 = 372,41</b>							
<b>A<sub>Tot</sub> (TBq) = 420,73</b>							

1 : très fiable ; 2 : fiable ; 3 : amélioration possible ; 4 : majorante.

## **6. CONCLUSION**

Cette note s'inscrit dans le cadre de l'article 39 du PNGMDR 2016-18 et constitue la mise à jour de l'inventaire radiologique des déchets de graphite entreposés sur les sites du CEA et faisant suite au programme de R&D mené depuis l'inventaire émis en 2015.

Ce programme de R&D du CEA a permis d'améliorer significativement l'inventaire radiologique des réacteurs UNGG G1, G2, G3 (81,7 % en masse des déchets de graphite). En effet, les analyses effectuées sur des échantillons de G1 et G2 depuis 2015 ont permis l'application d'une méthodologie basée sur l'ajustement calculs/mesures. Une matrice « explicative » en impuretés des graphites justifiées et ajustées est alors définie prenant en compte les phénomènes physico-chimiques tels que la dispersion des impuretés ou les processus d'évolution des matériaux sous l'effet de l'irradiation ou de la température. Cette matrice d'impuretés intégrée dans le modèle d'activation sur l'ensemble des graphites des réacteurs UNGG permet d'obtenir l'inventaire radiologique. Pour l'empilement de graphite de G3, l'inventaire radiologique mis à jour est basé sur les résultats du calcul d'activation effectué avec la matrice d'impuretés initiale.

L'inventaire radiologique des déchets des chemises (15,7 % en masse des déchets de graphite) entourant les éléments combustibles de CHA2/CHA3 a été mis à jour par recoupement de nouvelles mesures avec des données historiques, conduisant à un inventaire consolidé par rapport à celui de 2015.

Concernant les réacteurs expérimentaux et de recherche (EL2, EL3 et Rapsodie) du CEA qui concernent 2,6 % en masse des déchets de graphite, les inventaires ont été actualisés à la date du 31/12/2021.