

NOTE DE SYNTHÈSE ET PORTÉE DU RAPPORT

La séparation et la transmutation (P&T) sont des techniques destinées à réduire les inventaires d'actinides et de produits de fission à vie longue dans les déchets nucléaires. Si la mise en œuvre de ces technologies peut atténuer les dangers que présentent la gestion des déchets avant leur stockage et les perturbations physiques d'un dépôt de déchets, par exemple par intrusion humaine, elle n'est pas considérée par tous comme la seule solution susceptible de remplacer à court terme les stratégies actuellement en place pour l'aval du cycle du combustible, ni comme un moyen d'éviter la construction de dépôts en formations géologiques profondes pour y stocker les déchets à vie longue que l'on produit aujourd'hui.

Néanmoins, il est largement admis que les technologies permettant de réduire ces inventaires peuvent régler certains problèmes de stockage des déchets dans des cycles du combustible conçus spécifiquement pour les mettre en œuvre. Les études qui seront entreprises à ce sujet serviront au minimum à faire progresser la science nucléaire et à attirer de jeunes chercheurs compétents vers cette discipline en prévision d'un basculement de l'opinion publique mondiale en faveur de l'énergie nucléaire. Par ailleurs, les études consacrées à la technologie des lasers et des accélérateurs, par exemple, auront certainement des retombées sur d'autres domaines de la science et de la technologie.

La plupart des recherches sur ce terrain viennent tout juste de voir le jour, et l'on aurait beaucoup de mal à prévoir les résultats des travaux actuels de recherche et de développement, à fixer des échéances, ou encore à donner une indication des coûts du développement et de l'exploitation des technologies étudiées. Bien que le présent rapport contienne une présentation de la structure d'une étude systémique globale, avec les informations nécessaires pour la réaliser, la priorité est actuellement donnée à l'examen des technologies de séparation et de transmutation utilisables et à l'analyse de leur état d'avancement et des perspectives d'applications industrielles éventuelles.

Le but du rapport est de proposer une analyse faisant autorité des conséquences techniques, radiologiques et, dans la mesure du possible, économiques de la séparation et de la transmutation sur les options actuelles et futures pour le cycle du combustible. Le rapport comporte donc une partie générale destinée au non-spécialiste et une analyse systémique technique de tous les aspects de la séparation, de la transmutation et de la gestion à long terme des déchets.

Première partie : Présentation générale

- Présentation du programme international coordonné par l'AEN.
- Survol de l'état actuel et des perspectives des technologies de séparation et de transmutation et analyse comparée des problèmes posés par les différents cycles du combustible.

- Analyse critique afin de dégager les points forts et les faiblesses dans la stratégie de séparation et de transmutation.
- Conclusions générales et recommandations relatives aux priorités futures.

Deuxième partie : Analyse technique et étude systémique

- Analyse des perspectives des différentes méthodes de séparation envisagées soit comme des étapes supplémentaires au procédé PUREX soit comme des procédés autonomes de traitement pyrochimique du combustible.
- Analyse technique approfondie des solutions possibles pour transmuter les actinides mineurs et certains produits de fission dans des réacteurs à eau ordinaire (REO), des réacteurs rapides (RNR) et des systèmes de transmutation hybrides (réacteurs sous-critiques pilotés par des accélérateurs) comportant :
 - une étude de la faisabilité de la technologie et de la sûreté de la fabrication des combustibles et des cibles à base d'actinides mineurs ;
 - une étude approfondie des différents aspects de l'irradiation des combustibles et des cibles contenant des actinides mineurs dans les réacteurs à eau sous pression actuels (recyclage homogène et hétérogène) ;
 - un panorama complet des possibilités de transmutation des actinides mineurs dans des réacteurs rapides, sous forme de combustibles ou de cibles à base d'oxydes mixtes (MOX), de métaux et de matrices inertes ;
 - une première analyse des possibilités des systèmes de transmutation associant un réacteur sous-critique à un accélérateur, des problèmes que cette solution soulève et des projets actuels ;
 - une analyse comparée des possibilités de transmuter certains produits de fission à vie longue dans différents types de réacteurs et de systèmes hybrides.
- Description des principaux programmes de recherche et de développement entrepris au Japon et en France.
- Analyse approfondie des répercussions de la séparation et de la transmutation sur l'évaluation des risques et la gestion des déchets, et notamment de l'impact à long terme des méthodes proposées actuellement.
- Analyse des différents inventaires des éléments transuraniens en fonction des choix stratégiques de filières (réacteurs à eau ordinaire, réacteurs rapides, systèmes hybrides, etc.) qui seront opérés pour le futur réseau de production électronucléaire.
- Survol des concepts actuels de stockage et des répercussions éventuelles de la séparation et de la transmutation sur la structure et les caractéristiques des dépôts.
- Analyse de l'impact radiologique et radiotoxique à long terme des opérations de séparation et de transmutation.

Présentation générale

Cette partie contient une présentation générale de la situation actuelle du cycle du combustible et des pratiques de gestion des matières nucléaires. Un chapitre d'introduction est consacré aux nouvelles perspectives que pourraient offrir la séparation et la transmutation et à leurs limites. À titre d'entrée en matière pour les non-spécialistes, on y a décrit les opérations supplémentaires de recyclage des matières fissiles et fertiles (uranium et plutonium), des actinides mineurs (neptunium, américium, curium) et de certains produits de fission (technétium 99, césium 135, iode 129, etc.).

Suit une analyse détaillée de trois stratégies du cycle du combustible pour un parc électronucléaire de 100 GWe, par exemple. Il s'agit du cycle ouvert (CCO), du cycle fermé (CFR) avec retraitement de l'uranium et du plutonium et du cycle fermé et avancé (CCA) avec séparation et transmutation. Les questions dont l'issue dépend de décisions visant à réduire au minimum la radiotoxicité des déchets de la production électronucléaire sont développées.

Plusieurs tableaux récapitulatifs présentent des données de référence sur les combustibles UO_2 et à oxydes mixtes irradiés dans un éventail de conditions standard. L'annexe E de ce document contient des tableaux complets de données nucléaires correspondant à l'inventaire en radionucléides du combustible utilisé. Les données qui y figurent sont des valeurs moyennes tirées de codes de calcul et considérées par la communauté nucléaire comme des valeurs de référence pour le calcul de l'inventaire radiotoxique sur des périodes de temps prolongées.

Analyse critique et conclusions générales

La partie générale du rapport se termine sur une série de remarques critiques et de conclusions générales rédigées par le groupe de travail. Il s'agit essentiellement de mettre en évidence les points importants pour aider les décideurs à définir les priorités des futurs travaux de recherche et de développement, de souligner l'intérêt de la séparation et de la transmutation pour la réduction de déchets et de dessiner les contours de cette stratégie dans une politique nucléaire future.

Analyse technique et étude systématique

Séparation

Le retraitement du combustible utilisé des réacteurs à eau ordinaire est considéré comme un scénario de référence dans la première étape du cycle du combustible avancé, et est préalable aux séparations complémentaires des actinides mineurs et de certains produits de fission.

On commence par décrire brièvement des *techniques de séparation en milieu aqueux* compatibles avec le procédé bien connu PUREX en les illustrant par des schémas représentant les flux annuels. Suivent une courte présentation des améliorations possibles et souhaitables de l'étape d'extraction des éléments transuraniens dans le procédé PUREX afin de récupérer le neptunium 237 et une description, assortie de commentaires sur leurs avantages et limites, des procédés d'extraction des actinides mineurs « TRUEX », « DIDPA », « TRPO », « DIAMEX », « TPTZ », « SESAME » et des procédés les plus récents « CYANEX 301™ » de récupération de l'américium et du curium. L'impact de ces améliorations sur les procédés classiques de traitement de déchets, notamment sur la production de déchets secondaires, fait l'objet d'une courte analyse. L'annexe D contient une bibliographie complète sur la technologie de séparation.

Comme les fractions soluble et insoluble se dissocient dans le procédé PUREX, il faudra prévoir des opérations de tête supplémentaires pour pouvoir séparer certains produits de fission. La récupération de l' ^{129}I et du ^{14}C dans les effluents gazeux du dissolvant est l'un des moyens de réduire l'impact du retraitement sur l'environnement. De même, en séparant deux autres radionucléides à vie longue, à savoir le ^{99}Tc et le ^{93}Zr , des flux de phosphate tributylrique (TBP), on pourrait limiter les répercussions environnementales des déchets.

Au cours des vingt dernières années, l'extraction sélective des actinides mineurs et des produits de fission a fait des progrès considérables. Toutefois, comme on pourra le voir sur le tableau récapitulatif, les différentes méthodes utilisées n'ont pas atteint le même stade de maturité technique.

Plusieurs scénarios peuvent être envisagés pour la gestion des actinides mineurs séparés:

- Le neptunium issu directement du procédé de retraitement ou extrait des déchets de haute activité pourrait facilement être séparé et recyclé avec le combustible MOX ou encore conservé sous forme séparée le temps que les procédés avancés de transmutation-incinération (RNR, systèmes hybrides) aient atteint le stade industriel. Le neptunium ainsi séparé pourrait aussi être conditionné sous forme d'une phase thermodynamiquement stable en vue d'un stockage réversible à long terme. Dans ce cas, la matrice serait conçue pour servir de matrice d'irradiation ou de colis de déchets pour le stockage définitif.
- Que l'on prévoie une stratégie de transmutation ou un stockage, la fraction américium-curium séparée des déchets de haute activité pourrait être traitée comme une fraction unique. Ces deux éléments ont un comportement chimique si proche qu'il faut, pour les dissocier, recourir à des techniques radiochimiques et/ou électrochimiques très spécifiques. Au cas où l'on envisagerait de les garder ensemble, il serait possible soit de les stocker en ensemble soit de les conditionner dans une matrice de type céramique avant de les stocker dans des structures de stockage, le temps que les techniques de transmutation deviennent opérationnelles.

L'américium pourrait un jour être séparé seul et soit recyclé immédiatement dans des combustibles spéciaux REO-MOX ou RNR, où il serait transmuté en partie, soit conditionné sous une forme céramique avant de subir une transmutation-incinération prolongée par multirecyclage et passage dans des systèmes d'irradiation hybrides.

Jusqu'à présent, on n'a pas trouvé de solution convaincante pour la gestion du curium séparé, non seulement parce qu'il est difficile de le séparer de l'américium, mais aussi parce que ce nucléide, très radioactif (source de chaleur et de neutrons), ne peut pas être recyclé dans les combustibles REO-MOX ou RNR-MOX. Stocker ce nucléide séparé pendant un siècle atténuerait les problèmes de traitement et autoriserait son recyclage dans le cycle du combustible avancé.

Si l'on cherche à augmenter les taux de combustion et à raccourcir les temps de refroidissement, il devient intéressant de développer *les procédés non aqueux de séparation pyrochimique*. On a testé en laboratoire et en pilotes chauds des méthodes pyrochimiques utilisant des sels de chlorure fondus (LiCl-KCl ou NaCl-KCl) pour séparer l'uranium, le plutonium et les actinides mineurs des produits de fission. À l'avenir, on pourrait recourir à une solution alliant séparation électrolytique, précipitation chimique et extraction en milieu réducteur, soit comme étape préalable à la séparation par retraitement en milieu aqueux ou, éventuellement, comme procédé autonome de retraitement à sec du combustible irradié à des taux élevés, après des temps de refroidissement plus

courts. L'application de cette technologie permettrait de raccourcir le délai avant son recyclage quantitatif.

Transmutation

Le chapitre consacré à la transmutation décrit plusieurs activités : la fabrication des combustibles et des cibles, la transmutation par capture neutronique et l'incinération par fission.

La transmutation peut s'effectuer dans des réacteurs thermiques, des réacteurs à neutrons rapides et des réacteurs sous-critiques pilotés par des accélérateurs. Le choix de ces installations de transmutation découle d'études stratégiques destinées à trouver la combinaison optimale de facteurs tels que la fabrication et la refabrication du combustible, sous tous leurs aspects, la disponibilité des différents types de réacteurs, les rendements de transmutation/incinération et surtout la réduction significative de l'inventaire radiotoxique global des déchets nucléaires. Les pays de l'Union européenne et le Japon ont réalisé des études approfondies afin de dégager une première approche stratégique.

Toutefois, ces études sont subordonnées à des décisions politiques et des réalités économiques que l'on ne saurait prévoir sur les dizaines ou même centaines d'années nécessaires pour parvenir à un équilibre entre la consommation et la production de matières nucléaires fissiles et fertiles.

Fabrication des combustibles et des cibles

On trouvera dans le rapport une description concrète des problèmes que pose l'introduction des actinides mineurs dans le cycle du combustible nucléaire. La fabrication du combustible à oxydes mixtes à faible teneur en neptunium et américium (< 2.5 pour cent) est une solution qui n'exige pas d'investissements lourds dans les usines de fabrication d'oxydes mixtes pour les réacteurs à eau ordinaire (REO-MOX). Cependant, l'introduction de ces actinides mineurs rend plus difficile le retraitement et la refabrication ultérieure du combustible en raison de la présence de grandes quantités de ²³⁸Pu dans le flux de plutonium recyclé.

Il serait nettement préférable de recourir au recyclage hétérogène des actinides mineurs dans des réacteurs à eau ordinaire, dans la mesure où cette solution permet de gérer les cibles indépendamment du combustible REO-MOX et de les recycler dans des installations de petite taille dédiées au traitement des cibles irradiées. Le principal problème vient du recyclage du ²⁴⁴Cm, qui est une forte source de chaleur et de neutrons et ne peut pas être traité dans des usines de fabrication du combustible standard. Aucune solution satisfaisante n'a encore été trouvée. Par conséquent, il convient de poursuivre les recherches sur la séparation afin de mettre au point une technologie viable.

On produit déjà depuis plusieurs dizaines d'années du combustible pour les réacteurs rapides, et on a fabriqué des combustibles expérimentaux à forte teneur en américium et en neptunium dans le cadre du programme « SUPERFACT ». Pour l'irradiation des actinides mineurs dans des flux neutroniques rapides, il faudrait privilégier les matrices inertes (oxyde d'aluminium, oxyde de magnésium, etc.).

De nouvelles formes de combustibles adaptés à des taux de combustion et des rendements de transmutation supérieurs sont à l'étude, notamment des combustibles à base d'alliages métalliques (d'actinides mineurs, d'uranium, de plutonium et de zirconium) et de nitrures. L'intérêt des combustibles métalliques tient à la possibilité d'établir un cycle du combustible « compact » fondé sur

les techniques pyrochimiques, mêmes si d'importants travaux de recherche et de développement seront nécessaires avant sa réalisation.

La faisabilité du combustible à base de nitrure dépend de la disponibilité d'usines d'enrichissement en ^{15}N et du développement des techniques de récupération de l' ^{15}N au cours des procédés de recyclage. Le recyclage de cet élément serait également facilité si l'on utilisait des procédés pyrochimiques pour traiter les combustibles nitrures.

Transmutation des actinides mineurs

La physique de la transmutation/incinération des actinides mineurs montre que les neutrons rapides, dans des réacteurs rapides ou dans des systèmes hybrides, sont mieux adaptés que les neutrons thermiques en raison du rapport entre les sections efficaces de fission et de capture. En outre, tous les actinides mineurs sont, dans une certaine mesure, fissiles dans un spectre neutronique rapide et, de plus, contribuent à la production d'énergie globale pendant l'irradiation.

On trouvera dans ce rapport des tableaux comparatifs indiquant les rendements calculés de la transmutation/incinération d'actinides mineurs recyclés en mode homogène ou hétérogène dans des réacteurs à eau ordinaire brûlant des oxydes mixtes ainsi que dans des réacteurs incinérateurs rapides et des réacteurs avancés à métal liquide. La plupart des concepts de réacteurs avancés n'ont pas dépassé le stade de la recherche théorique, de sorte que les rendements calculés doivent encore être vérifiés dans des conditions représentatives.

La transmutation des actinides mineurs dans des cœurs de réacteurs rapides (réacteurs surgénérateurs rapides à métal liquide, réacteurs à métal liquide avancé) ne présente pas d'inconvénient majeur en termes de performances du cœur, à condition que le rapport entre les actinides mineurs et le combustibles reste petit.

La conception des réacteurs-incinérateurs rapides et des réacteurs-incinérateurs d'actinides mineurs nécessite encore des travaux de recherche et de développement, car il n'est pas évident que des concentrations élevées en actinides mineurs puissent être chargés dans le cœur de ces réacteurs parce qu'il engendrent des effets négatifs sur les coefficients de réactivité et les paramètres cinétiques.

Ces derniers temps, la communauté internationale s'est intéressée de près aux systèmes hybrides combinant un réacteur sous-critique à un accélérateur pour remplacer les réacteurs nucléaires de conception classique. Les accélérateurs, qu'il s'agisse d'accélérateurs linéaires ou de cyclotrons, produisent un flux de protons qui, s'il entre en collision avec une cible en métal lourd, provoque la spallation de la cible. Les neutrons de spallation percutent à leur tour les matières nucléaires fissiles et fertiles, par exemple des actinides mineurs, qui subissent des réactions de fission ou de capture.

La transmutation des actinides mineurs ne peut pas être dissociée de celle du plutonium, et toute stratégie l'intégrant doit prendre en compte la consommation des actinides mineurs dans les cibles ou les combustibles et la production simultanée d'actinides mineurs au départ du plutonium.

Transmutation des produits de fission à vie longue

Les études réalisées sur la transmutation des produits de fission à vie longue (^{99}Tc , ^{129}I) en nucléides à vie courte ou en nucléides stables ont montré que cette approche est théoriquement

réalisable, à condition d'augmenter le taux d'enrichissement du combustible si l'on envisage d'utiliser des réacteurs à eau ordinaire. La période de transmutation varie de 15 à 18 ans, dans les réacteurs rapides, à 40-77 ans, dans des réacteurs à eau ordinaire. Irradier certains produits de fission dans des systèmes hybrides ou dans des réacteurs rapides optimisés permettrait d'écourter la période de transmutation. Il faudrait, dans ce cas, entreprendre des travaux très importants afin de mettre au point les matériaux des assemblages combustibles et des cibles (comme dans le cas de l'iode) et, pour certains éléments, procéder à une séparation isotopique très fine (par exemple, Se, Zr, Cs, Sn ...).

Tendances actuelles de la recherche sur la séparation et la transmutation

Étant donné l'état d'avancement des programmes de recherche et de développement au Japon et en France, une section spéciale ainsi que les annexes B et C sont consacrées aux travaux, en cours dans ces pays, sur la séparation et la transmutation. Ces programmes, auxquels participent directement ou indirectement de nombreux pays, sont incontestablement les plus importants dans le monde.

Conséquences de la séparation et de la transmutation sur les évaluations des risques et la gestion des déchets

Afin d'exposer de la façon la plus claire possible les conséquences que peuvent avoir la séparation et la transmutation sur la radiotoxicité à long terme, nous avons souhaité définir ce qu'est l'inventaire radiotoxique et en montrer la signification réelle dans une section spéciale de ce rapport.

Cet inventaire radiotoxique dépend de l'inventaire physique des radionucléides dans les divers cycles du combustible ainsi que des coefficients de dose efficace de chaque radionucléide. Des schémas illustrent l'évolution naturelle des inventaires radiotoxiques dans le cycle ouvert, le cycle fermé avec retraitement et le cycle fermé avancé.

La place qu'occuperont la séparation et la transmutation dans la gestion des déchets dépendra essentiellement des inventaires d'actinides mineurs à traiter dans les installations du cycle du combustible avancé. On évoque dans cette section la stratégie d'utilisation des réacteurs qu'il faudra mettre en œuvre pour parvenir à une réduction significative de l'inventaire radiotoxique. Trois cas représentatifs seront considérés qui correspondent à diverses combinaisons de réacteurs à eau ordinaire chargés en combustible au dioxyde d'uranium ou en combustible à oxydes mixtes et de réacteurs rapides brûlant du combustible à oxydes mixtes. Il apparaît qu'on aura besoin d'une proportion importante de réacteurs rapides. Dans chacun des cas examinés, l'inventaire radiotoxique des flux de déchets diminue d'un facteur proche de 10. Cependant, cette réduction de la radiotoxicité des déchets s'accompagne d'une progression régulière de l'inventaire radiotoxique des réacteurs et des installations du cycle du combustible et exige, de surcroît, que l'on fasse fonctionner ces installations durant une longue période.

Si l'on recycle tous les actinides mineurs, y compris la fraction curium, le facteur de réduction de l'inventaire radiotoxique, par rapport au cycle ouvert, se situe entre 77 et 100 après 10 000 ans et, à très long terme (10^5 et 10^6 années), entre 80 et 150.

Si l'on ne recycle pas la fraction curium, cette réduction de l'inventaire radiotoxique n'atteint que 7 à 10 au bout de 10 000 ans en raison de la décroissance du ^{244}Cu en ^{240}Pu et du ^{243}Cu en ^{239}Pu .

Le bilan massique global des actinides mineurs produits dans un programme de recyclages multiples à long terme révèle que l'inventaire radiotoxique des matières nucléaires accumulées dans les réacteurs et les installations du cycle du combustible atteint des valeurs très élevées par rapport aux déchets rejetés chaque année. Dans divers cas étudiés, les inventaires à l'équilibre représentent plusieurs centaines de tonnes d'éléments transuraniens.

Concepts de gestion des déchets

Toute estimation des avantages radiologiques de l'option séparation/transmutation doit tenir compte de la mobilité des éléments dans la géosphère. Ce facteur peut en effet considérablement modifier le tableau assez simple que donnerait une étude limitée à la réduction de l'inventaire radiotoxique. D'un autre côté, la perspective de trouver des conditionnements et des sites particulièrement sûrs pour les radionucléides à vie longue présente d'autres avantages, notamment en ce qui concerne l'effet d'une intrusion humaine.

Pour replacer la séparation et la transmutation dans le contexte des stratégies actuelles de gestion des déchets, nous décrivons brièvement les concepts de stockage direct en formation granitique adoptés par la Suède et l'Espagne. Une section est consacrée à la sûreté en matière de criticité du stockage du combustible utilisé.

Pour le cycle du combustible avec retraitement, nous analyserons, à titre d'illustration, l'impact du stockage des déchets de haute et moyenne activité tel que l'ont prévu l'Allemagne, la Suisse et la Belgique dans des formations salifères, granitiques et argileuses. Plusieurs options sont actuellement à l'étude pour le stockage des colis de déchets produits par le cycle du combustible avancé avec séparation et transmutation. Néanmoins, le rapport apporte quelques précisions sur les aspects techniques et opérationnels de cette stratégie, notamment en ce qui concerne l'entreposage et le devenir des cibles irradiées et des cœurs de réacteurs à l'issue d'une campagne prolongée de production d'énergie.

Outre les matières hautement radioactives produites par le cycle du combustible avancé, il convient de comptabiliser les quantités importantes d'uranium appauvri issues du procédé d'enrichissement. À court terme, ces stocks d'uranium appauvri peuvent être considérés comme une matière stratégique que l'on réutilisera si les RNR contribuent un jour, dans des proportions significatives, à la production d'électricité.

En revanche, si les RNR ne font pas une percée dans la production d'électricité, cet uranium appauvri deviendra un déchet dont la radiotoxicité atteindra finalement celle du minerai d'uranium.

PREMIÈRE PARTIE : PRÉSENTATION GÉNÉRALE

1. INTRODUCTION

1.1 Activités de l'Agence de l'OCDE pour l'énergie nucléaire

La décision du gouvernement japonais, en 1988, de lancer un programme de recherche et développement à long terme sur le recyclage et la transmutation des actinides et des produits de fission à vie longue a avivé l'intérêt de certains pays Membres de l'OCDE pour cette technologie. Le programme japonais, du nom d'OMEGA (Options for Making Extra Gains from Actinides and fission products), a été entrepris à l'initiative de l'Atomic Energy Bureau de la Japanese Science and Technology Agency (STA) afin d'améliorer l'efficacité du stockage des déchets de haute activité et d'exploiter au mieux les ressources du combustible usé. Ce programme était conçu à la fois comme une recherche fondamentale à long terme dont bénéficieraient les générations futures et comme un moyen d'inciter les jeunes chercheurs à mettre leurs compétences au service de l'étude des aspects scientifiques de la gestion des déchets nucléaires.

Le gouvernement japonais a invité l'OCDE-AEN à organiser un projet international consacré à la séparation et à l'utilisation des actinides. Après quelques discussions, il a été décidé de lancer un programme d'échange d'informations techniques qui constituerait le pivot des recherches multilatérales réalisées par les pays de l'OCDE-AEN dans le domaine de la séparation et de la transmutation. Dès le lancement de cette activité, il était clair que ce programme n'aurait aucune répercussion sur les politiques nationales arrêtées pour l'aval du cycle du combustible avec ou sans retraitement, vitrification des déchets de haute activité et stockage des déchets ou du combustible usé dans des formations géologiques.

La première réunion internationale d'échange d'informations a été organisée à Mito (Japon) en novembre 1990. Elle a été l'occasion de prendre connaissance de communications très stimulantes consacrées tant aux orientations des politiques dans ce domaine qu'aux aspects scientifiques. Les discussions ont révélé une grande disparité dans les approches adoptées et qui recouvraient une diversité de procédés chimiques aqueux et non aqueux et plusieurs de systèmes de transmutation en réacteur ou pilotés par des accélérateurs [1].

La deuxième réunion internationale d'échange d'informations, qui a eu lieu en novembre 1992 dans les locaux de l'Argonne National Laboratory (Illinois, États-Unis), a révélé la nécessité de cerner les besoins et les priorités de la recherche. Cette réunion a permis d'identifier plusieurs thèmes nouveaux d'importance, notamment le contexte juridique ainsi que les motivations et les conséquences de la voie de la séparation/transmutation sur l'ensemble du cycle du combustible suivant les pays et les politiques nucléaires. C'est pourquoi, il a été décidé d'articuler les travaux sur la séparation et la transmutation entrepris par le Comité chargé des études techniques et économiques sur le développement de l'énergie nucléaire et le cycle du combustible de l'OCDE-AEN autour d'une comparaison des études systémiques déjà entreprises dans ce domaine [2].

La troisième réunion internationale d'échange d'informations s'est tenue en décembre 1994 au Centre d'études du CEA à Cadarache (France). Cette manifestation, qui a réuni plus de 80 participants de 11 pays auxquels s'étaient joints la Russie et l'AIEA, témoignait du formidable intérêt manifesté par la communauté internationale pour ce sujet et de la prise de conscience par les pays de l'OCDE de la véritable portée de la séparation et de la transmutation. Elle a permis de dégager les éléments de base indispensables à la poursuite des études comparatives consacrées au bilan global des coûts et avantages de l'introduction de la séparation et de la transmutation dans le cycle du combustible nucléaire [3].

La quatrième réunion internationale d'échange d'informations a été organisée à Mito, au Japon, en septembre 1996 à l'invitation de la Science and Technology Agency, de JAERI et de PNC. Près de 100 spécialistes de 11 pays de l'AEN et de Russie ainsi que de l'AIEA et de la Commission des Communautés européennes ont assisté à cette réunion qui, comme les précédentes, était consacrée aux études systémiques de la séparation et de la transmutation. Quarante communications y ont été présentées au total [4]. Un large consensus s'y est dégagé quant aux voies à suivre. Plusieurs délégations ont souligné la nécessité d'établir un rapport d'analyse systémique et ont proposé de participer à sa rédaction.

La cinquième réunion internationale d'échange d'informations a été organisée à Mol, en Belgique, en Novembre 1998 à l'invitation du Centre de Recherches Nucléaires SCK•CEN. Près de 130 participants ont assisté à cette réunion. Quarante trois communications et 13 posters y ont été présentées. L'essence même de cette réunion peut plus particulièrement se définir par rapport à la très remarquable avancée technologique dans la technique de séparation résultant de celle de Ln/Am et de l'isolement de l'Am en laboratoires. La transmutation quant à elle fut discutée de manière plus générale, s'intéressant à la transmutation dans des réacteurs à eau légère (cible Am), dans des RNRs et des ADS. La fiabilité et les principaux défis technologiques de ces ADS furent soulignés.

1.2 Pourquoi la séparation et la transmutation ?

L'exploitation de l'énergie nucléaire produit régulièrement une masse de combustible usé qui contient, à côté des produits de fission à vie courte, une grande quantité d'actinides et de produits de fission de toxicité très élevée et de périodes radioactives très longues. Ces nucléides représentent l'inventaire radiotoxique^{a)} à long terme^{b)} qui demeure dangereux pendant des périodes dépassant l'imagination humaine.

Les processus classiques de retraitement permettent de recycler le gros des actinides majeurs (U et Pu), tandis que les actinides mineurs AM [essentiellement le neptunium (Np), l'américium (Am) et le curium (Cm)], dont les périodes radioactives peuvent atteindre 2 millions d'années, restent auprès des produits de fission et sont vitrifiés avant d'être enfouis dans des dépôts profonds. La séparation des actinides mineurs (Np, Am, et Cm) et de certains produits de fission est une méthode qui permettrait de réduire la radiotoxicité à long terme des déchets résiduels d'un facteur proportionnel au rendement de séparation. Les actinides mineurs ainsi récupérés pourraient être recyclés dans le cycle du combustible et réintégrés à l'inventaire fissile et fertile des réacteurs pour y être transmutés en isotopes à vie courte. C'est ainsi que, progressivement, les actinides mineurs et certains produits de fission à vie longue

a) Voir à la Partie II, section 4.1, la définition de l'inventaire radiotoxique

b) Dans ce rapport, le court terme désigne les 100 premières années, le moyen terme la période comprise entre 100 et 1000 ans et le long terme la période au-delà de 10 000 ans.

pourraient être incinérés. En principe, cette technique permettrait d'atténuer le risque de contamination à long terme que présentent les déchets de haute activité et de raccourcir le temps de séjour nécessaire des déchets contenant des actinides dans les dépôts de déchets en formation géologique. La séparation et la transmutation sont donc a priori capables d'écourter la période de radiotoxicité, bien qu'il reste un certain nombre de difficultés pratiques à surmonter avant d'y parvenir.

1.3 Pourquoi une étude systémique de la séparation et de la transmutation ?

Les répercussions de la mise en œuvre des procédés de séparation sur le cycle du combustible avec retraitement varient largement en fonction des effluents ou flux de produits dans lesquels ces nucléides sont entraînés. Toute modification du procédé de séparation a d'importantes conséquences sur la qualité et la nature des produits nucléaires séparés. C'est pourquoi, une analyse des conséquences de la séparation des actinides mineurs et des produits de fission qui se veut complète doit reposer sur une étude systémique de l'impact des produits recyclés sur les déchets et sur la sûreté des différentes options.

On peut se demander que faire des concentrés une fois que les actinides mineurs et les produits de fission à vie longue ont été isolés. La première solution est le conditionnement associé au stockage à long terme réversible où la stabilité de la matrice et la décroissance naturelle jouent un rôle important. La deuxième solution consiste à les transformer en cibles pour les irradier ensuite. L'irradiation des cibles peut engendrer des produits de transmutation stables, mais aussi des nucléides fortement radiotoxiques de périodes moyennes.

On trouvera dans ce rapport une étude des différentes solutions permettant d'atténuer la radiotoxicité du produit final, assortie d'une analyse systémique limitée des principales options qui se veut une tentative pour éclairer les choix parmi le dédale de solutions possibles. L'analyse systémique préliminaire part de la situation actuelle des techniques employées dans le cycle du combustible et met en évidence quelques avancées des technologies de séparation et de transmutation qui pourraient donner naissance à un cycle du combustible avancé permettant une réduction globale de l'inventaire radiotoxique et de son impact sur la biosphère.

1.4 Groupe d'experts

Un groupe d'experts sur l'analyse systémique, auquel étaient représentés 12 pays et deux organisations internationales, a été constitué en 1996. Il a été demandé à ce groupe de préparer un rapport, le plus complet possible, sur l'analyse systémique de la séparation et la transmutation afin de proposer aux décideurs un document transparent, faisant autorité, où seraient décrites les répercussions de la séparation et de la transmutation sur les politiques adoptées en matière du cycle du combustible et de gestion des déchets. Il s'agissait notamment de bien montrer les conséquences de toute décision concernant la séparation et la transmutation sur la technologie, la sûreté à long terme, et les aspects économiques du cycle du combustible.

Le groupe de travail (voir Annexe A) s'est inspiré des différents rapports d'analyse nationaux et internationaux [5-10] publiés pour en tirer des conclusions quant au rôle que pourraient jouer la séparation et la transmutation dans le cycle du combustible et à l'intérêt respectif des différentes options prises en matière de recherche et de développement. La qualité des comparaisons entre scénarios et options dépend de l'harmonisation des critères et des contraintes utilisées.

1.5 Objectifs du rapport

Dans l'ensemble, ce rapport se veut une analyse scientifique et technique de l'impact de la séparation et de la transmutation sur l'aval du cycle du combustible. Les chapitres d'introduction, que l'on trouvera dans la Partie I : Présentation Générale, sont destinés à éclairer les responsables politiques et industriels sur les enjeux de la séparation et de la transmutation sans entrer dans les détails. Les chapitres techniques de la Partie II : Analyse Technique et Étude Systémique, sont consacrés à une analyse approfondie de l'introduction de la séparation et de la transmutation dans un scénario du cycle du combustible plus évolué et des conséquences d'une série de décisions. Ces chapitres techniques s'intitulent : *Séparation, transmutation, analyse des risques et gestion des déchets* et s'accompagnent d'une description des principaux programmes de recherche et de développement au Japon et en France. Le rapport fait une large place aux aspects de la sûreté à long terme sur lesquels la séparation et la transmutation pourrait avoir un impact dans l'hypothèse de la mise en place d'une industrie du cycle du combustible plus évoluée et de la poursuite du développement de l'électronucléaire. La séparation, en tant que technologie isolée, serait intéressante pour la gestion des déchets de haute activité, car elle permettrait de mieux stabiliser les nucléides à vie longue que la vitrification, de réduire le volume de déchets de haute activité et, éventuellement, de récupérer certains éléments précieux et rares. Cependant, dans ce rapport, la séparation est analysée essentiellement en tant qu'étape préliminaire à la transmutation.

Ce document doit être considéré comme un rapport d'évaluation décrivant l'état actuel de la séparation et de la transmutation assorti d'une analyse systémique préliminaire des conséquences de ces techniques sur le cycle du combustible et la gestion des déchets.

2. ÉTAT ACTUEL ET PERSPECTIVES DES TECHNOLOGIES DE SÉPARATION ET DE TRANSMUTATION

La séparation des actinides mineurs et des produits de fission à vie longue du combustible usé et la transmutation, c'est-à-dire la transformation, par des réactions nucléaires, de radionucléides à vie longue en éléments à vie courte ou stables sont deux techniques qui doivent être considérées comme des compléments ou des améliorations du cycle avec retraitement. Au cours de ce cycle, le plutonium et l'uranium sont séparés du combustible nucléaire et recyclés dans le cycle comme le montre la Figure I.1. On notera sur cette figure que le cycle du combustible se divise en une partie « amont », qui recouvre toutes les opérations effectuées avant que le combustible ne soit chargé dans le réacteur, et une partie « aval » englobant tous les traitements effectués après l'utilisation du combustible en réacteur. La séparation et la transmutation sont, par essence, des procédés intervenant en aval du cycle puisqu'elles sont conçues comme des moyens d'améliorer les options de stockage des déchets. Idéalement, la mise en œuvre de la séparation et de la transmutation pourrait déboucher sur un cycle du combustible avancé, faisant appel à une technologie spécifique pour optimiser les résultats (voir Figure I.2). Cependant, comme le recyclage dans les réacteurs de conception actuelle doit également être pris en compte, la séparation et la transmutation peuvent aussi avoir des répercussions sur l'étape de fabrication du combustible des cycles avec retraitement.

Nous décrivons dans ce chapitre l'état actuel et les perspectives de la technologie de la séparation et de la transmutation à travers l'examen des stratégies de recyclage, des solutions possibles pour le retraitement (la séparation) et de la technologie de fabrication des combustibles et des cibles. Nous ne nous limitons pas aux actinides mineurs et aux produits de fission à vie longue mais décrivons également le recyclage du plutonium et de l'uranium, étant donné que l'intérêt de la séparation et de la transmutation ne peut s'apprécier que par comparaison avec le recyclage du plutonium.

2.1 Stratégies

2.1.1 *Plutonium et uranium*

La séparation du plutonium du combustible usé permet d'abaisser la radiotoxicité à long terme des déchets résiduels d'un facteur qui, théoriquement, peut atteindre 10. Ce chiffre découle simplement du fait que la quantité de plutonium présente dans le combustible UO_2 usé est à peu près dix fois supérieure à celle des actinides mineurs dont la radiotoxicité est plus ou moins équivalente à celle des isotopes du plutonium. L'uranium séparé de ses produits de filiation contribue relativement peu à la radiotoxicité. Pourtant, en recyclant le plutonium sous forme de MOX dans les REO (REO-MOX) on ne divise la radiotoxicité que par trois, si l'on considère le combustible MOX usé comme un déchet.

Figure I.1 Schéma de principe du cycle avec retraitement du combustible des réacteurs à eau ordinaire

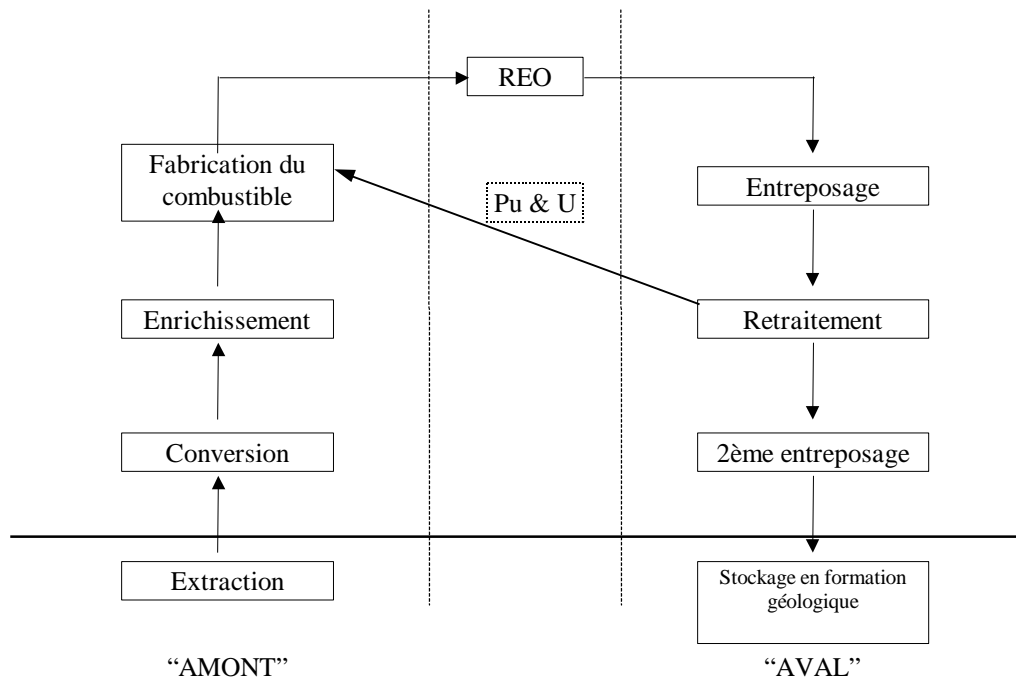
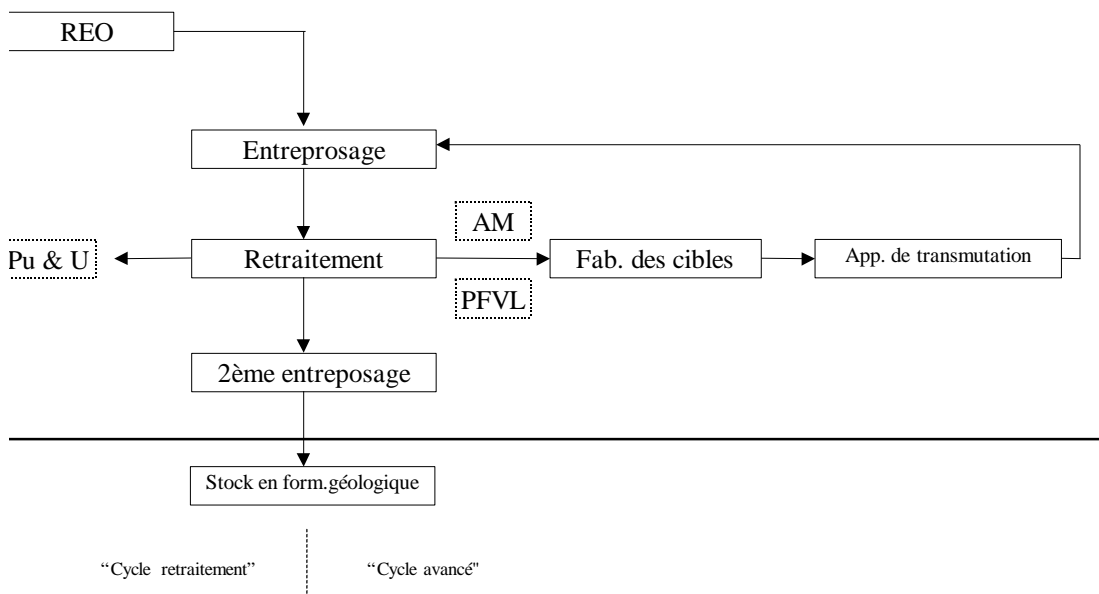


Figure I.2 Représentation schématique de l'aval d'un cycle du combustible avancé avec recyclage des actinides mineurs



Pour recycler le plutonium, la méthode la plus simple consiste à charger les REO en assemblages à oxydes mixtes (MOX). Un assemblage au MOX contient 35 kg de plutonium avant son irradiation et 25 kg après, ce qui représente une consommation de 10 kg par assemblage combustible, à comparer aux 5 kg de plutonium qui sont produits dans un assemblage standard à oxyde d'uranium. À

l'heure actuelle, des réacteurs sont exploités en France, en Allemagne, en Belgique et en Suisse, avec des cœurs comportant jusqu'à 30 pour cent d'assemblages combustibles MOX. Dans ce cas, on produit $[(2 \times 5) - (1 \times 10)] \cong 0$ kg de plutonium, soit un bilan presque nul. Par conséquent, augmenter le nombre d'assemblages MOX dans un cœur de réacteur (jusqu'à 100 pour cent) permettra une consommation nette de plutonium, mais cette solution nécessite que l'on modifie le rapport de modération. Il est possible d'obtenir des taux de consommation du plutonium plus élevés en mélangeant le plutonium avec un matériau inerte sur le plan neutronique que l'on appelle matrice inerte, puisque dans ce cas la source de production de plutonium (^{238}U) n'existe plus. Cependant, la présence d'une matrice inerte modifiera le coefficient Doppler du combustible, en raison de l'absence de résonance de ^{238}U . Une autre possibilité, à l'étude actuellement, consiste à mélanger le plutonium avec du thorium.

Le nombre d'étapes de recyclage dans un REO est limité par l'accumulation d'isotopes du plutonium non-fissiles dans un spectre de neutrons thermiques. C'est pourquoi, les systèmes qui produisent des flux importants de neutrons rapides (réacteurs rapides, systèmes sous-critiques pilotés par des accélérateurs) sont toujours nécessaires pour incinérer le plutonium dégradé provenant du recyclage du plutonium dans des REO. Les calculs effectués pour la gestion du combustible ont montré que ce type d'appareil peut être exploité en symbiose avec un parc de REO. En Europe, les spécifications du projet CAPRA ont été définies pour la conception d'un réacteur rapide qui consommera le plus possible de plutonium. Dans la conception de référence actuelle de CAPRA, il est prévu d'utiliser un cœur à oxydes mixtes dont le combustible MOX contiendrait jusqu'à 45 pour cent d'oxyde de plutonium. Cependant, comme les solutions d'acide nitrique actuellement employées dans le procédé PUREX ne sont pas capables de dissoudre ce combustible, on envisage de recourir à d'autres combustibles. Le Japon, mais aussi certains pays d'Europe, se tournent actuellement vers des combustibles sous forme de nitrure, puisque le PuN se dissout facilement dans le HNO_3 , qui est le milieu aqueux utilisé dans le procédé PUREX. Mais cette solution exige que l'on utilise des réactifs fortement enrichis en ^{15}N pour produire le PuN si l'on veut éviter la formation de ^{14}C dans le combustible usé.

À l'heure actuelle, on recycle peu l'uranium de retraitement (URT), parce que, d'une part, l'uranium naturel n'est pas cher et, d'autre part, l'URT contient un peu de ^{236}U qui est un poison neutronique diminuant la réactivité de l'uranium de retraitement. Si l'on tarde à recycler l'URT dans les réacteurs, voire si l'on abandonne cette solution, on risque de voir s'accumuler les produits très radiotoxiques de la décroissance de ^{232}U et de ^{234}U , notamment le ^{228}Th et le ^{208}Tl . Il conviendra donc de prendre en compte les stocks d'URT et d'uranium appauvri issu du retraitement dans les stratégies globales de gestion des déchets radioactifs. À très long terme, la radioactivité totale de l'uranium appauvri, s'il est considéré comme un déchet, dépasse celle du neptunium.

2.1.2 Actinides mineurs

Si le recyclage du plutonium peut être efficacement réalisé à l'échelle industrielle, le recyclage de l'américium doit être envisagé ensuite, et cela pour les raisons suivantes :

- l'américium se place en deuxième position par sa contribution à la radiotoxicité du combustible usé ;
- dans les évaluations des performances des dépôts souterrains, la contribution de l'américium à la radiotoxicité est prépondérante au cours des 1 000 premières années ;

- ^{241}Am est le précurseur du ^{237}Np à vie longue qui, en général, domine les scénarios d'évolution normale dans les évaluations des performances en raison de sa longue période radioactive ;
- le recyclage du plutonium a pour effet d'accroître la quantité d'américium produit.

Comme pour le plutonium et l'uranium, la réaction de transmutation la plus intéressante pour les actinides mineurs est la fission, étant donné que la capture ou les réactions (n, 2n) produisent en général d'autres actinides à vie longue. La solution la plus efficace consiste alors à recourir à un flux de neutrons rapides dans lequel la plupart des isotopes d'actinides peuvent être fissionnés. Toutefois, même dans ce cas, la capture suivie d'une fission n'est pas à négliger. Dans les spectres thermiques, on a besoin de neutrons supplémentaires pour convertir les isotopes non fissionnés en isotopes fissionnés (par exemple, ^{241}Am en $^{242\text{m}}\text{Am}$), d'où la nécessité d'un enrichissement supplémentaire du combustible utilisé.

Les stratégies de transmutation des actinides mineurs dans des systèmes à flux rapides ressemblent aux voies choisies pour la transmutation du plutonium, et cela n'a rien de surprenant. Ces actinides peuvent être soit mélangés de façon homogène au combustible MOX, appelé combustible MINOX, ou incorporés à des assemblages combustibles spéciaux dans des matrices inertes à base d'oxydes ou éventuellement de nitrures et de carbures. Du point de vue de la physique des réacteurs, ces deux solutions sont réalisables ; les seules contraintes proviennent de la fabrication des combustibles.

À la place du recyclage, il est possible de recourir à une stratégie consistant à incinérer le plus possible d'actinides mineurs lors d'une irradiation unique prolongée suivie du stockage définitif, solution appelée encore « cycle ouvert ». On peut, pour ce faire, utiliser une installation d'irradiation à haut flux thermique ou intégrer les actinides à un sous-assemblage sous-critique d'un réacteur rapide. En sélectionnant avec soin la matrice inerte dans laquelle le déchet résiduel formé sera immobilisé, il est possible d'atténuer encore les effets radiologiques du stockage puisque l'on aura ajouté une barrière supplémentaire. Des minéraux géologiquement stables, comme le zircon (ZrSiO_4) ou la monazite (CePO_4) comptent parmi les candidats envisagés pour cette application.

2.1.3 *Produits de fission*

Du point de vue de la radiotoxicité des déchets, la transmutation des produits de fission présente peu d'intérêt. Après 250 ans, la majorité d'entre eux a disparu par décroissance radioactive, et leur contribution à la radiotoxicité du combustible usé, d'abord très forte au cours des cent premières années de stockage, est devenue faible. Cependant, il existe des produits de fission qui sont très mobiles dans certains environnements géologiques et sont responsables d'une fraction importante des effets radiologiques du stockage souterrain. Par ailleurs, il faut comptabiliser dans les effets radiologiques à long terme de la production électronucléaire les effluents gazeux et liquides produits lors du traitement des combustibles usés. La séparation et/ou le piégeage de ces produits dans les flux de déchets, suivis par leur transmutation permettraient d'atténuer les risques radiologiques à long terme. De ce point de vue, les produits de fission à considérer en priorité sont le technétium (Tc), le césium (Cs) et l'iode (I), car le ^{99}Tc et le ^{135}Cs sont les isotopes prépondérants dans les analyses de risques relatives au stockage du combustible usé, et l' ^{129}I , qui n'est pas incorporé aux déchets de haute activité vitrifiés, est l'isotope qui a les effets radiologiques les plus importants dans les effluents issus du retraitement ou même dans le combustible usé placé dans certaines formations géologiques.

Le technétium présent sous une seule forme isotopique, le ^{99}Tc , peut être transmuté par capture neutronique en ruthénium (^{100}Ru) qui est un métal noble stable. Cependant, la transmutation du ^{99}Tc dans des réacteurs thermiques tels que les REO de conception actuelle, sera difficile parce qu'elle nécessitera de très longues périodes de transmutation et des inventaires considérables. On obtiendrait de meilleurs résultats dans les réacteurs à eau lourde, des sous-assemblages modérés de réacteurs rapides et, éventuellement, dans des réacteurs à hauts flux hybrides. Dans tous les cas, il faudra surenrichir le combustible, sauf si on pouvait appliquer des techniques de séparation isotopique.

Contrairement au technétium, le césium séparé du combustible utilisé ne se présente pas sous la forme d'un seul isotope mais d'un mélange à quantités à peu près égales de ^{135}Cs à vie longue, de ^{137}Cs à vie courte et de l'isotope stable, le ^{133}Cs . Une capture neutronique parasite se produira par conséquent pendant l'irradiation, surtout dans le ^{133}Cs . Par ailleurs, étant donné que le ^{135}Cs a une section efficace d'absorption neutronique assez faible, la transmutation du césium ne peut pas être considérée comme réalisable.

Bien que l'iode séparé du combustible utilisé se présente sous la forme d'un mélange d' ^{129}I et d' ^{127}I , la proportion du deuxième isotope peut être jugée acceptable (16 pour cent). Il serait donc théoriquement possible de transmuter par une capture neutronique l' ^{129}I en xénon (^{130}Xe) qui est un gaz rare. Cette transmutation de l'iode dans des réacteurs thermiques exigerait également des périodes de transmutation très longues et de forts chargements du réacteur.

2.2. Retraitement

2.2.1 *Plutonium et uranium*

Plusieurs pays pratiquent le retraitement du combustible utilisé provenant des REO à l'échelle industrielle (France, Royaume-Uni, Inde et Russie). Dans ces usines, les éléments combustibles des réacteurs à eau légère subissent un traitement destiné à récupérer l'uranium et le plutonium. On peut aussi y traiter des éléments combustibles MOX à condition de les diluer avec des éléments combustibles standard à l' UO_2 afin de respecter les limites fixées pour les doses et la quantité de plutonium. Il est impossible de retraiter, dans les usines de retraitement actuelles, le combustible des réacteurs rapides à forte teneur en Pu, comme celui des assemblages CAPRA actuels, car il ne se dissout pas entièrement dans la solution d'acide nitrique standard.

Plusieurs pays Membres de l'OCDE, mais aussi l'Inde et la Russie, ont choisi de retraiter leur combustible utilisé. Parmi les exceptions notables, il convient de citer le Canada, l'Espagne, les États-Unis et la Suède qui envisagent de stocker directement leur combustible irradié. Toutes les usines de retraitement emploient, pour extraire le plutonium et l'uranium, le procédé PUREX, un procédé d'extraction chimique par voie humide comportant la dissolution du combustible dans de l'acide nitrique et l'extraction de l'U et du Pu à l'aide de phosphate tributylrique (TBP). Dans l'état actuel de la technique, ce retraitement permet de séparer 99.88 pour cent de l'uranium et du plutonium contenus dans les combustibles de REO. Les 0.12 pour cent restants sont incorporés aux déchets vitrifiés ou enrobés, avec les coques et les embouts, dans du béton.

Comme le combustible reste la propriété de la compagnie d'électricité, tous les déchets issus du retraitement (vitrifiés ou en matrices de béton) sont renvoyés dans leur pays d'origine. Mille kilos de combustible irradié à raison de 33 GWj donnent, après retraitement, 955 kg d'uranium, 10 kg de

plutonium et environ 2 m³ de déchets vitrifiés ou en matrices de béton. L'évolution actuelle laisse prévoir une nouvelle réduction du volume de déchets qui résultera de l'optimisation du procédé de retraitement et de la gestion des déchets de haute activité.

Le coût du retraitement dépend du moment où il intervient, du taux d'irradiation du combustible, etc. Néanmoins, des estimations raisonnables effectuées par l'AEN donnent un ordre de grandeur de 720 ECU/kg d'U. Mais il convient de comptabiliser ce coût avec celui des autres étapes de l'aval du cycle du combustible et de le comparer à ceux du stockage direct. Cette étape permet en effet d'économiser sur l'extraction et le traitement d'uranium neuf et sur les services d'enrichissement. En tout état de cause, les économies réalisées sur la demande d'uranium naturel et de services d'enrichissement du combustible neuf sont la principale justification de l'utilisation d'éléments combustibles MOX dans les REO et du recyclage du plutonium après retraitement.

Certains pays étudient également les possibilités de retraiter le combustible utilisé par des procédés pyrochimiques utilisant des sels fondus. L'intérêt principal de cette technologie tient à l'excellente tenue au rayonnement des sels fondus qui permet de raccourcir les temps de refroidissement. Cette technologie a été mise au point pour le projet Integral Fast Reactor/ALMR aux États-Unis, et continue d'être étudiée par les compagnies d'électricité japonaises (CRIEPI).

2.2.2 Actinides mineurs

À l'heure actuelle, les actinides mineurs que sont le neptunium (Np), l'américium (Am) et le curium (Cm) ne sont pas séparés dans des usines de retraitement de taille industrielle. Ces éléments sont incorporés aux déchets de haute activité vitrifiés avec les produits de fission. Deux facteurs expliquent cette situation : d'une part, on avait jusqu'à présent peu de raisons de séparer ces éléments, et d'autre part, il était impossible, avec le procédé PUREX, de séparer les actinides trivalents (Am, Cm). On peut, en revanche, récupérer le neptunium en adaptant le procédé PUREX : il suffit de modifier le degré d'oxydation du Np pour l'extraire avec l'uranium et le plutonium et ensuite le séparer du flux de métaux lourds soit seul, soit par coextraction avec l'uranium, soit encore en le dirigeant vers le flux de plutonium.

De nombreuses recherches ont été engagées afin de mettre au point des méthodes efficaces pour séparer les actinides trivalents des flux de déchets du procédé PUREX. Ces dernières années, plusieurs procédés ont été mis au point : DIAMEX en France, DIDPA au Japon, TRPO en Chine et TRUEX aux États-Unis et au Japon. La difficulté principale à résoudre consiste à séparer les actinides trivalents (Ans) des lanthanides trivalents (Lns). Étant donné que le rapport entre les lanthanides et les actinides peut varier de 10 à 20 suivant le taux d'irradiation du combustible, la purification des actinides mineurs trivalents (fraction Am-Cm) exige des taux de séparation élevés. La recherche dans cette direction est l'une des facettes des travaux sur les procédés DIDPA et TRUEX. Cependant, on étudie également d'autres procédés faisant appel à de nouvelles molécules extractantes. D'importants travaux de recherche fondamentale ont été entrepris sur des extractants et systèmes complexes capables de dissocier les actinides des lanthanides. Les progrès récents réalisés en Chine, en Allemagne, en France et au Japon sur les composés « CYANEX 301 » paraissent très prometteurs.

Pour remplacer les méthodes de traitement en milieu aqueux, les États-Unis (ANL) et le Japon (CRIEPI) travaillent activement au développement de méthodes de séparation pyrochimiques. Ces techniques de retraitement par voie sèche sont adaptées aux combustibles usés à haut taux de combustion, refroidis peu de temps, car elles ne sont pas sensibles au dommage d'irradiation et sont

moins contraignantes vis à vis du risque de criticité. On peut ainsi traiter directement les combustibles en alliages métalliques à base de transuraniens par électrolyse combinée à une extraction réductrice dans un bain de sels et de métaux fondus (Cd). Cette technologie fait l'objet d'études théoriques et d'expériences en laboratoire. Les températures élevées auxquelles les procédés sont mis en œuvre et l'utilisation de réactifs corrosifs compliquent l'application industrielle à grande échelle de cette méthode. Toutefois, comme le recyclage multiple de combustibles de réacteurs rapides à haut taux de combustion devrait se révéler très difficile avec des méthodes aqueuses, les techniques pyrochimiques demeurent une solution alternative valable pour l'avenir.

2.2.3 *Produits de fission*

Dans le procédé PUREX, les produits de fission se répartissent entre trois flux de déchets différents :

- les effluents gazeux rejetés dans l'air qui contiennent essentiellement un gaz rare, le ^{85}Kr ;
- les effluents liquides de faible activité rejetés dans la mer ou les océans qui contiennent majoritairement de l' ^{129}I ;
- les déchets liquides de haute activité (DHA) où sont concentrés tous les autres produits de fission.

Au cours de l'étape de dissolution du procédé PUREX, l'iode contenu dans le combustible s'oxyde en iode élémentaire. Suivant les conditions dans lesquelles se déroule le procédé, cet iode peut être rejeté avec les effluents gazeux ou concentré dans la solution. La première méthode permet une séparation très efficace, mais l'iode doit ensuite être piégé dans les effluents gazeux. Pour ce faire, on utilise normalement un système de lavage à contre-courant ou des tamis moléculaires imprégnés d'argent permettant d'atteindre des facteurs de décontamination d'environ 10^4 .

Le technétium se présente après le retraitement en partie sous une forme insoluble avec les autres métaux nobles (Ru, Rh, Pd) et en partie sous forme de l'espèce soluble $^{99}\text{TcO}_4^-$. Il est techniquement possible de séparer le technétium soluble moyennant quelques adaptations du procédé PUREX. Il peut être séparé sous forme d'acide pertechnétique (HTcO_4) par des molécules extractantes de type monoamide ou par une méthode d'absorption sur du charbon actif. On parvient également à séparer par précipitation le technétium des déchets de haute activité liquides en réduisant la concentration d'acide nitrique. Avant toute transmutation, les deux fractions doivent être recombinaées.

Au cours du procédé PUREX, le césium reste dans les déchets de haute activité liquides. Une méthode d'absorption à base d'échangeurs d'ions inorganiques a été mise au point pour la séparation du Cs et a fait ses preuves avec des déchets de haute activité réels. Récemment, on a développé à l'échelle du laboratoire une nouvelle méthode permettant de séparer le césium de cette solution à l'aide de molécules macrocycliques fonctionnalisées (calixarènes) dans des solutions dont on imprègne des membranes liquides. Il est possible d'extraire ainsi des solutions acides 99.8 pour cent du césium lorsqu'il traverse la membrane.

2.3 Technologie de fabrication des combustibles et des cibles

2.3.1 *Plutonium et uranium*

La fabrication des assemblages au MOX fait appel à une technologie courante utilisée à l'échelle industrielle. La capacité annuelle des usines de fabrication en Belgique, en France, au Royaume-Uni et au Japon avoisine 200 t de ML, mais elle devrait être portée à 300 t de ML en 2000. La fabrication du MOX revient à peu près quatre fois plus cher que la fabrication du combustible standard à l'oxyde d'uranium (275 à 300 dollars/kg d'U) en raison du système des garanties des matières fissiles et de la sévérité des normes de sûreté pour l'essentiel destinées à assurer la protection radiologique des travailleurs par l'emploi de boîtes à gants. En revanche, le recyclage du plutonium permettra d'économiser sur des opérations relevant de l'amont du cycle du combustible, notamment les activités minières et l'enrichissement, qui contribuent pour une bonne part au débit de dose reçu par les travailleurs et aux coûts de la partie amont du cycle du combustible.

Les combustibles à matrices inertes sont le fruit de travaux récents effectués pour optimiser les taux d'incinération. Dans ces combustibles, on mélange les composés à transmuter avec une substance inerte sur le plan neutronique. On peut utiliser, pour ce faire, une dispersion (échelle macroscopique) ou une solution solide (échelle microscopique). Parmi les matériaux envisagés comme matrices inertes, on peut citer des oxydes tels que la spinelle ($MgAl_2O_4$), l'oxyde d'yttrium (Y_2O_3), un oxyde mixte d'yttrium et d'aluminium ($Y_3Al_5O_{12}$), des métaux comme le tungstène ou le vanadium, ou encore le carbure de silicium (SiC). Toutefois, la fabrication et la caractérisation de ces combustibles méritent des recherches supplémentaires, notamment sur leur comportement sous irradiation et leur compatibilité avec les techniques de retraitement actuelles.

Outre les combustibles oxydes, on envisage d'utiliser, pour l'incinération du plutonium, des combustibles nitrures et métalliques. Ces deux nouvelles formes de combustible sont compatibles avec le sodium liquide et pourraient donc être utilisées dans des réacteurs incinérateurs rapides. Les combustibles nitrures proposés pour des cœurs de réacteurs incinérateurs de type CAPRA ont été produits à l'échelle du laboratoire dans les années 60. Comme nous l'avons vu plus haut, l'intérêt actuel pour les combustibles nitrures tient en partie au fait que les combustibles oxydes à forte teneur en plutonium ne se dissolvent pas dans l'acide nitrique, contrairement aux combustibles nitrures. Ces derniers combustibles présentent, par ailleurs, une conductivité thermique nettement supérieure, ce qui permettra d'abaisser la température au centre de l'élément combustible et ainsi d'accroître les marges de sûreté. Le principal inconvénient de ces combustibles est qu'ils produisent du ^{14}C au cours de la réaction (n, p) de ^{14}N . L'enrichissement en ^{15}N de l'azote utilisé pour fabriquer le combustible est donc impératif. De plus, les procédés pyrochimiques étudiés au Japon faciliteraient le recyclage de l'azote enrichi.

Dans le cadre de recherches du projet IFR, les États-Unis ont étudié des combustibles métalliques formés d'un alliage d'uranium, de plutonium et de zirconium (Zr) et en ont produit à l'échelle du pilote. Comme les combustibles nitrures, les combustibles métalliques ont une meilleure conductivité thermique que les combustibles oxydes et, de plus, présentent une bonne stabilité aux rayonnements, autorisant des taux de combustion élevés. Dans le concept de l'IFR/ALMR, le combustible métallique serait retraité par des techniques pyrochimiques faisant appel à l'emploi de sels fondus.

2.3.2 *Actinides mineurs*

Le recyclage du neptunium dans le combustible MINOX présenterait l'avantage de pouvoir s'effectuer dans les usines existantes de fabrication de MOX moyennant quelques adaptations mineures. Il s'agirait essentiellement d'améliorer le blindage biologique et d'automatiser davantage le procédé afin d'améliorer la protection contre les niveaux de rayonnements plus élevés. On prévoit de ce fait une hausse des coûts de fabrication d'environ 20 pour cent. L'Institut des transuraniens (ITU) de Karlsruhe a réussi à fabriquer des combustibles de composition $(U_{0.55}Pu_{0.40}Np_{0.05})O_2$ destinés à une campagne d'irradiation dans le cadre du projet CAPRA.

À cause des limites de doses à respecter lors la fabrication, on ne peut ajouter l'américium au combustible UO_2 qu'en petite quantité. La dose élevée de rayonnement γ n'est pas due seulement à l'américium mais à certains lanthanides qui sont présents sous forme d'impuretés. C'est pourquoi, la solution la plus efficace pour incinérer l'américium à grande échelle consistera à l'intégrer à un combustible placé dans une matrice inerte qu'il faudra préparer dans des installations spécialement conçues et équipées de blindages extrêmement efficaces et de systèmes de télémanipulation. La matrice inerte qui sera utilisée pour incinérer l'américium serait constituée de matériaux proches de ceux envisagés pour l'incinération du plutonium (voir plus haut). Cependant, les propriétés de l'oxyde d'américium (AmO_2) ne sont pas très encourageantes : il a une mauvaise conductivité thermique, une forte affinité avec l'oxygène et, de surcroît, réagit avec le sodium liquide.

Pour incinérer l'américium et, éventuellement, d'autres actinides mineurs, il serait par conséquent plus intéressant de les recycler sous formes métalliques ou nitrures, avec ou sans matrice inerte. Le JAERI étudie actuellement cette solution.

Il semble impossible à l'heure actuelle de recycler le curium pur dans un système spécialement dédié à cette opération en raison des rayonnements α , γ et neutroniques très élevés que produisent sa décroissance et la fission spontanée. Une solution consisterait donc à entreposer le curium durant environ 100 ans, le temps nécessaire pour que les isotopes du curium à vie relativement courte (^{242}Cm , ^{243}Cm et ^{244}Cm) se transforment en isotopes de plutonium qui pourraient alors être recyclés comme nous l'avons décrit ci-dessus. Dans certains scénarios, on envisage encore de recycler un mélange d'américium et de curium. Néanmoins, il faut aussi prévoir une méthode efficace pour séparer au préalable l'américium du curium. .

2.3.3 *Choix des cibles pour les produits de fission*

Au cas où l'on opérerait pour la transmutation des produits de fission, à savoir le technétium et l'iode, l'irradiation serait vraisemblablement réalisée dans des cibles spéciales. La recherche de matériaux adaptés ainsi que des expériences d'irradiation pilotes ont été entreprises dans le cadre de la collaboration européenne EFTTRA. Les premiers résultats de ces études ont montré que l'on peut utiliser comme matériau de cible du technétium métallique. On a développé un procédé de fabrication permettant de fondre le métal en aiguilles, et les expériences d'irradiation effectuées dans un spectre thermique (jusqu'à un taux de combustion d'environ 6 pour cent) n'ont pas mis en évidence des phénomènes de gonflement ou de désintégration de ces aiguilles.

En raison de sa volatilité et de sa réactivité chimique, l'iode ne peut pas être transmuté sous sa forme moléculaire. Il faudra donc utiliser des iodures métalliques. Les expériences réalisées dans le

cadre de la coopération EFTTRA ont montré que, pour la transmutation de l'iode, l'iodure de sodium (NaI) serait le meilleur choix.

3. DESCRIPTION DES CYCLES DU COMBUSTIBLE

Définition de la séparation et de la transmutation

On appelle *séparation* un ensemble complexe de traitements chimiques et/ou métallurgiques destinés à séparer des nucléides, ou groupes de nucléides radiotoxiques spécifiques, de l'ensemble des radionucléides que contiennent les éléments combustibles usés et périodiquement déchargés des réacteurs nucléaires. Les nucléides, ou groupes de nucléides, que l'on a ainsi séparés peuvent être stockés tels quels ou transformés en nouveaux éléments combustibles ou cibles d'irradiation.

La *transmutation* est un terme général qui recouvre tant les transformations nucléaires élémentaires par capture d'un neutron que la fission de nucléides lourds, la spallation et d'autres réactions nucléaires faisant intervenir des neutrons. Dans le cadre de cette étude, la transmutation a pour but de réduire l'inventaire à long terme des nucléides radiotoxiques en convertissant les nucléides d'origine en radionucléides à vie courte ou en nucléides stables.

3.1 Les cycles du combustible nucléaire

L'expression cycle du combustible nucléaire recouvre toutes les opérations nécessaires pour alimenter les centrales en combustibles neufs et gérer les combustibles usés déchargés des réacteurs. On trouve sur la Figure I.3 les principales étapes d'un cycle du combustible avec retraitement qui, pour les réacteurs à eau ordinaire, sont les suivantes :

- *l'amont du cycle du combustible* englobe toutes les opérations depuis les activités de prospection du minerai d'uranium jusqu'au transport des éléments combustibles avant leur rechargement dans les réacteurs nucléaires, soit l'extraction et le traitement du minerai afin d'obtenir un concentré d'uranium, la conversion de ce concentré en hexafluorure pour l'expédier dans les usines d'enrichissement d'uranium où l'on fait passer la teneur en ^{235}U de son niveau naturel (0.72 pour cent) à 3 à 5 pour cent, et enfin, la fabrication des éléments combustibles.
- *l'aval du cycle du combustible* comprend à l'heure actuelle deux approches alternatives :
 - le cycle fermé, fondé sur le retraitement du combustible usé, opération qui permet de séparer et de recycler les matières énergétiques (essentiellement le plutonium) que ce combustible contient et d'optimiser ainsi la gestion des déchets qui seront ensuite évacués dans des dépôts en formation géologique ;
 - le cycle ouvert, qui consiste à enfouir directement les combustibles irradiés dans un dépôt en formation géologique après une période d'entreposage de durée variable.

On peut voir sur la Figure I.4 les flux annuels de matières dans le cycle du combustible d'un parc mixte de réacteurs comportant des REP et des RNR et, sur la Figure I.5, ceux d'un parc utilisant exclusivement des RNR pour la production d'énergie.

Nous examinerons dans ce rapport quatre modes de gestion du combustible :

3.1.1 Le cycle ouvert (CCO)

Ce cycle correspond au scénario dans lequel tout le combustible utilisé est déchargé d'un réacteur nucléaire et stocké dans des ouvrages, le temps qu'il refroidisse suffisamment pour pouvoir être transporté dans un dépôt permanent aménagé dans des formations géologiques profondes.

3.1.2 Le cycle avec retraitement (CCF)

Ce scénario comporte une étape de « retraitement » destinée à récupérer l'uranium et le plutonium contenus dans les éléments combustibles dissous et à faire passer les produits de fission et actinides mineurs (AM = Np, Am, Cm) dans les déchets liquides de haute activité que l'on entreposera plusieurs années avant de les vitrifier. Les matrices vitreuses ainsi obtenues sont ensuite stockées dans des installations ouvragées de surface avant d'être enfouies en tant que déchets de haute activité dans des dépôts en formations géologiques.

3.1.3 Cycle du combustible avancé avec recyclage des transuraniens et de quelques produits de fission (CCA)

Ce cycle comporte une série de traitements chimiques et métallurgiques et de réactions nucléaires, dont l'objectif est de séparer tous les actinides (Pu, Am, Cm, Np) et certains produits de fission (^{99}Tc , ^{129}I) du flux principal de déchets et de les recycler comme cibles dans les centrales nucléaires ou dans des réacteurs nucléaires dédiés et/ou dans des systèmes hybrides afin d'en réduire de façon substantielle l'inventaire radiotoxique.

3.1.4 Stratégie à double strate

Il s'agit d'une combinaison du cycle avec retraitement (CCF) et du cycle avancé (CCA) aboutissant à la constitution d'un parc mixte de réacteurs consacrés à la production d'énergie et à la destruction des déchets. Dans ce système, les actinides mineurs et certains produits de fission rejetés comme déchets par les usines de retraitement classiques seraient recyclés à l'aide d'installations spécialisées de retraitement et de fabrication du combustible dans un parc de réacteurs mixte composé de réacteurs à eau ordinaire à combustible UO_2 (REO- UO_2), de réacteurs à eau ordinaire chargés en MOX (REO-MOX), de réacteurs rapides à combustible MOX (RNR-MOX) et de réacteurs rapides à combustibles métalliques ou nitrures, mais pourraient aussi être expédiés dans des réacteurs hybrides dédiés pour y subir une transmutation ou une incinération partielle.

On trouvera à l'annexe E les quantités et les caractéristiques des matières composant le combustible nucléaire et les assemblages combustibles déchargés. Pour faciliter la compréhension, ces données ont été établies seulement pour l'irradiation du combustible en REP. Les chiffres ne sont pas les mêmes pour les REB, les CANDU ou d'autres types de réacteurs, mais nous n'avons pas voulu les présenter ici pour éviter la multiplication des tableaux.

Figure I.3 Schéma du cycle du combustible avec retraitement pour un parc de REO de 400 TWh (étude de cas française)

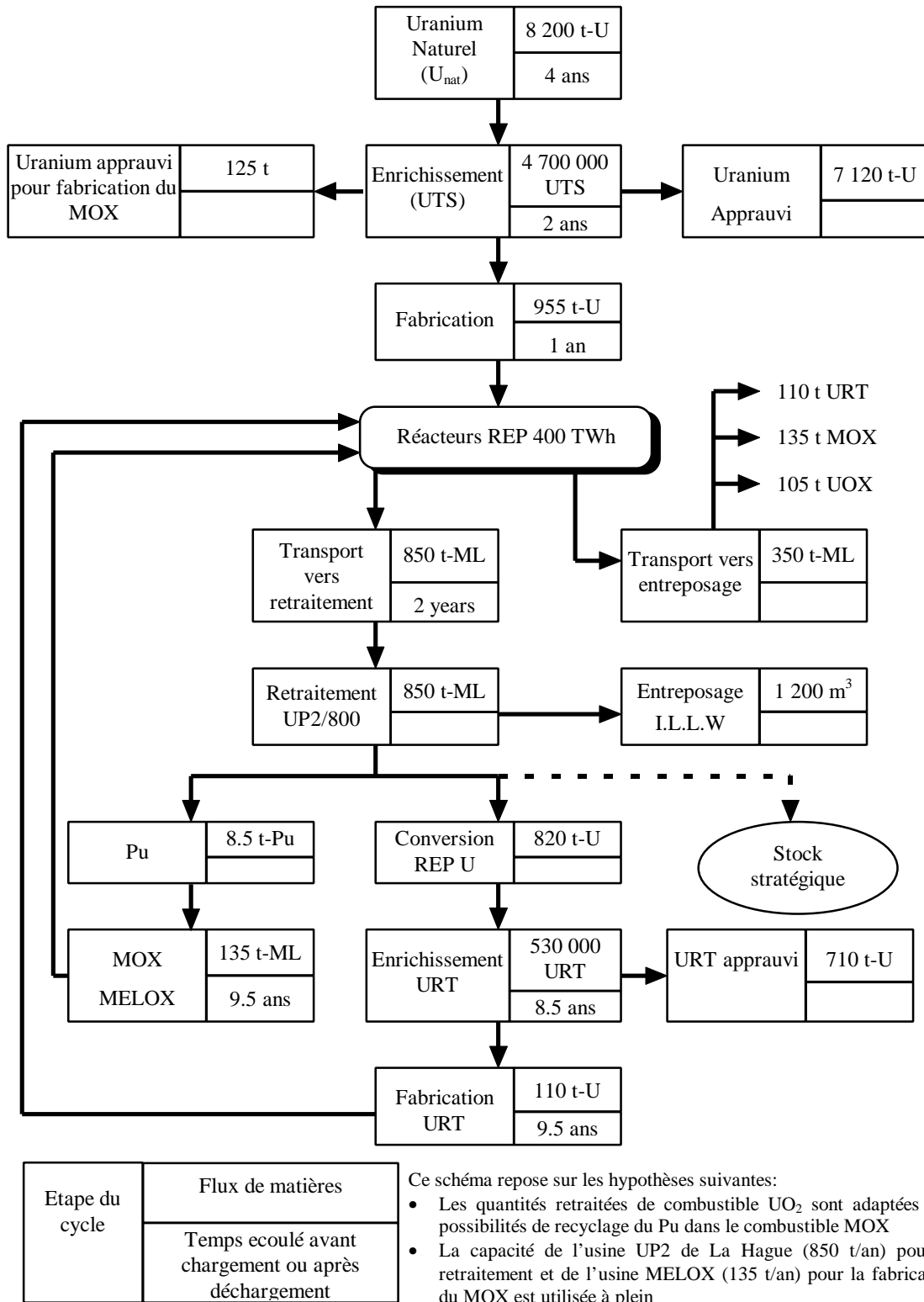


Figure I.4 Flux de matières dans un parc électronucléaire mixte de 700 TWh composé de REP et de RNR (étude de cas japonaise)

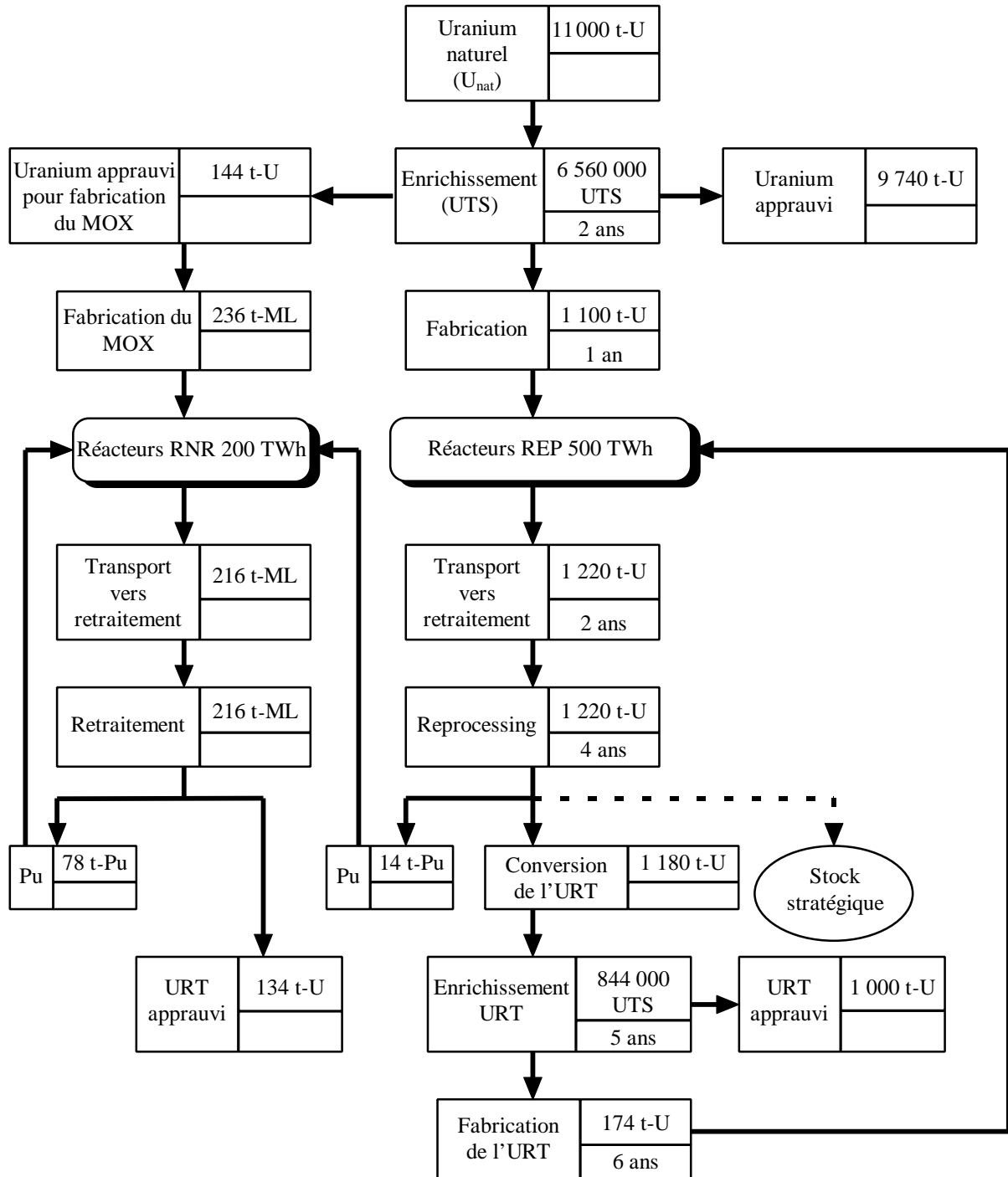
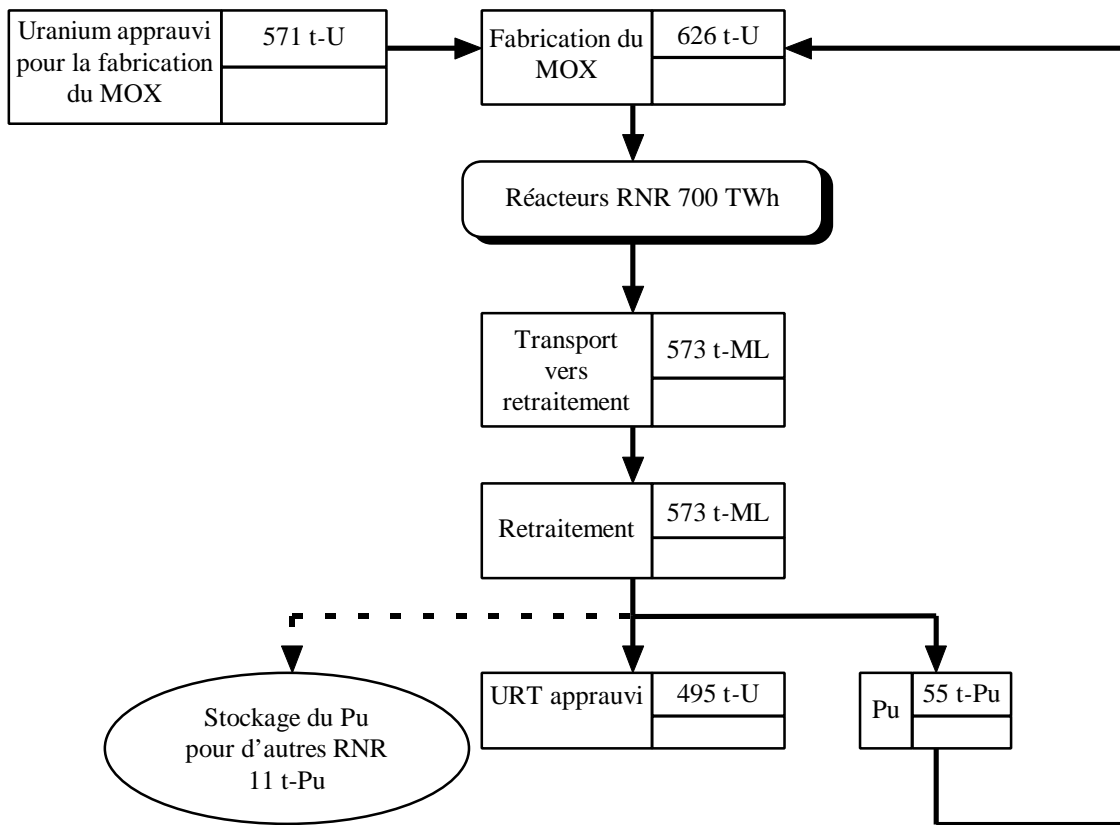


Figure I.5 Flux de matières théorique pour un parc de RNR de 700 TWh
(étude de cas japonaise)



3.2 Aperçu des cycles du combustible et questions annexes

3.2.1 Cycle ouvert

Le cycle ouvert est la solution prioritaire qu'ont choisie le Canada, l'Espagne, les États-Unis, la Suède et quelques autres pays. Comme les prix de l'uranium sont actuellement assez bas, cette solution produit l'énergie nucléaire la moins chère. Cependant, elle suppose que l'on ne récupère pas les matières fissiles résiduelles (1 pour cent de Pu et 0.8 pour cent d'²³⁵U) ni les matières fertiles (²³⁸U) qui subsistent dans le combustible utilisé.

La radiotoxicité potentielle à long terme du combustible nucléaire utilisé provient essentiellement des actinides qu'il renferme, notamment des nucléides transuraniens (TRU = Pu, Np, Am, Cm...). Ces éléments constituent un important terme source radiologique dans un dépôt de combustible usé, et cela sur de très longues périodes (des centaines de milliers d'années). Cependant, en raison de l'insolubilité intrinsèque des actinides dans les formations géologiques profondes, les transuraniens peuvent être efficacement confinés.

À court terme, les produits de fission constituent le facteur le plus contraignant pour la conception de dépôts parce que le rayonnement γ et la chaleur résiduelle qu'ils produisent augmentent proportionnellement avec le taux de combustion. Après 300 à 500 ans, la plupart des produits de fission se sont désintégrés à l'exception de quelques nucléides à vie longue (^{135}Cs , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{93}Zr ...). Certains d'entre eux sont assez mobiles dans la géosphère et peuvent contribuer à l'exposition de l'homme.

On peut limiter l'impact radiologique à long terme du cycle ouvert en prévoyant un système de barrières ouvragées et de barrières naturelles qui devraient protéger l'homme des déchets le temps que durera le terme source radiologique relatif à ces déchets. En raison des périodes très longues que cela représente, il convient d'analyser soigneusement les processus en jeu ainsi que les conséquences à long terme de tous les scénarios concevables.

À l'heure actuelle, il n'existe pas de consensus quant à la durée de confinement des déchets de haute activité dans des dépôts en formations géologiques. On s'est fixé comme objectif des périodes de 1 000, 10 000, 100 000 années, voire des durées plus longues, mais la communauté internationale n'a pu jusqu'à présent s'entendre sur une période de confinement donnée.

Le cycle ouvert comporte quelques spécificités du point de vue de la réglementation et de la sûreté :

- Le risque de criticité doit être pris en compte dans la procédure d'autorisation d'un dépôt de combustible usé en raison des quantités importantes de matières fissiles que l'on prévoit d'y stocker.
- La chaleur que dégage le combustible usé au-delà de 500 ans du fait de la présence des actinides est nettement supérieure à celle des seuls produits de fission et, de ce fait, doit être prise en compte dans la conception du dépôt. Cette producteur de chaleur à long terme est toutefois, en valeur absolue, nettement inférieure à celle des produits de fission chargés dans le réacteur.
- Aux États-Unis, la quantité maximale de combustible usé admise dans un dépôt de stockage est limitée à 70 000 tonnes de métal lourd. De ce fait, un grand pays disposant d'un parc nucléaire important, comme les États-Unis, aura besoin de créer un nouveau dépôt à peu près tous les 30 ans.

3.2.2 Cycle du combustible avec retraitement (CCF) et recyclage de l'uranium et du plutonium

Étant donné que l'uranium naturel ne contient que 0.72 pour cent de l'isotope fissile ^{235}U , le recyclage de l'uranium et du plutonium contenus dans le combustible usé a été considéré depuis l'aube de l'ère nucléaire comme la solution de référence. Ces dernières années, de nombreux pays de l'OCDE ont manifesté davantage de réticence à son égard pour des raisons économiques mais aussi par crainte de prolifération.

Ce cycle CCR permet d'extraire un très forte proportion (99.9 pour cent) des flux d'uranium et de plutonium et de ne rejeter qu'un pourcentage minime des actinides majeurs dans les déchets de haute activité liquides (et par conséquent, les déchets de haute activité) et, pour finir, dans le dépôt en formation géologique.

La séparation des actinides mineurs des déchets de haute activité liquides, envisagée comme un moyen de réduire encore la radiotoxicité résiduelle des déchets de haute activité, fait l'objet d'études depuis les années 70. À l'origine, l'objectif des travaux de recherche et de développement était d'éliminer totalement les actinides mineurs pour éviter d'avoir à stocker les déchets à long terme et à les enfouir dans des formations géologiques profondes. Cette option, irréalisable, a été abandonnée.

Cependant, au cas où le public ou les instances politiques refuseraient la solution du stockage à très long terme des déchets de haute activité, l'élimination des actinides mineurs des déchets de haute activité liquides permettrait d'atténuer la radiotoxicité résiduelle des déchets de haute activité. Il faut savoir néanmoins que l'augmentation du taux de combustion s'accompagne d'une production plus importante d'actinides mineurs. Dans ce cas, la solution qui s'impose de prime abord consisterait à ajouter un module de séparation des actinides mineurs aux usines de retraitement classiques. Les pays qui disposent actuellement d'une infrastructure de retraitement (France, Royaume-Uni, Japon, Inde, Russie et Chine) ainsi que leurs partenaires pourraient, à moyen terme, adopter un procédé de séparation partiel permettant d'éliminer des déchets de haute activité de la quasi-totalité des transuraniens à vie longue.

Se pose alors néanmoins la question de savoir quoi faire de l'uranium, du plutonium et des actinides mineurs ainsi récupérés. Les pays qui ont choisi de retraiter le combustible utilisé étaient guidés par le souci de récupérer les actinides mineurs (uranium et plutonium) afin de réduire leurs achats d'uranium neuf (de 20 pour cent) et d'utiliser les composants fissiles résiduels que contient le combustible utilisé (environ 1 pour cent d'²³⁵U et 1 pour cent de Pu) et qui représentent environ 25 pour cent des coûts standard d'UTS pour l'étape de l'enrichissement de l'uranium.

Pendant quelques décennies, on a envisagé de recycler le plutonium dans des réacteurs rapides, mais, pour des raisons tant économiques que politiques, la mise en place de cette option à long terme a pris du retard ou même été abandonnée. En effet, avec la chute des prix de l'uranium, le stock de plutonium constitué dans les usines de retraitement et qui devait initialement être utilisé dans des surgénérateurs rapides à métal liquide est devenu superflu.

Le recyclage dans des réacteurs thermiques du plutonium issu des opérations de retraitement a pris une dimension industrielle il y a plusieurs années. En Europe occidentale, certains pays comme la France, l'Allemagne, la Suisse et la Belgique ont en effet introduit le combustible REO-MOX dans le cycle du combustible avec retraitement et transforment des quantités industrielles de PuO₂ en combustible MOX pour REO qui est ensuite irradié dans des réacteurs bénéficiant d'une autorisation spéciale. Dans une certaine mesure, le recyclage du plutonium est une première étape sur la voie d'un scénario de séparation-transmutation s'inscrivant dans une perspective plus vaste de recyclage des ressources et de réduction des déchets à vie longue produits par les programmes nucléaires.

Ce recyclage du plutonium sous forme de MOX dans les REO est a posteriori une solution qui permet de compenser la dépense que représente le retraitement en produisant de l'électricité dans un deuxième cœur de réacteur. Du point de vue de la radiotoxicité des déchets, le gain réalisé est plutôt maigre étant donné que seulement 25 pour cent du plutonium recyclé seulement est fissionné et que près de 10 pour cent de ce plutonium se transforment en actinides mineurs radiotoxiques à long terme. À l'heure actuelle, le recyclage du combustible utilisé des REO sous forme de MOX permet une réduction globale en masse (d'un facteur 5 environ) de ce terme source radiotoxique, mais il n'a pas d'effet significatif sur l'inventaire radiotoxique total. Il est théoriquement possible de procéder à un recyclage multiple du MOX dans les REO, mais, dans ce cas, la radiotoxicité résultante augmente à chaque nouvelle campagne de recyclage.

Par conséquent, au cas où l'on serait obligé de réduire davantage l'inventaire radiotoxique global, il faudrait faire passer la fraction de transuraniens que contient le combustible REO-MOX dans un cycle du combustible de la génération suivante à base de RNR-MOX, à savoir le cycle avancé. D'ici là, la solution la plus efficace consisterait donc à recourir au stockage réversible du combustible REO-MOX le temps que la technologie d'incinération en réacteurs à neutrons rapides soit utilisable à l'échelle industrielle. Dans les usines de retraitement actuelles, il est théoriquement possible de retraiter le combustible REO-MOX utilisé en prévision du recyclage des transuraniens dans des RNR électrogènes.

Pour abaisser dans de fortes proportions la radiotoxicité des déchets liquides de haute activité issus du retraitement du combustible REO-MOX par rapport à celle du même combustible utilisé mais non retraité, on aura besoin d'un module supplémentaire de séparation des transuraniens. La technologie proposée pour traiter les déchets de haute activité liquides issus du retraitement du combustible REO- UO_2 serait appropriée.

Dès le lancement des programmes nucléaires, il était clair que l'on chercherait à récupérer l'uranium dans le combustible utilisé, ce qu'a permis le procédé PUREX à base de TBP. Pendant de nombreuses années, on a ainsi récupéré l'uranium au cours du retraitement, mais une très petite proportion du stock ainsi constitué a été recyclée dans des réacteurs. L'uranium de retraitement contient en effet quelques radioisotopes gênants comme l' ^{232}U , dont la décroissance naturelle donne des produits radiotoxiques, ou l' ^{236}U qui, lorsqu'il est irradié, forme du ^{237}Np .

3.2.3 *Cycle du combustible avancé avec recyclage des transuraniens*

Tout cycle du combustible avancé exige en première étape le retraitement du combustible utilisé.

On peut décomposer ainsi le cycle du combustible avancé avec séparation et transmutation de la façon suivante :

- Retraitement du combustible REO- UO_2 .
- Séparation des actinides mineurs des déchets de haute activité liquides produits lors du retraitement du REO- UO_2 .
- Fabrication des cibles à base d'actinides mineurs en prévision de leur irradiation hétérogène dans des REO.
- Recyclage quantitatif de l'uranium et du plutonium dans le combustible REO-MOX (monorecyclage ou multirecyclage).
- Retraitement du combustible REO-MOX utilisé dans des installations adaptées (inventaire en plutonium plus important).
- Séparation des actinides mineurs des déchets de haute activité liquides et conditionnement des différents éléments (Np, Am, Cm).
- Fabrication de combustible pour RNR (MOX, métal ou nitrure) à faible teneur en actinides mineurs.
- Irradiation du combustible RNR dans des réacteurs incinérateurs rapides ou dans des installations hybrides conçues et dédiées à ce but (très haut taux de combustion).

- Retraitement du combustible RNR usé dans des installations spécialement conçues et bénéficiant d'autorisations adéquates (procédés aqueux et non aqueux).
- Séparation quantitative de tous les transuraniens issus du retraitement du combustible RNR usé lors des recyclages multiples.
- Multirecyclage du combustible RNR-MOX à forte teneur en transuraniens jusqu'à ce que la proportion consommée soit suffisante.
- Séparation de certains produits de fission de périodes longues, si nécessaire pour le stockage.
- Révision de la stratégie de gestion des produits de fission : séparation du ^{99}Tc (opérations de tête supplémentaires, déchets de haute activité liquides).
- Séparation et récupération des métaux nobles (platinoïdes).

Nous allons commenter ci-dessous les étapes les plus importantes.

Dans un cycle du combustible avancé dont la finalité est de réduire le plus possible l'inventaire radiotoxique à long terme, la séparation et la transmutation ont un rôle essentiel à jouer. Cependant, le succès de la mise en œuvre de la voie de séparation-transmutation dans ce cycle demande des modifications des installations actuelles ou de la conception des usines de retraitement futures qui intégreront des étapes de séparation.

3.2.3.1 *Impact du retraitement du combustible REO- UO_2*

Le rendement de séparation actuellement obtenu (99.9 pour cent) pour les actinides majeurs suffit, dans une première étape, à abaisser leur teneur dans les déchets de haute activité liquides à un niveau acceptable. La seule amélioration qui pourrait avoir des répercussions importantes sur le risque et sur la gestion des déchets à long terme consisterait à éliminer les déchets de moyenne activité, car ils ne sont pas vitrifiés avant d'être stockés et représentent un volume considérable par rapport aux déchets de haute activité.

3.2.3.2 *Séparation des actinides mineurs des déchets liquides de haute activité provenant du combustible usé de REO*

Pendant le retraitement, la plupart des actinides mineurs se retrouvent dans les déchets de haute activité. C'est ainsi que l'américium et le curium (avec des transuraniens à vie plus courte : Bk, Cf...) sont quantitativement transférés (> 99.5 pour cent) dans les déchets liquides de haute activité. Le neptunium part directement ou indirectement dans les déchets liquides de haute activité, à l'exception d'une fraction (généralement petite) que l'on retrouve dans le flux de plutonium. La séparation du neptunium exige des étapes d'extraction chimique supplémentaires si l'on veut opérer son transfert quantitatif vers un flux unique de déchets ou de produits pour ensuite procéder à de nouvelles séparations.

Avec le procédé PUREX, il est techniquement possible de récupérer le ^{237}Np du flux d'uranium et/ou de plutonium. Il est également indispensable au préalable de séparer l' ^{241}Am si l'on veut réduire dans des proportions significatives la radiotoxicité à long terme du ^{237}Np .

De nombreux laboratoires dans le monde entier (Japon, France, Chine et quelques autres pays au parc nucléaire moins important) s'intéressent à l'heure actuelle à la séparation de tous les actinides mineurs des déchets de haute activité liquides, comme l'on fait auparavant les laboratoires nationaux américains (ANL, ONRL, Hanford...). Des études théoriques et des essais en laboratoire chaud ont été effectués selon plusieurs procédés dont les plus importants sont les procédés TRUEX, DIDPA, TRPO, DIAMEX, et CYANEX 301™. Le Japon, de son côté, étudie la séparation en milieu non aqueux.

Si l'on considère la radiotoxicité des éléments, la séparation de l'américium (et du curium) des déchets liquides de haute activité arrive en priorité. Toutefois, la fraction Am (Cm) contient également les éléments du groupe de terres rares qui, suivant le taux de combustion, peuvent représenter des quantités 10 à 20 fois plus importantes que les actinides. Pour un taux de combustion de 45 GWj/t ML, le rapport est de 16 (13.9 kg de terres rares contre 0.870 kg d'Am-Cm). Par conséquent, pour obtenir une fraction de transuraniens qui soit pure à 90 pour cent, il faut que le facteur de décontamination des terres rares dépasse 100. Une pureté de 99 pour cent suppose un facteur de séparation supérieur à 1 000, qui constitue la limite technologique pour des éléments tels que les lanthanides et les actinides dont les propriétés chimiques sont très proches. Les récents progrès des techniques de séparation chimique laissent cependant entrevoir la possibilité de résoudre ce problème.

Adapter les flux annuels de matières et traduire ces adaptations en réalités techniques représente un travail extrêmement complexe qui dépasse le cadre de ce rapport. À l'avenir, les usines de retraitement pourraient bien comporter, dès leur conception, des chaînes de séparation des actinides et des produits de fission à vie longue.

3.2.3.3 *Fabrication des cibles d'actinides mineurs pour recyclage hétérogène dans des REO*

À moyen terme, l'irradiation des combustibles ou cibles contenant des actinides mineurs ne pourra se faire que dans les réacteurs thermiques, notamment dans les REO. Aujourd'hui, il est difficile de fabriquer des cibles d'irradiation avec des quantités d'actinides mineurs qui soient représentatives d'une production industrielle, et cela même dans des cellules chaudes à l'échelle du pilote.

On possède une certaine expérience de la production de sources de chaleur isotopiques, mais le contexte radiologique actuel, de même que les limites de dose que devraient imposer les organismes de réglementation et contrôle, ont créé pour le recyclage industriel des actinides mineurs une situation très différente de celle qui a prévalu par le passé pour les applications militaires et spatiales.

Étant donné la présence d'importantes quantités d'²⁴¹Am, auxquelles viennent s'ajouter 1 à 10 pour cent de terres rares, on aura besoin de chaînes de fabrication blindées contre le rayonnement γ ainsi que de systèmes de télémanipulation. La présence de 5 pour cent de ²⁴⁴Cm dans une cible d'²⁴¹Am et d'²⁴³Am exigera des protections neutroniques supplémentaires à cause du taux de fission spontanée et de la réaction α -n caractéristique des cibles isotopiques de type oxyde, ce qui compliquera encore la mise en œuvre du procédé.

3.2.3.4 *Séparation des produits de fission et d'activation à vie longue*

Plusieurs produits de fission ou d'activation importants d'un point de vue radiologique peuvent avoir des répercussions significatives sur le comportement des dépôts en formations géologiques, de sorte qu'il a été envisagé de les séparer et de les transmuter. L'évaluation doit porter

notamment sur les nucléides suivants : produits de fission : ^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs , ^{79}Se , ^{93}Zr et ^{126}Sn ; produits d'activation : ^{14}C et ^{36}Cl .

Le technétium-99 (^{99}Tc) est un produit de fission dont la période radioactive est de 213 000 ans et que l'on rencontre sous forme de métal et de TcO_2 dans les résidus insolubles et d'ion pertechnétate dans les solutions liquides de déchets de haute activité. Dans du combustible irradié à un taux de 45 GWj/t ML, son activité spécifique est de 6.10^{11} Bq/t ML. Sa radiotoxicité se caractérise par une limite annuelle d'incorporation par ingestion (LAI) de 3.10^7 Bq. Pour résoudre efficacement le problème de sa radiotoxicité à long terme, il faut combiner les deux fractions avant de transmuter cet élément. Il est relativement facile d'extraire le technétium soluble. En revanche, sa similitude avec les métaux nobles platinoides et la nature des méthodes de séparation (techniques pyrochimiques) rendent très délicate sa séparation lorsqu'il se trouve dans des déchets insolubles. De plus, le technétium ne présente un danger radiotoxicologique que lorsqu'il se trouve dans des conditions géologiques oxydantes (Tuff, Yucca Mountains). Dans les aquifères réducteurs à grande profondeur, la migration du ^{99}Tc est négligeable.

L'iode-129 (^{129}I) est séparé des déchets liquides de haute activité au cours des procédés de retraitement classiques. On le retrouve dans les effluents de lavage du dissolvant. Son activité spécifique dans le combustible est de $1.6.10^9$ Bq/t ML et sa LAI de 1.10^5 Bq. La fraction séparée peut alors être soit stockée sur un adsorbant spécifique ou rejetée dans les océans. Cet élément, qui a une période radioactive de 16 millions d'années, a toutes les chances d'être dispersé dans la géosphère ou la biosphère. Sa forte radiotoxicité le place parmi les nucléides importants lorsque l'on envisage l'installation de dépôts terrestres de combustible usé. En revanche, s'il était dispersé dans la géosphère ou la biosphère, sa radiotoxicité est assez limitée.

Le sélénium-79 (^{79}Se) est un produit de fission dont la période est de 65 000 ans et que l'on trouve dans les déchets de haute activité. Ce nucléide, qui se comporte chimiquement comme un sulfate, sera incorporé aux déchets vitrifiés. Son activité spécifique dans le combustible usé devrait se situer autour de 2.10^{10} Bq/t ML, et sa LAI est de 10^7 Bq/an. Étant donné sa concentration chimique très faible dans les déchets liquides de haute activité, par rapport aux composés naturels du soufre, sa séparation ne paraît pas évidente.

Le zirconium-93 (^{93}Zr) et le césium-135 (^{135}Cs) sont deux nucléides à vie longue (de périodes radioactives égales à 1.5 et 2 millions d'années respectivement) que l'on retrouve dans le combustible usé. Il est pratiquement exclu de séparer ces radionucléides des autres produits de fission pour les transmuter, parce qu'ils sont accompagnés d'autres radioisotopes très radioactifs (^{137}Cs) ou les surpassant en quantité (0.73 ~1 kg de ^{93}Zr et 3.3 ~ 5.0 kg de Zr par t ML). Pour en réduire efficacement le potentiel radiotoxique par bombardement neutronique, il faudrait prévoir, avant la fabrication de la cible, toute une série de procédés de séparation isotopique, stratégie que l'on considère à l'heure actuelle comme pratiquement impossible pour des raisons économiques.

L'étain-126 (^{126}Sn) a une période radioactive de 100 000 ans. Il est en partie soluble dans les déchets liquides de haute activité, mais on en trouve aussi une partie dans les résidus insolubles. Sa concentration dans les déchets de haute activité se situe aux alentours de 4.10^{10} Bq/t ML et sa LAI est de 3.6 Bq/t ML. L'espèce radioactive ^{126}Sn s'accompagne d'une série d'isotopes stables (^{116}Sn , ^{118}Sn , ^{119}Sn , ^{120}Sn , ^{122}Sn , ^{123}Sn et ^{124}Sn), ce qui rend sa transmutation très problématique.

Le carbone-14 (^{14}C), dont la période radioactive est de 5 730 ans, constitue un cas difficile. Étant soluble dans les eaux souterraines, il est susceptible de pénétrer dans la biosphère et présente un risque radiotoxicologique important du fait qu'on le retrouve dans le cycle biochimique. Selon la concentration de l'azote dans le combustible UO_2 d'origine, la concentration du ^{14}C dans le combustible

usé devrait représenter environ 3.10^{10} Bq/t ML et sa LAI 4.10^7 Bq/t ML. Sa contribution à la radiotoxicité à long terme dépendra des conditions physico-chimiques qui prévaudront dans les aquifères souterrains à grandes profondeur ou dans des géosphères non saturées en eau. Sa section efficace de capture dans un spectre neutronique thermique est très faible.

Le chlore-36 (^{36}Cl). La gaine en zircaloy et le combustible UO_2 contiennent du chlore naturel à l'état d'impureté à raison de 5 à 20 ppm. Au cours de l'irradiation, ce ^{35}Cl se transmute en ^{36}Cl dont la période radioactive est de 300 000 ans. Une partie de ce produit d'activation se retrouve dans les effluents liquides du dissolvant, l'autre partie restant dans les coques en zircaloy lavées. Pour un taux de combustion de 45 GWj/t ML, on évalue l'activité de cet élément présent dans les déchets de haute et de moyenne activité à 2.10^6 Bq. En raison de ses propriétés chimiques, ce nucléide se dissout facilement dans les eaux souterraines et pourrait, par conséquent, contaminer les réservoirs d'eau au voisinage des dépôts. La LAI par ingestion est de 2.10^7 Bq. Ce radionucléide n'est pas prévu dans les scénarios de transmutation, étant donné que la contamination des concentrés de déchets par le ^{35}Cl naturel produirait des quantités supplémentaires de ^{36}Cl .

Une analyse approfondie de certains radionucléides évoqués dans cette section serait justifiée, afin d'établir les risques qu'ils présentent et leur contribution à la radiotoxicité potentielle par rapport aux transuraniens. En effet, alors qu'ils ne présentent qu'une radiotoxicité de 1 000 à 10 000 fois moins importante que celle des transuraniens, leur contribution au risque à long terme est prédominante, car ils sont susceptibles de migrer beaucoup plus vite dans la biosphère et de provoquer, à très long terme, l'exposition de l'homme à une dose de rayonnement non négligeable.

3.2.3.5 *Recyclage quantitatif de l'uranium et du plutonium dans le combustible REO-MOX*

Certains pays recyclent sous forme de REO-MOX le plutonium séparé lors du retraitement du combustible REO- UO_2 . Il faut savoir cependant que l'irradiation du REO-MOX accroît l'inventaire radiotoxique du combustible, car elle produit davantage d'actinides mineurs. De ce fait, le multirecyclage du plutonium dans les REO-MOX n'est pas efficace.

On s'intéresse depuis peu aux possibilités d'utiliser le plutonium séparé pour en faire du combustible destiné à des RNR dans lesquels « l'incinération » d'isotopes aussi bien impairs que pairs, donne lieu à un taux de fission plus élevé par rapport à celui que l'on obtient dans les REO. Seule la transmutation dans des réacteurs à spectre rapide (RNR ou systèmes hybrides) permet de réduire effectivement l'inventaire radiotoxique des matières nucléaires.

Le recyclage de l'uranium de retraitement dans le combustible des REO se fait à l'échelle industrielle, mais il suppose que l'on surenrichisse en matière fissile le combustible neuf. D'un point de vue purement radiotoxique, l'accumulation d'uranium appauvri ou d'uranium de retraitement a un impact plus important que celle du neptunium par exemple.

3.2.3.6 *Retraitement du REO-MOX*

Jusqu'à présent, le retraitement du REO-MOX s'effectuait le plus souvent en diluant ce combustible avec du REO- UO_2 en respectant les proportions existantes dans le cœur du réacteur ($\text{UO}_2/\text{MOX} = 2$). Dans son usine UP2 de La Hague, la Cogéma a démontré, en 1992 lors d'une campagne spéciale (environ 5 tonnes), qu'il était possible de retraiter le REO-MOX sans le diluer avec du combustible UO_2 . Cette opération pourrait être réalisée à l'échelle commerciale, à condition que les

usines de retraitement reçoivent l'autorisation de traiter des concentrations plus élevées en plutonium ainsi qu'un inventaire total de plutonium nettement plus important.

L'inventaire radiotoxique du combustible REO-MOX usé représente environ huit fois celui du REO- UO_2 . Par le procédé de retraitement classique, on pourra extraire l'uranium et le plutonium qui représentent environ 30 pour cent de l'activité α totale, et les 70 pour cent se retrouveront avec les déchets de haute activité liquides constitués de neptunium, d'américium et de curium. Mais les isotopes du curium et de l'américium sont les principaux responsables de cette radioactivité α .

Si l'on prévoit une étape de séparation et de transmutation, il est indispensable d'éliminer au préalable les transuraniens des déchets de haute activité liquides avant de les vitrifier. Les techniques que l'on utilisera sont en principe identiques à celles adoptées pour le REO- UO_2 (voir 3.2.3.2 Séparation des actinides mineurs des déchets liquides de haute activité provenant du combustible usé de REO). Cependant, les procédés d'extraction sont plus compliqués par l'activité α élevé qui a pour effet d'augmenter le dommage d'irradiation.

Il est possible également de stocker le REO-MOX usé pendant 50 ans ou plus de façon à laisser décroître le ^{244}Cm (période : 18 ans) en ^{240}Pu avant de passer au retraitement. Les procédés d'extraction chimique sont beaucoup plus faciles à réaliser après une période de « refroidissement » prolongée qui permet de réduire d'un facteur 7, voire plus, la chaleur de décroissance α , suivant la composition isotopique. Le multirecyclage du REO-MOX est envisageable si l'on dispose d'une quantité suffisante de plutonium frais issu du retraitement de REO- UO_2 irradié à un taux modéré.

3.2.3.7 Fabrication de RNR-MOX à faible teneur en actinides mineurs

Grâce aux programmes de construction de RNR lancés il y a plusieurs décennies par de nombreux pays nucléaires, on possède aujourd'hui une solide expérience de la fabrication industrielle du combustible RNR-MOX [11]. Le RNR-MOX à 15-25 pour cent de plutonium est aujourd'hui couramment fabriqué à des fins commerciales. Toutefois, jusqu'à présent, le plutonium utilisé de cette manière provenait de combustible UO_2 irradié à des taux peu élevés et contenant de faibles teneurs en ^{238}Pu et en ^{241}Pu .

Depuis, le taux de combustion du REO- UO_2 et du REO-MOX est passé à 50 GWj/t ML. La composition isotopique du plutonium obtenue à l'issue du retraitement de ces combustibles est nettement dégradée et se caractérise par de fortes concentrations de ^{238}Pu et de ^{242}Pu et, au contraire, de faibles teneurs en ^{239}Pu et ^{241}Pu . En 1989, l'AEN a publié une étude approfondie des aspects économiques du recyclage du plutonium; qui reste aujourd'hui une référence généralement valable [12].

Dans l'hypothèse où l'on utiliserait des réacteurs incinérateurs rapides avancés (CAPRA), on envisage des concentrations de plutonium encore supérieures (jusqu'à 45 pour cent). Le recyclage des combustibles contenant d'aussi fortes proportions de ^{238}Pu et de petites quantités d'actinides mineurs est encore plus délicat et exige la conception et la construction d'usines équipées de systèmes de télémanipulation.

Pour le recyclage homogène des actinides mineurs dans le RNR-MOX, on étudie actuellement la possibilité d'ajouter 2.5 pour cent de ^{237}Np et/ou d' ^{241}Am . Le ^{237}Np , un émetteur α , a une faible activité spécifique et ne pose pas de problème majeur de manipulation. Néanmoins, l'addition de 2.5 pour cent d' ^{241}Am créera un champ γ autour des boîtes à gants et des cellules chaudes. Cependant,

le nucléide le plus gênant est le ^{238}Pu à une concentration de 3 pour cent, car il constitue une source de chaleur et de neutrons (5 kWth/t ML ; 5×10^8 neutrons/s par t ML).

Les conditions de fabrication du combustible RNR-MOX contenant de petites quantités d'actinides mineurs dépendront du degré de séparation des terres rares (puissants émetteurs γ) et, et de son contenu en ^{244}Cm qui est accompagné de ^{241}Am et ^{243}Am séparés des déchets liquides de haute activité. La présence de petites quantités de ^{244}Cm intensifiera l'émission de neutrons par le combustible RNR-MOX ainsi produit.

Les taux de séparation des terres rares et du ^{244}Cm qu'il faudra atteindre pour pouvoir envisager la fabrication industrielle du combustible dépendront pour une bonne part de la concentration de terres rares que pourra supporter le combustible RNR-MOX frais et de la concentration admissible de ^{244}Cm lors de la fabrication du combustible.

Le recyclage hétérogène des actinides mineurs permet de s'affranchir de l'obligation de diluer les nucléides gênants pendant la fabrication du combustible (par exemple, le ^{244}Cm) et de réaliser cette opération dans de petites installations spécialement conçues pour ces opérations et pourvues des blindages nécessaires.

3.2.3.8 *Fabrication de combustibles métalliques pour les ALMR et des combustibles avancés pour les réacteurs incinérateurs*

Dans le cadre des travaux sur l'Integral Fast Reactor, une technique de fabrication du combustible a été mise au point et testée à l'échelle du pilote froid (et chaud). Dans l'installation EBR-II, le combustible métallique a été recyclé par fusion d'un alliage U-Pu-Zr à l'échelle du laboratoire et du pilote chaud. Bien sûr, ces procédés en sont encore au stade exploratoire et ne peuvent par conséquent pas être considérés comme des technologies éprouvées. Toutefois, il convient d'en étudier les possibilités étant donné que les combustibles métalliques permettent d'atteindre des taux de combustion très élevés et présentent des propriétés physiques et neutroniques adaptées à la transmutation des transuraniens.

On s'est intéressé très récemment aux possibilités d'utiliser des combustibles nitrure et carbure dans des réacteurs incinérateurs rapides. Il est possible de produire ces combustibles à base de nitrures de transuraniens contenant des quantités macroscopiques d'actinides mineurs en combinant une méthode de gelification interne avec une synthèse carbothermique. Ces combustibles nitrures peuvent être ensuite retraités par des procédés électrolytiques, de la même manière que les combustibles métalliques.

3.2.3.9 *Réacteurs incinérateurs rapides*

Les études et recherches réalisées pendant 30 ans dans le monde entier sur les réacteurs surgénérateurs rapides (surgénérateurs à métal liquide) nous ont permis d'acquérir une expérience technologique considérable. Cette expérience peut être transposée aux réacteurs incinérateurs rapides. On trouvera à la référence [11] les explications concernant le combustible.

En France, le CEA a lancé, en 1992, le programme de recherche CAPRA consacré à la consommation accrue de plutonium dans les réacteurs incinérateurs rapides, effet qui a été obtenu en

augmentant la concentration relative de plutonium dans le combustible. Le programme SPIN sur l'incinération des actinides a été entrepris en parallèle. Actuellement, les recherches s'orientent vers des combustibles à base de transuraniens et sans uranium comportant des matrices inertes afin de réduire le plus possible la formation de transuraniens.

L'autorisation de convertir progressivement le surgénérateur Superphénix en incinérateur de plutonium a été délivrée en 1994 à la suite d'une recommandation d'une commission gouvernementale [11]. À cet effet, on a fabriqué des assemblages équipés de réflecteurs en acier afin de remplacer la couverture fertile radiale. Trois assemblages d'essai ont été fabriqués ainsi : deux assemblages CAPRA contenant du plutonium d'origines différentes, à savoir de première ou de deuxième génération, ainsi qu'un assemblage NACRE dans lequel étaient ajoutés au MOX standard 2 pour cent de neptunium conformément aux résultats du programme SPIN. Après avoir fonctionné en puissance sans problèmes en 1996, Superphénix a été préparé en prévision du changement de cœur. Néanmoins, le gouvernement français a décidé, en 1997, qu'il fallait arrêter définitivement Superphénix, décision qu'il a confirmée en février 1998.

Cette décision implique une importante réorganisation du programme de réacteurs rapides. S'agissant des études relatives à la consommation accrue des transuraniens, il est question de réaliser sur Phénix une partie des expériences initialement prévues sur Superphénix en tenant compte du fait que Phénix a une puissance nettement inférieure et qu'il sera définitivement mis à l'arrêt en 2004. Dans ce nouveau contexte, il a été décidé de sélectionner les expériences pour satisfaire à la plupart des exigences de la Loi française du 2 décembre 1991 concernant la recherche sur les déchets nucléaires.

Le gouvernement japonais a lancé, en 1988, de nouveaux projets de recherche sur la transmutation, dans le cadre de son programme OMEGA, et procède actuellement à leur extension. Loin de se limiter au combustible RNR-MOX, les travaux englobent aujourd'hui des combustibles à base de nitrures et de nitrures-carbures, notamment.

Le projet IFR de l'ANL a évolué peu à peu vers la conception d'un prototype industriel de RNR refroidi au sodium, le réacteur PRISM, qui utiliserait du combustible métallique (UPuZr). Ce réacteur serait associé à des usines de retraitement pyrochimique pour recycler le combustible à base de transuraniens et éliminer les produits de fission. Des études de conception et des analyses des performances du cœur sont en cours. L'objectif est d'augmenter le taux d'incinération des transuraniens.

3.2.3.10 *Retraitement du combustible usé de RNR*

Il ne sera pas possible de réduire l'inventaire radiotoxique résultant du multirecyclage du combustible RNR-MOX ou RNR-métal que si on intègre au cycle du combustible avancé le multirecyclage du combustible RNR usé. Les combustibles RNR-MOX ou RNR-métal sont en effet irradiés à des taux très élevés.

On envisage aujourd'hui d'irradier le combustible dans les RNR à des taux doubles ou triples de ceux appliqués au MOX dans les REO. Ces taux s'échelonnaient de 120 à 180 GWj/t ML, voire plus ultérieurement. Or, malgré ces très hauts taux de combustion, le rendement de transmutation ou d'incinération reste assez faible.

Après une campagne d'irradiation prolongée, par exemple de cinq ans à un taux de combustion de 150 GWj/t ML, on n'a consommé que 15 à 20 pour cent de l'inventaire initial total des

transuraniens. Pour obtenir un taux de consommation total de 90 pour cent des transuraniens, il faudrait recycler le combustible utilisé de RNR de nombreuses fois.

En raison de la chaleur de décroissance, il n'est pas possible de retraiter le combustible utilisé des RNR immédiatement après son déchargement des réacteurs rapides, que ce soit par le procédé PUREX ou par un procédé d'extraction aqueux équivalent. Il faut, en effet, prévoir d'augmenter de 7 à 10 ans, voire à 12 ans, les temps de refroidissement entre le déchargement et le retraitement. Cela porte, par conséquent, la durée totale du cycle avancé à 15 ou 17 ans. On peut, par conséquent, considérer qu'il faudra attendre 100 à 250 ans avant d'obtenir un taux de consommation global de 90 pour cent.

Le retraitement pyrochimique du combustible utilisé des RNR a été mis au point dans le cadre du projet IFR. Dans ce cas, le combustible métallique irradié dans les RNR à des taux très élevés est transféré sur place à une cellule chaude pyrochimique pour y être retraité. Comme le bain de sels fondus (CdCl_2 , LiCl , KCl ...) n'est pas dégradé par le rayonnement α , il est possible d'envisager des temps de refroidissement beaucoup plus courts. Toutefois, cette technologie de retraitement, qui fait ses tout premiers pas, ne pourra parvenir à une maturité industrielle dans le secteur nucléaire civil qu'après d'importants travaux de recherche et de développement.

Ce procédé repose sur l'affinage électrolytique du combustible métallique utilisé à l'aide d'une anode, de cathodes, solide et liquide, en cadmium et d'un électrolyte à base de sels fondus ($\text{LiCl}+\text{KCl}$) porté à 500°C . Il s'agit ainsi de provoquer la dissolution pyrochimique du combustible utilisé débarrassé au préalable de sa gaine par des techniques mécaniques.

L'uranium pur (débarrassé du plutonium) est transporté par voie électrolytique à la cathode solide en cadmium. Le mélange de plutonium et d'actinides mineurs contenant des traces d'uranium est transporté vers une seconde cathode en cadmium, liquide cette fois, et séparé de l'ensemble des produits de fission. La fraction plutonium plus actinides mineurs est recyclée sous forme métallique et fondue dans les nouvelles aiguilles combustibles.

Le CRIEPI, au Japon, met au point des procédés pyrochimiques analogues qui pourraient, à la longue, venir remplacer le procédé de retraitement par voie aqueuse (PUREX) pour des combustibles nitrures ou métalliques de RNR fortement irradiés.

Le principal intérêt des procédés de retraitement pyrochimiques tient au fait qu'ils sont insensibles au taux d'irradiation du combustible et peu sujets aux excursions de criticité pendant les opérations. En abaissant à 6 ou 7 ans la durée du cycle avancé, on diminue de moitié le temps nécessaire pour obtenir le même taux de consommation qu'avec un cycle avancé utilisant le procédé de retraitement par voie aqueuse. Toutefois, avant que ce type de procédé pyrochimique puisse être sérieusement envisagé pour retraiter le combustible métallique de RNR, il faudra avoir trouvé des solutions réellement convaincantes aux principaux problèmes en suspens : la corrosion, le degré de séparation des transuraniens et la manutention des déchets et des cibles irradiées.

3.2.3.11 Transmutation des produits de fission à vie longue

Il est extrêmement difficile de transmuter les produits de fission à vie longue parce que leurs sections efficaces de capture, sur lesquelles repose la transmutation des nucléides radioactifs en nucléides à vie courte ou stables, sont très faibles. De ce fait, si l'on veut parvenir à un taux de transformation important, il faut prévoir des périodes d'irradiation très longues. La seule solution, pour

réussir cette entreprise très onéreuse, consistera donc à recourir à des réacteurs dédiés à hauts flux de neutrons thermiques et/ou à des systèmes hybrides dédiés.

Du point de vue de la technologie des réacteurs, l'option la plus facile à réaliser est la transmutation du technétium-99 (^{99}Tc), au cours de laquelle la cible de technétium métal se transforme en ^{100}Ru métallique, un isotope stable du ruthénium. Cependant, la section efficace de la réaction (n- γ) pour les neutrons thermiques n'est que de 20 barns (voir 3.2.3.2), donc faible pour la transmutation. La « période » de transmutation, c'est-à-dire le temps nécessaire pour consommer la moitié de la cible varie d'un réacteur thermique à l'autre, mais, dans le meilleur des cas, atteindrait près de 30 ans. La production simultanée de ^{99}Tc par fission dans le combustible nourricier REO- UO_2 fait baisser le taux de transmutation net et nécessite un chargement important en technétium. Le réacteur doit donc être spécifiquement conçu à cette fin. Il faut aussi prévoir de surenrichir le combustible afin de compenser les pertes dues à la réactivité négative des cibles de technétium dans les assemblages combustibles. Par ailleurs, à l'issue de ces longues périodes de transmutation, les structures en acier des assemblages contenant des produits de fission à vie longue irradiés seront si endommagées sous l'effet des rayonnements que les assemblages devront être retraités.

Neutroniquement parlant, la transmutation de ^{129}I est très proche de celle du ^{99}Tc . Mais le procédé présente beaucoup plus de difficultés d'ordre chimique et métallurgique, étant donné que la cible est chimiquement instable et que le produit de la réaction de capture des neutrons est un gaz rare, le ^{130}Xe , qu'il faut évacuer de la capsule d'irradiation pendant son séjour en réacteur. Toute excursion de température provoquerait en effet le relâchement de ^{129}I avec les effluents du réacteur.

Les systèmes hybrides caractérisés par des flux de neutrons thermiques extrêmement forts (10^{16} n/cm²/s) devraient en principe permettre de raccourcir la période de transmutation. Cette technologie fait actuellement l'objet d'études théoriques. Quoi qu'il en soit, toutes les formes de transmutation par neutrons thermiques coûteront très cher en énergie.

À moins de les séparer des autres isotopes du zirconium et du césium avant de les irradier, les radionucléides ^{93}Zr et ^{135}Cs ne se prêtent pas à la transmutation en réacteur.

Il n'a pas encore été envisagé de transmuter le ^{14}C dans un scénario de séparation-transmutation. Théoriquement, il serait possible de le récupérer, dans les effluents gazeux du retraitement, une partie du ^{14}C provenant du combustible utilisé (environ 50 pour cent). Cependant, on connaît encore trop mal le comportement chimique de cet isotope dans un dissolvant pour pouvoir améliorer ce rendement. Une fois transformé en cible solide, par exemple du carbonate de baryum (BaCO_3), cet isotope pourrait être stocké indéfiniment. La section efficace de capture des neutrons thermiques du ^{14}C est proche de zéro. En théorie, on pourrait, dans certains cas, transmuter le ^{14}C à l'aide de particules chargées dans des accélérateurs de haute énergie, mais l'on est en droit de s'interroger sur les possibilités de réalisation et l'intérêt économique de ce type de démarche.

3.2.3.12 Rôle de la séparation-transmutation dans les cycles du combustible avancé

La voie de la séparation-transmutation, intégrée au cycle du combustible avancé comme nous venons de le décrire, représente la démarche la plus complète que l'on puisse proposer et constitue un élargissement important des activités du cycle du combustible par rapport au cycle avec retraitement et, a fortiori, au cycle ouvert.

On peut considérer des opérations de séparation aussi comme une série de procédés isolés, appliqués après un retraitement standard, qui permettraient d'atténuer la radiotoxicité des déchets stockés et d'améliorer les techniques de conditionnement. Cependant, dans ce rapport, nous avons surtout envisagé la séparation comme une étape préalable à la transmutation.

4. ANALYSE CRITIQUE

- Dans l'industrie du cycle du combustible nucléaire de demain, la séparation et la transmutation pourraient soit s'ajouter aux activités du cycle tel que nous connaissons aujourd'hui, soit en remplacer quelques parties.
- La séparation et la transmutation ne peuvent être envisagés sans cycle du combustible classique ou avancé. Toutefois, pendant la phase de recherche et de développement, tous les pays intéressés par l'évolution du cycle du combustible ou la gestion des déchets peuvent participer à l'effort international.
- Toute stratégie de séparation et de transmutation devrait tendre vers l'élimination progressive des radionucléides à vie longue des flux de déchets, dont le mode de stockage reste à décider. Toutefois, la réduction de l'inventaire radiotoxique des déchets que cette solution apporte s'opère au prix d'une légère augmentation de l'inventaire radiotoxique des cœurs de réacteurs et des installations du cycle du combustible, sauf si l'on établit une stratégie exhaustive pour l'incinération des actinides faisant appel, par exemple, à la transmutation dans des réacteurs hybrides.
- Dans un programme nucléaire à long terme, il est possible de passer progressivement du combustible REO- UO_2 au combustible REO-MOX pour ensuite introduire les RNR dans le parc électronucléaire ainsi que les systèmes hybrides.
- La séparation des actinides mineurs est une étape supplémentaire au recyclage de l'uranium et du plutonium dans le combustible MOX et suppose la conception et la construction de nouvelles installations industrielles. À l'heure actuelle, la séparation n'a pas dépassé le stade du développement en laboratoire et en cellules chaudes.
- La séparation ne se conçoit que dans une perspective à long terme. Elle exige des installations de traitement des déchets liquides de haute activité de conception nouvelle ou un cycle d'extraction PUREX avancé qui permettrait de séparer directement tous les radionucléides à vie longue.
- La séparation des actinides mineurs des déchets liquides de haute activité permet de réduire l'inventaire radiotoxique à long terme des déchets de haute activité vitrifiés et, à ce titre, peut améliorer la perception du danger que présentent le stockage des déchets à vie longue. En fait, elle ne modifie pas les caractéristiques techniques des déchets. Les produits de fission (^{137}Cs et ^{90}Sr) déterminent à court terme la quantité de la chaleur produite dans les déchets de haute activité, et la faible solubilité des transuraniens conditionne leur taux de lixiviation et, partant, leur impact radiologique à long terme.
- La séparation des actinides mineurs (Np, Am, Cm) et de certains produits de fission (Cs, Sr, Tc, etc.) multiplie les possibilités d'améliorer le conditionnement des radionucléides à vie longue en fonction des nucléides. La meilleure stabilité thermodynamique des nouveaux colis de déchets

devrait en principe ouvrir de nouvelles perspectives pour le stockage ou la mise en dépôt à long terme des transuraniens par rapport à la vitrification, qui a été spécifiquement conçue pour des mélanges complexes d'actinides mineurs et de produits de fission. On ne saurait trop recommander de poursuivre les recherches sur les méthodes et technologies de séparation si l'on veut disposer de la base technique la plus large possible pour procéder à une évaluation de cette option.

- La transmutation est un terme général qui englobe « l'incinération » d'un nucléide, c'est-à-dire sa transformation en produits de fission, et sa transformation par capture neutronique en un autre radionucléide ou en un isotope stable. La mise au point de cette technologie pourrait avoir d'importantes retombées sur d'autres programmes nucléaires.
- Certaines réactions de transmutation produisent une majorité de nucléides non radioactifs, d'autres une diversité de radionucléides de périodes très variables. Les nucléides ainsi obtenus doivent avoir une période plus courte que celle de la cible ou une radiotoxicité plus faible, voire, dans certains cas, provoquer la production d'un autre nucléide père ayant un impact radiologique moindre.
- Dans un premier temps, la transmutation des actinides mineurs ne se solde pas nécessairement par une réduction de l'inventaire radiotoxique à court terme.
- Dans les réacteurs thermiques, la transmutation s'opère en général par capture neutronique. Le recyclage de quantités industrielles d'actinides mineurs exige de surenrichir le combustible, ce qui a pour effet d'augmenter les coûts de la production nucléaire. Cependant, le recyclage hétérogène des actinides mineurs dans des REO brûlant du MOX pourrait être une solution viable dans la mesure où l'on dispose d'excédents de plutonium permettant de compenser la réactivité négative provoquée par la présence d'actinides mineurs. Cependant, avec ce mode de transmutation, la radiotoxicité globale des matières fissiles et fertiles ne diminue pas de façon significative sur l'ensemble du cycle du combustible.
- Dans les réacteurs à neutrons rapides, la transmutation des actinides mineurs permet de réduire la radiotoxicité dans la mesure où tous les actinides mineurs sont plus ou moins fissiles. Le rendement d'incinération augmente avec l'énergie moyenne des neutrons. Cependant, la sûreté des réacteurs impose une limite aux quantités acceptables d'actinides mineurs et aux rendements de fission et de transmutation résultants. Le potentiel énergétique théorique des actinides mineurs représente à peu près 10 pour cent de celui du plutonium produit dans le combustible UO_2 . Pour la transmutation des actinides mineurs, les systèmes à spectre neutronique rapide (RNR, systèmes hybrides) sont plus prometteurs que les REO.
- Il a été envisagé de séparer et de transmuter certains produits de fission à vie longue, dont les plus souvent cités sont l' ^{129}I , le ^{135}Cs , le ^{99}Tc et le ^{93}Zr .
- La séparation de certains produits de fission est déjà une réalité industrielle : l'iode est extrait des solutions de combustible usé par barbotage, lavage et traitement séparé avant d'être rejeté dans les océans (pratique interdite dans certains pays). Au cas où il paraîtrait difficile de rejeter encore longtemps l' ^{129}I dans les océans, il faudrait réexaminer les possibilités de le récupérer, de le conditionner et éventuellement de le transmuter. Il est impossible de transmuter le ^{135}Cs et le ^{93}Zr sans procéder au préalable à une séparation isotopique.
- Les principes théoriques de la séparation du technétium sont connus, mais n'ont jamais été mis en pratique. Il est possible de transmuter le ^{99}Tc dans des réacteurs thermiques et dans des régions

thermalisées de réacteurs rapides. Toutefois, dans un spectre de neutrons thermiques, la période de transmutation est assez longue (de 15 à 77 ans). De ce fait, à moins que l'on ne parvienne à produire des neutrons à un coût marginal dans des installations nucléaires (systèmes hybrides), cette solution ne devrait pas avoir la priorité des travaux de R-D.

5. CONCLUSIONS GÉNÉRALES

- La mise en œuvre de la séparation et de la transmutation passe par des recherches fondamentales de longue haleine et exige des investissements lourds dans des systèmes dédiés produisant des spectres de neutrons rapides (RNR, systèmes hybrides en complément ou à la place des REO exploités) ainsi que la mise au point de nouvelles étapes retraitement et la construction d'usines de fabrication de combustibles et de cibles équipées de télémanipulateurs.
- Les installations de séparation des actinides mineurs et de certains produits de fission à vie longue pourraient être conçues pour être intégrées aux usines de retraitement existantes.
- Des méthodes de séparation des éléments radiotoxiques à vie longue ont été mises au point en laboratoire. Cependant, il reste encore beaucoup à faire pour perfectionner la technologie, passer à l'échelle supérieure, et ainsi la rendre compatible avec les pratiques de retraitement industrielles.
- Dans le court terme, la séparation réduirait l'inventaire radiotoxique à long terme des déchets de haute activité à stocker au prix d'une augmentation des contraintes d'exploitation des installations nucléaires concernées.
- Pour le recyclage et la transmutation des radionucléides à vie longue, les systèmes à spectres neutroniques rapides (RNR dédiés ou systèmes hybrides) sont plus efficaces que les REO de conception actuelle. En tant qu'incinérateurs d'actinides et de certains produits de fission contenus dans le combustible usé REO-MOX ou RNR-MOX, les systèmes hybrides pourraient largement contribuer à réduire l'inventaire radiotoxique à long terme des déchets.
- Avec le recyclage du plutonium et des actinides mineurs, l'inventaire en transuraniens d'un parc électronucléaire pourrait être stabilisé. Le multirecyclage des transuraniens est une entreprise à long terme qui ne permet d'atteindre l'équilibre qu'au bout de plusieurs décennies.
- Au cours des prochaines décennies, on peut envisager de conditionner les nucléides à vie longue séparés dans des matrices adaptées qui soient beaucoup moins solubles que le verre dans les milieux géologiques ou qui puissent servir de matrices d'irradiation au cas où la transmutation serait adoptée ultérieurement.
- La séparation et la transmutation ne sauraient en aucun cas se substituer à l'enfouissement en formation géologique des déchets radioactifs à vie longue, des concentrés de transuraniens irradiés et des combustibles usés résiduels provenant d'un parc de réacteurs composite.

RÉFÉRENCES

- [1] *Proceedings: Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation*, Mito, Japon, 6-8 nov. (1990), rapport OCDE-AEN.
- [2] *Proceedings: Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation*, Argonne National Laboratory, Argonne, Ill., États-Unis, 11-13 nov. (1992), rapport OCDE-AEN : P&T n° 7.
- [3] *Proceedings: Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation*, CEA-CADARACHE, France, 12-14 déc. (1994), rapport OCDE-AEN : P&T n° 13.
- [4] *Proceedings: Fourth Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation*, Mito, Japon, 11-13 sept. (1996), rapport OCDE-AEN (1997).
- [5] *Proceedings: Fifth Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation*, Mol, Belgique, 25-27 nov. (1998), rapport OCDE-AEN (1999).
- [6] *Assessment Studies on Nuclear Transmutation of Byproduct Actinide*, Rapport final, Commission des Communautés européennes, CCR, Ispra, SA/ 1-05-03-83-13, (1983).
- [7] Croff, A.C., Blomeke, J.O., *Actinide Partitioning-Transmutation Program*, Rapport final, ORNL 5566 (1980).
- [8] Conseil supérieur de la sûreté et de l'information nucléaires, *Rapport de la Commission CASTAING, Rapport du Groupe de travail sur la gestion des combustibles irradiés*, Paris, déc. 1981-nov. 1982.
- [9] Ramspott, L.D., *et al.*, Impacts of New Developments in Partitioning and Transmutation on the Geological Disposal of High Level Waste in Mined Geologic Repositories, UCRL-ID-109203 (mars 1992).
- [10] Safety and Environmental Aspects of Partitioning and Transmutation of Actinides and Fission Products, *Proc. Techn. Committee Meeting*, 29 nov.-2 déc. 1993, IAEA-TECDOC-783, (1995).
- [11] Nuclear Wastes : Technologies for Separation and Transmutation (STATS Committee), National Research Council, National Academy of Sciences, Washington D.C., États-Unis (1995).
- [12] La gestion du plutonium séparé : les options techniques, OCDE-AEN, Paris (1997).
- [13] Le combustible au plutonium – Une évaluation, OCDE-AEN, Paris (1989).