DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

Direction de l'énergie nucléaire

02 SÉPARATION-TRANSMUTATION DES ÉLÉMENTS RADIOACTIFS À VIE LONGUE

DÉCEMBRE 2012

LOI DU 28 JUIN 2006 RELATIVE À LA GESTION DURABLE DES MATIÈRES ET DES DÉCHETS RADIOACTIFS : BILAN DES RECHERCHES CONDUITES SUR LA SÉPARATION-TRANSMUTATION DES ÉLÉMENTS RADIOACTIFS À VIE LONGUE ET SUR LE DÉVELOPPEMENT DE RÉACTEURS NUCLÉAIRES DE NOUVELLE GÉNÉRATION

02 SÉPARATION-TRANSMUTATION DES ÉLÉMENTS RADIOACTIFS À VIE LONGUE

SOMMAIRE

1. INTRODUCTION 5

1.1. La gestion durable des déchets radioactifs de haute activité à vie longue 5
1.2. Les éléments cibles d'une stratégie de séparation-transmutation 5
1.3. Les actinides mineurs : propriétés et formation 7
1.4. Les différentes options pour la séparation-transmutation des actinides mineurs 9
1.4.1. Les options de séparation 9
1.4.2. Les options de transmutation 10

2. AVANCÉES TECHNIQUE SUR LA SÉPARATION DES ACTINIDES MINEURS 13

2.1. Les procédés hydrométallurgiques 13
2.1.1. Démarche générale de la recherche 13
2.1.2. Rappel de la problématique technique 14
2.1.3. Avancées techniques sur la séparation séquentielle des actinides mineurs 15
2.1.4. Avancées techniques sur la séparation groupée des actinides mineurs 18
2.1.5. Avancées techniques sur la séparation spécifique des actinides mineurs 20
2.1.6. Consolidation des procédés 21
2.1.7. Conclusion sur le développement des procédés hydrométallurgiques pour la séparation des actinides mineurs 23
2.2. Les procédés pyrochimiques 25

3. AVANCÉES TECHNIQUES SUR LA TRANSMUTATION DES ACTINIDES MINEURS 27

3.1. Rappel de la physique de la transmutation 27
3.2. Résultats et enseignements des expériences de transmutation 31
3.2.1. Mode homogène 31
3.2.2. Mode hétérogène 32
3.2.3. Transmutation en ADS 34
3.3. Résultats des recherches sur la fabrication des combustibles 35
3.3.1. Les procédés de conversion en oxyde 35
3.3.2. Les procédés de fabrication des pastilles d'oxyde d'actinides 36
3.3.3. Les technologies de fabrication de combustibles porteurs d'actinides mineurs 37

4. LE DÉVELOPPEMENT DES OUTILS DE TRANSMUTATION 39

4.1. Les capacités comparées de transmutation des différents systèmes 39
4.2. Le développement des RNR électrogènes 40
4.3. Le développement des ADS 41
4.3.1. Démonstration expérimentale du concept ADS 41
4.3.2. Les accélérateurs pour les ADS 43
4.3.3. Matériaux pour la spallation, expérience Megapie 44
4.3.4. Etudes de concepts de forte puissance 44
4.3.5. Conclusion des études de développement des ADS 45

5. ÉTUDES TECHNICO-ÉCONOMIQUES DE LA SÉPARATION-TRANSMUTATION ... 47

5.1. Objectifs et méthodologie des études technico-économiques 47
5.1.1. Rappel du cadre des études technico-économiques 47
5.1.2. Les scénarios étudiés 48
5.1.3. Les critères d'évaluation 51
5.2. Les résultats des scénarios 51
5.2.1. Les inventaires 51
5.2.2. Impact sur la gestion des déchets 54
5.2.3. Impact sur les installations du cycle 62
5.2.4. Impact sur l'économie 66
5.2.5. Autres critères 70
5.3. Les scénarios dits « de fin de vie » (ou de « phase-out ») 71
5.3.1. Scénarios de principe 73
5.3.2. Scénarios utilisant le seul parc existant 73
5.3.3. Conclusion des scénarios de fin de vie 74

6. CONCLUSION 77

Annexe 1 : La transmutation des PFVL 79
Annexe 2 : Problématique du curium dans le cycle 81
Annexe 3 : Glossaire des principales molécules organiques utilisées dans les procédés de séparation 84
Références 85

1. INTRODUCTION 5
1.1. La gestion durable des déchets radioactifs de haute activité à vie longue 5
1.2. Les éléments cibles d'une stratégie de séparation-transmutation 5
1.3. Les actinides mineurs : propriétés et formation 7
1.4. Les différentes options pour la séparation-transmutation des actinides mineurs 9
1.4.1. Les options de séparation 9
1.4.2. Les options de transmutation 10

1. INTRODUCTION

1.1. LA GESTION DURABLE DES DÉCHETS RADIOACTIFS DE HAUTE ACTIVITÉ À VIE LONGUE

Que ce soient les combustibles usés eux-mêmes ou les déchets issus de leur traitement, les déchets nucléaires ultimes présentent, à défaut de mesures de protection appropriées, des risques radiologiques élevés pour l'homme et l'environnement, dont une partie perdurera pendant des milliers de siècles en raison de la présence d'actinides et de quelques produits de fission ou d'activation à vie longue dans leurs inventaires.

Un conditionnement approprié et le stockage de ces déchets dans des formations géologiques profondes représentent la solution définitive privilégiée par la plupart des pays ayant engagé un programme nucléaire. Le principe en est simple : il s'agit de placer les déchets dans une couche géologique stable, de préférence très peu perméable dans laquelle l'eau ne circule pas ou circule très lentement, de sorte à constituer, à elle seule, une barrière efficace sur de très longues durées. Par ailleurs, en plaçant ce stockage à une profondeur significative dans le sous-sol (plusieurs centaines de mètres), on le met à l'abri des perturbations pouvant survenir en surface ; on s'affranchit ainsi des effets liés aux changements climatiques et on réduit très fortement les risques d'intrusion humaine.

En France, grâce aux travaux menés par l'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (Andra), notamment dans son laboratoire souterrain en milieu argileux de Bure, et plus généralement grâce à la recherche de haut niveau menée par les différents organismes scientifiques associés à ces travaux, la faisabilité scientifique et technique d'un stockage dans ce milieu géologique est désormais acquise. C'est en 2015, ainsi que la loi le prévoit, que pourrait être prise la décision d'une telle réalisation.

En effet, la couche géologique argileuse du Callovo-Oxfordien du site de Meuse/Haute-Marne réunit des propriétés très intéressantes, conformes à ce qui était recherché, notamment :

- une grande stabilité géologique et une absence de fractures qui auraient pu réduire ses propriétés de confinement à long terme ;
- des caractéristiques mécaniques et thermiques favorables, facilitant le creusement des galeries et l'évacuation de la chaleur des colis de déchets ;
- une très faible perméabilité du milieu assurant une très faible mobilité de l'eau et des éléments dissous ;
- de faibles coefficients de diffusion, des capacités de rétention importantes ainsi qu'un environnement chimique limitant la migration des éléments radioactifs, qui seront inévitablement relâchés des colis de déchets à long terme.

Qu'il s'agisse des déchets produits lors du traitement des combustibles usés ou des combustibles usés eux-mêmes, l'Andra a pu concevoir des architectures de stockage adaptées et démontrer, au vu des connaissances acquises et en retenant en toutes circonstances des hypothèses particulièrement prudentes, que les conséquences pour l'homme et l'environnement sont conformes aux normes et recommandations de radioprotection en vigueur. L'exigence de réversibilité pour une durée au moins d'un siècle, étroitement liée à l'application du principe de précaution, a été placée au cœur de la démarche d'étude.

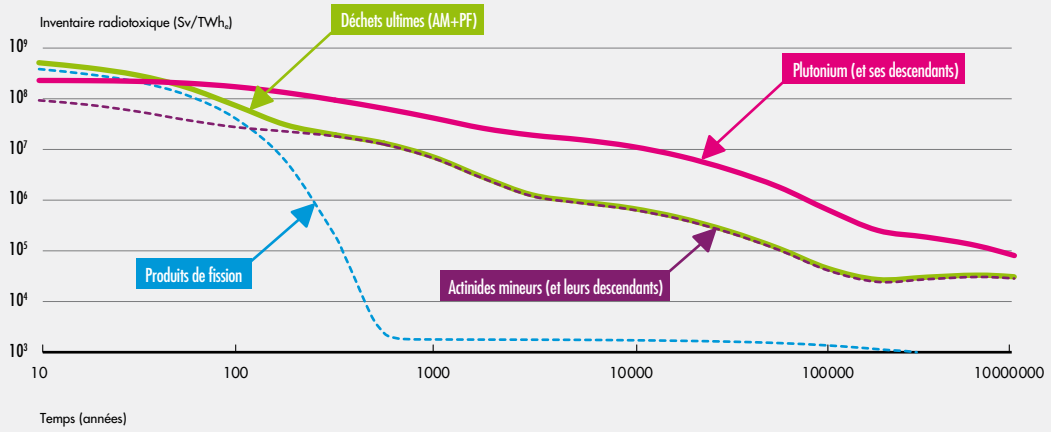
C'est pourquoi, suite aux recommandations émises par l'Office parlementaire d'évaluation des choix scientifiques et technologiques (OPECST), la loi de programme du 28 juin 2006 relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs, a pris une décision de principe sur le recours au stockage réversible en formation géologique profonde et a fixé un calendrier de réalisation d'un tel ouvrage.

Pour autant, la loi n'a pas écarté les deux autres axes de recherche initiées par la loi du 30 décembre 1991 sur la gestion des déchets radioactifs. Au contraire, elle a souligné le caractère complémentaire des trois axes (séparation et transmutation des éléments radioactifs à vie longue, stockage réversible en couche géologique profonde, entreposage) pour optimiser la gestion des déchets radioactifs. Ainsi, prenant acte des résultats substantiels déjà acquis, la loi de 2006 s'est clairement prononcée sur une poursuite des recherches et études menées dans ces domaines. Concernant la séparation et la transmutation des éléments radioactifs à vie longue, elle a précisé que « les études et recherches correspondantes étaient conduites en relation avec celles menées sur les nouvelles générations de réacteurs nucléaires […] ainsi que sur les réacteurs pilotés par accélérateur dédiés à la transmutation des déchets, afin de disposer, en 2012, d'une évaluation des perspectives industrielles de ces filières et de mettre en exploitation un prototype d'installation avant le 31 décembre 2020 ».

1.2. LES ÉLÉMENTS CIBLES D'UNE STRATÉGIE DE SÉPARATION-TRANSMUTATION

Inscrite comme l'un des trois axes de recherche prescrits par la loi du 30 décembre 1991, la séparation-transmutation a pour objectif de réduire significativement la quantité d'éléments radioactifs à vie longue dans les déchets ultimes pour en faciliter la gestion.

FIGURE 1 : ÉVOLUTION DANS LE TEMPS DE L'INVENTAIRE DE RADIOTOXICITÉ PAR INGESTION DES DIFFÉRENTS COMPOSANTS D'UN COMBUSTIBLE USÉ (UOX 45 GWj/t)



La question s'est donc posée de savoir en quoi cette option pouvait constituer une réelle amélioration dans la gestion globale des déchets. Pour y répondre, il est d'abord nécessaire de disposer de critères permettant de quantifier le « pouvoir de nuisance » des matières radioactives présentes dans les déchets. On se trouve en effet en présence de nombreux radionucléides pour lesquels la quantité, la radioactivité, la nature du rayonnement émis ou les conséquences sur l'organisme humain peuvent être très diverses.

L'une des façons d'apprécier le « pouvoir de nuisance » d'une quantité donnée de déchets, est d'utiliser la notion d'inventaire de radiotoxicité, qui correspond à la dose hypothétique que recevrait un ensemble d'individus qui aurait ingéré la totalité de la matière radioactive considérée. Il s'agit évidemment d'une notion purement théorique mais qui constitue une caractéristique de la nocivité intrinsèque des déchets radioactifs et qui permet de comparer les scénarios entre eux.

La Figure 1 représente l'inventaire de radiotoxicité par ingestion de différents composants d'un combustible usé de type UOX. Passée la période séculaire initiale correspondant à la décroissance des radionucléides à vie courte, on met en évidence deux contributeurs essentiels à cet inventaire : le plutonium et les actinides mineurs.

Les opérations de traitement des combustibles usés permettent de récupérer le plutonium, premier responsable de la radiotoxicité à long terme, et de le recycler en réacteur afin d'en maîtriser l'inventaire et d'utiliser son haut potentiel énergétique. Il n'entre donc pas dans la composition des déchets ultimes que l'on doit gérer sur le long terme. On peut ainsi dire que le traitement des combustibles usés et le monorecyclage du plutonium, tels que pratiqués actuellement en France, constituent le premier stade d'une « transmutation » du plutonium.

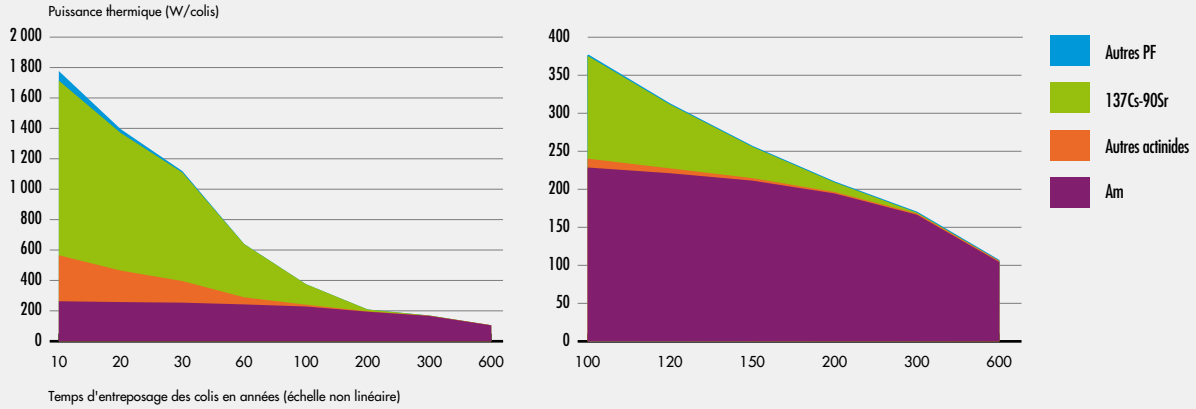
Si l'on s'en tient aux déchets ultimes actuels, on constate que la composante « actinides mineurs » (neptunium, américium et curium) représente la quasi-totalité de l'inventaire de radiotoxicité à moyen et long termes. Les actinides mineurs constituent donc, selon ce critère[1], la première cible d'une stratégie de séparation-transmutation. Néanmoins celle-ci n'a de sens qu'en accompagnement d'une stratégie de recyclage du plutonium, qui doit constituer le dénominateur commun de toutes les options de séparation-transmutation d'actinides mineurs.

Au bout de quelques siècles, la composante représentée par les produits de fission (ou d'activation) à vie longue, apparaît faible du point de vue de l'inventaire de radiotoxicité et l'on pourrait en déduire que la séparation-transmutation ne serait d'aucune utilité pour ces derniers. Cette conclusion doit être tempérée par le fait que certains d'entre eux sont plus mobiles dans l'argile que les actinides et donc susceptibles de migrer au travers de cette barrière de confinement et sont à l'origine du faible impact radiologique calculé pour le stockage géologique. Quelques éléments (notamment l'iode), présentant à la fois un isotope radioactif à vie très longue et relativement abondant ainsi que des propriétés chimiques les rendant potentiellement plus mobiles que les autres éléments, ont, un temps, été ajoutés comme cibles potentielles de cette stratégie. Néanmoins, les études ont montré que leur séparation ou leur transmutation (parfois les deux) était très difficile voire impossible (cf. Annexe 1 : La transmutation des PFVL). Aussi, l'étude de cette option n'a pas été poursuivie au-delà du champ de la loi de 1991.

Un autre critère, qui peut être considéré, est la puissance thermique résiduelle des colis de haute activité (HA) issus du traitement des combustibles usés. Pour limiter l'élévation de la température des colis et du milieu géologique, il est nécessaire d'entreposer préalablement les colis pendant au moins 60 ans afin de laisser décroître leur puissance thermique ; il faut également espacer suffisamment les colis dans le stockage pour éviter des charges thermiques localement trop élevées et donc utiliser la ressource stockage dans des conditions qui ne sont sans doute pas optimales.

1 – D'autres critères peuvent conduire à une conclusion différente : c'est par exemple le cas de la dose radiologique à l'exutoire du stockage. Les actinides mineurs n'étant pas mobiles dans le concept de stockage retenu en France, ils ne contribuent pas à cette dose.

FIGURE 2 : PUISSANCE THERMIQUE RÉSIDUELLE DES COLIS HA PRODUITS PAR LE TRAITEMENT DE COMBUSTIBLES UOX (85 %) + MOX (15 %) (TEMPS DE REFROIDISSEMENT UOX : 5 ANS – MOX : 30 ANS)
La figure de droite est la reproduction agrandie des données de la figure de gauche en se limitant aux temps supérieurs à 100 ans



Comme le montre la Figure 2, la puissance thermique des colis HA comporte une composante liée essentiellement aux produits de fission ayant une contribution significative pendant 100-120 ans. Au-delà, la puissance thermique résiduelle des colis HA est essentiellement due à l'américium, qui constitue un talon thermique décroissant beaucoup plus lentement. De ce fait, à puissance thermique initiale donnée, l'américium est un plus grand consommateur d'espace de stockage que les radionucléides de période plus courte.

Aussi, l'association de la transmutation des actinides mineurs, et en particulier de l'américium, et d'une durée d'entreposage suffisante pour laisser décroître la puissance émise par les radionucléides de durée de vie moindre, offre, dans son principe, une possibilité de réduire l'emprise souterraine d'un site de stockage géologique des déchets, dans l'objectif d'optimiser l'utilisation de la «ressource précieuse» que constitue un site de stockage de la qualité de celui qui est actuellement envisagé.

Le choix de transmuter un radionucléide donné devra mettre en balance les avantages et inconvénients que cela entraîne en fonction de critères de diverses natures (techniques, radiologiques, économiques…).

1.3. LES ACTINIDES MINEURS : PROPRIÉTÉS ET FORMATION

Pendant son passage dans un réacteur, le combustible nucléaire subit des transformations importantes, conséquences des réactions nucléaires qui s'y produisent. Ces réactions sont essentiellement de deux sortes[2] :

- Les réactions de fission conduisent à la formation de produits de fission, contrepartie attendue de la production d'énergie. Ce sont au départ des nucléides très radioactifs, mais la majorité d'entre eux évolue rapidement vers des noyaux stables. Seuls 7 % en masse sont des éléments à vie longue[3].
- Les réactions de capture neutronique au sein du combustible conduisent à des transformations vers des éléments plus lourds ; il se forme ainsi des éléments transuraniens : le premier d'entre eux est le plutonium, formé par capture neutronique sur l'^{238}U, généralement présent en large quantité dans les combustibles. D'autres réactions de capture neutronique amènent à former des actinides mineurs (neptunium, américium et curium), à un niveau environ 10 fois moindre que le plutonium. Tous ces radionucléides sont des isotopes à vie longue, voire très longue ou en sont des précurseurs. Le Tableau 1 rassemble leurs principales propriétés.

La formation des actinides mineurs, nommés AM dans tout ce tome, diffère selon l'élément considéré :

- Le neptunium (^{237}Np) est formé à partir des isotopes de l'uranium, et en particulier de l'^{235}U. Le neptunium sera donc plus particulièrement présent dans les combustibles à uranium enrichi (cf. figure 3).
- L'américium qui comporte deux isotopes principaux (^{241}Am et ^{243}Am), est produit à partir des isotopes supérieurs du plutonium :
  – ^{241}Am provient de la décroissance radioactive du ^{241}Pu ;
  – ^{243}Am est formé par capture neutronique sur le ^{242}Pu.

On notera qu'à l'inverse de l'^{243}Am qui n'est formé qu'au cours de l'irradiation du combustible, l'^{241}Am continue à être produit durant la phase de refroidissement du combustible (la plus grande partie est même formée pendant cette phase). Le temps de refroidissement d'un combustible, c'est-à-dire la durée séparant la fin d'irradiation de son traitement, a une influence très importante sur les

2 – Pour plus de détails sur ces réactions nucléaires, se référer au chapitre 3.1 (Physique de la transmutation).

3 – Par convention : période radioactive égale ou supérieure à 30 ans.

TABLEAU 1 : PRINCIPALES PROPRIÉTÉS DES ISOTOPES DES ÉLÉMENTS TRANSURANIENS (PLUTONIUM ET ACTINIDES MINEURS)

	Isotopes	Période radioactive (ans)	Mode de désintégration	Descendant	Activité massique (Bq/g)	Puissance massique (W/g)	Émission neutrons FS (n/g.s)
Pu	^{238}Pu	87,7	α	^{234}U	$6,3\ 10^{11}$	0,57	$2,5\ 10^{3}$
	^{239}Pu	24 100	α	^{235}U	$2,3\ 10^{9}$	$1,9\ 10^{-3}$	
	^{240}Pu	6 560	α	^{236}U	$8,4\ 10^{9}$	$7,1\ 10^{-3}$	$9\ 10^{2}$
	^{241}Pu	14,4	β^-	^{241}Am	$3,8\ 10^{12}$	$3,3\ 10^{-3}$	
	^{242}Pu	$3,74\ 10^{5}$	α	^{238}U	$1,5\ 10^{8}$	$1,2\ 10^{-4}$	$1,7\ 10^{3}$
Np	^{237}Np	$2,14\ 10^{6}$	α	^{233}U via ^{233}Pa	$2,6\ 10^{7}$	$2,1\ 10^{-5}$	
Am	^{241}Am	433	α	^{237}Np	$1,3\ 10^{11}$	0,11	
	^{242m}Am	141	IT	^{242}Am	$3,9\ 10^{11}$	$4,5\ 10^{-3}$	
	^{242}Am	16 h	β^- (83 %) CE (17 %)	^{242}Cm ^{242}Pu	$3,0\ 10^{16}$	$9,5\ 10^{2}$	
	^{243}Am	7 370	α	^{239}Pu via ^{239}Np	$7,4\ 10^{9}$	$6,4\ 10^{-3}$	
Cm	^{242}Cm	0,45	α	^{238}Pu	$1,2\ 10^{14}$	$1,2\ 10^{2}$	$2\ 10^{7}$
	^{243}Cm	30	α	^{239}Pu	$1,8\ 10^{12}$	1,8	
	^{244}Cm	18,1	α	^{240}Pu	$3,0\ 10^{12}$	2,8	$1,2\ 10^{7}$
	^{245}Cm	8 500	α	^{241}Pu	$6,4\ 10^{9}$	$5,7\ 10^{-3}$	
	^{246}Cm	4 760	α	^{242}Pu	$1,1\ 10^{10}$	$1,0\ 10^{-2}$	$9\ 10^{6}$

FIGURE 3 : SCHÉMA DE FORMATION DU NEPTUNIUM

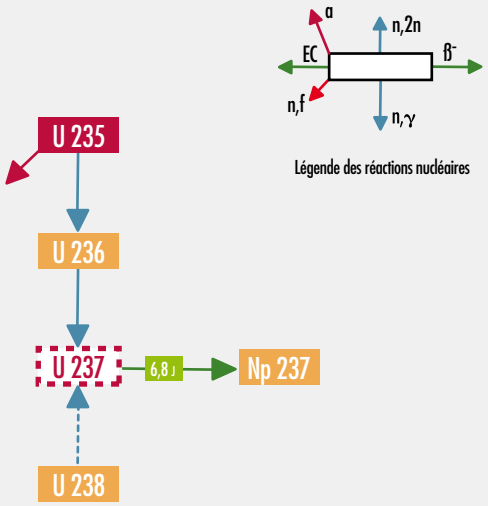
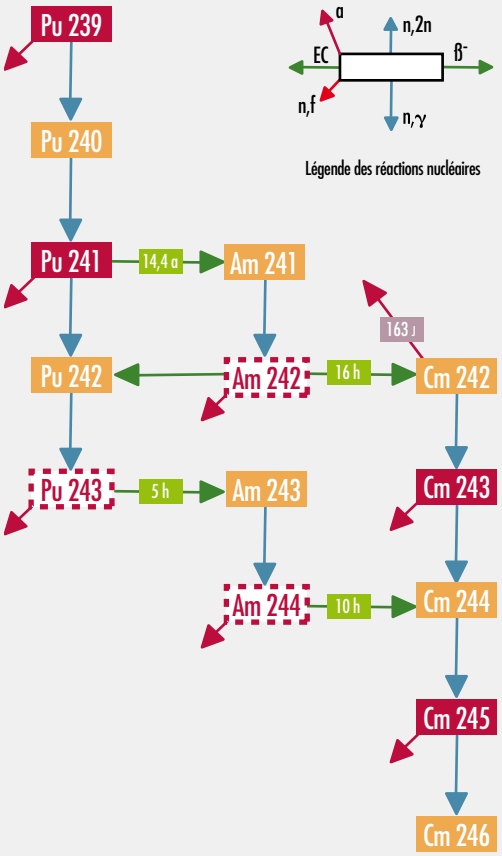


FIGURE 4 : SCHÉMA DE FORMATION DE L'AMÉRICIUM ET DU CURIUM



quantités de ^{241}Am présentes, comme le montre le tableau 2 ci-après.

- Les différents isotopes de curium sont produits à partir de captures neutroniques sur les isotopes de l'américium et principalement de l'^{243}Am qui donne naissance à la lignée ^{244}Cm, ^{245}Cm…

Outre le temps de refroidissement déjà mentionné, la nature des combustibles et les conditions d'irradiation seront des facteurs importants sur les quantités formées d'actinides mineurs. Le Tableau 3 détaille ces quantités pour trois principaux types de combustibles.

TABLEAU 2 : INFLUENCE DU TEMPS DE REFROIDISSEMENT SUR LA FORMATION DE ^{241}Am (MOX-REP 48 GWj/t)

TEMPS REFR.	0	1 an	5 ans	10 ans	30 ans	100 ans
Masse ^{241}Am (kg/TWhe)	2,85	4,2	8,9	13,6	23,8	27,2

TABLEAU 3 : QUANTITÉS D'AM FORMÉES DANS DIFFÉRENTS TYPES DE COMBUSTIBLES (TEMPS DE REFROIDISSEMENT : 5 ANS)

Isotopes	UOX -REP 46 GWj/t (g/TWhe)	MOX-REP 48 GWj/t (g/TWhe)	MOX-RNR 99 GWj/t (g/TWhe à l'équilibre)
^{237}Np	1700	390	460
Total Np	**1700**	**390**	**460**
^{241}Am	1160	8900	2900
^{243}Am	540	5100	680
Total Am	**1700**	**14000**	**3600**
^{244}Cm	190	2400	190
^{245}Cm	16	420	18
Total Cm	**210**	**2900**	**215**
Total AM	**3600**	**17000**	**4300**

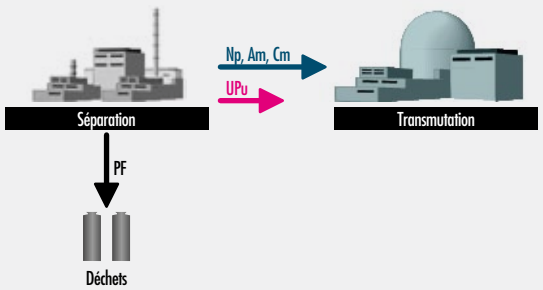
Comme déjà mentionné, le neptunium est plus particulièrement présent dans les combustibles enrichis en ^{235}U, tels que les combustibles UOX des réacteurs à eau. Il s'en forme relativement peu dans les combustibles au plutonium qu'ils soient irradiés en réacteur à eau sous pression (REP) ou en réacteur à neutrons rapides (RNR).
Comme attendu, puisque celui-ci est directement à l'origine de ces éléments, on constate que la formation d'américium et de curium est largement supérieure dans les combustibles au plutonium, et particulièrement dans les combustibles MOX-REP : elle correspond à environ 10 à 15 % du plutonium disparu dans un combustible MOX-REP mais seulement 3 à 6 % dans un combustible MOX-RNR (le complément de plutonium ayant fissionné). Cette formation relativement faible d'américium et de curium dans les spectres de neutrons rapides constitue, d'ailleurs, un avantage intrinsèque des RNR pour recycler le plutonium.

1.4. LES DIFFÉRENTES OPTIONS POUR LA SÉPARATION-TRANSMUTATION DES ACTINIDES MINEURS

1.4.1. LES OPTIONS DE SÉPARATION

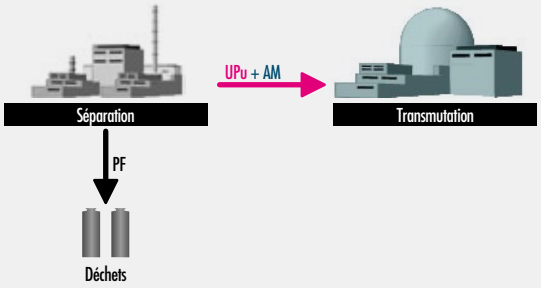
S'agissant de séparer, donc de mettre à profit certaines différences dans les propriétés chimiques ou physiques des éléments présents une fois en solution, la diversité des éléments concernés a été une source de complexité. Les éléments à séparer ne constituant pas un groupe homogène, les recherches se sont, dans un premier temps, focalisées sur la récupération des éléments par des procédés mis en œuvre de manière séquentielle, d'où le nom de « séparation séquentielle » donné à cette première stratégie (cf. figure 5A).

FIGURE 5A : SÉPARATION SÉQUENTIELLE



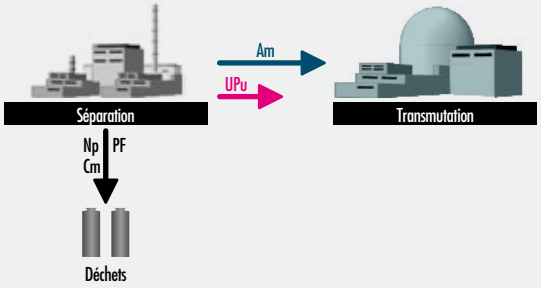
Une autre approche s'appuie sur le constat que le traitement des combustibles usés sépare les éléments en deux fractions, l'une qui va aux déchets et l'autre qui est recyclable, et considère cette dernière comme un tout. Dans cette logique, les actinides mineurs ne sont plus singularisés mais gérés en même temps que les actinides majeurs, et le plutonium en particulier. Ces procédés de recyclage en bloc des actinides portent le nom de « séparation groupée » (cf. figure 5B).

FIGURE 5B : SÉPARATION GROUPÉE



La troisième approche considère au contraire que les actinides mineurs ne constituent pas un ensemble monolithique et qu'il peut exister des raisons de les différencier vis-à-vis de la transmutation. Dans ce cas, la séparation doit se cantonner à l'extraction du ou des seul(s) élément(s) d'intérêt pour la transmutation et est alors dénommée « séparation spécifique » (cf. figure 5C).

FIGURE 5C : SÉPARATION SPÉCIFIQUE (DE L'AMÉRICIUM)



1.4.2. LES OPTIONS DE TRANSMUTATION

Pour les actinides, la transmutation fait intervenir deux types de réactions nucléaires concurrentes : les fissions, qui permettent de faire disparaître efficacement le noyau initial, et les captures d'un neutron qui amènent à générer des actinides de rang plus élevé et ne font généralement que déplacer le problème. Pour des raisons qui seront détaillées plus loin (voir chapitre 3.1), mais en particulier parce qu'ils privilégient les fissions, les neutrons de forte énergie (neutrons rapides) présentent des caractéristiques plus favorables que les neutrons thermiques (ceux que l'on rencontre dans les réacteurs des générations actuelles). C'est pourquoi, seuls les systèmes mettant en œuvre les neutrons rapides sont envisagés pour transmuter efficacement les actinides mineurs.

Les premières études de transmutation ont envisagé la possibilité de détruire les actinides mineurs en un seul passage en réacteur (aussi appelé « once-through » , cf. figure 6A). Pour ce faire, il était nécessaire d'atteindre un taux de fission élevé des actinides (au moins 90 %) puisque la part non transmutée était destinée aux déchets. Pour atteindre ces performances, il fallait soit laisser les cibles en cœur pendant des temps très longs, souvent incompatibles avec la durée de vie des assemblages, soit modifier localement le spectre des neutrons pour augmenter le taux de fission afin d'accélérer le processus. Pour ne pas affecter la performance de transmutation, il fallait aussi que l'irradiation de la matrice contenant les actinides mineurs n'entraîne pas la formation de nouveaux actinides, ce qui conduisait à proscrire l'utilisation d'uranium et à utiliser des matrices inertes d'un point de vue neutronique.

Hormis dans ces conditions particulières, difficiles à atteindre, la transmutation des actinides mineurs est un processus lent et l'obtention de performances élevées oblige à multirecycler les éléments considérés (cf. figure 6B). Les quantités d'actinides mineurs rejoignant les déchets ne sont alors plus constituées que des seules pertes provenant du traitement des combustibles usés. En contrepartie, les quantités présentes dans le cycle sont augmentées de manière notable.

Plusieurs modes de transmutation sont envisageables :

Une première option de transmutation consiste à associer cette dernière à la production d'électricité, de sorte à pouvoir bénéficier du surplus de neutrons produits dans le cœur des réacteurs électronucléaires pour transmuter les actinides. Néanmoins, l'ajout d'actinides mineurs dans le cœur d'un réacteur modifie son comportement neutronique et peut dégrader les caractéristiques de sûreté. Aussi doit-on respecter certaines contraintes dépendantes du mode de transmutation retenu.

Le mode de transmutation homogène consiste à diluer les actinides mineurs dans l'ensemble des combustibles du réacteur (cf. figure 7A). Comme il vient d'être dit, l'introduction d'actinides mineurs dans le cœur conduit à une évolution de certaines caractéristiques ayant une influence sur la sûreté du réacteur. Pour respecter les critères de sûreté des cœurs, la teneur en actinides mineurs des combustibles ne doit pas dépasser quelques pourcents, la valeur limite étant fonction des concepts de cœurs. Ce mode permet de bénéficier d'un niveau de flux neutronique élevé, ce qui constitue un élément favorable du point de vue de la cinétique de transmutation mais a l'inconvénient d'aligner nécessairement la durée d'irradiation des actinides mineurs sur celle de l'irradiation des combustibles. Par ailleurs, il répartit l'inventaire en actinides mineurs sur la totalité des combustibles et les contraintes qui en découlent s'appliquent donc à l'ensemble des installations du cycle du combustible, ce qui représente un lourd handicap industriel.

FIGURE 6A : TRANSMUTATION DES ACTINIDES MINEURS (AM) EN MONORECYCLAGE DANS DES CIBLES (ONCE THROUGH)

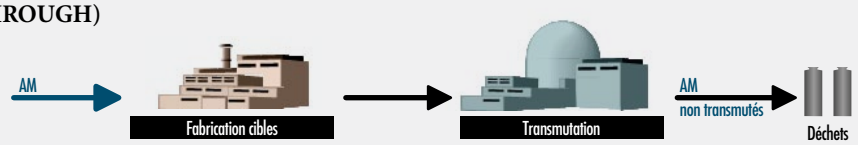


FIGURE 6B : TRANSMUTATION DES ACTINIDES MINEURS (AM) EN MULTIRECYCLAGE

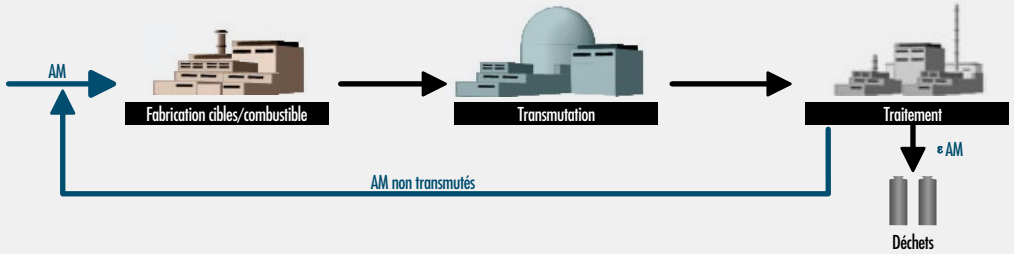


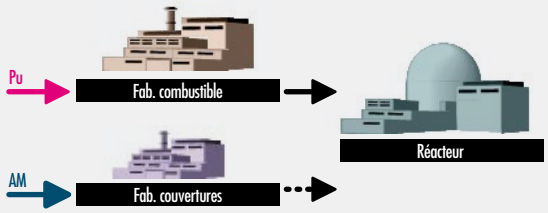
FIGURE 7A : MODE DE TRANSMUTATION HOMOGÈNE

Le mode de transmutation hétérogène vise à séparer physiquement les actinides mineurs du combustible proprement dit en les localisant dans des cibles ou des assemblages spécifiques limités en nombre et gérés de façon indépendante des assemblages standards. Plusieurs variantes ont été considérées :

- La première de ces variantes consiste à concentrer les actinides mineurs dans des cibles chargées dans des zones spécifiques du cœur, avec des teneurs nettement plus élevées que pour la transmutation homogène. En jouant sur le nombre, la teneur et la position de cibles, il est possible de minimiser leur impact sur la neutronique du cœur, sans toutefois réduire entièrement les perturbations apportées. Les cibles de transmutation «once-through», évoquées plus haut, s'inscrivaient dans cette première variante dont l'intérêt est aujourd'hui remis en question.
- Une seconde variante lui est maintenant préférée : elle consiste à placer les actinides mineurs dans des assemblages appelés «couvertures», disposés dans les zones périphériques du cœur, de telle sorte qu'ils n'affectent pas ou peu son fonctionnement et sa sûreté. L'option des couvertures chargées en actinides mineurs (CCAM), dans laquelle ceux-ci sont introduits à une teneur de l'ordre de 10 à 20 % dans une matrice d'oxyde d'uranium, présente l'intérêt de découpler la gestion des CCAM de celle des combustibles du cœur mais nécessite, par là-même, deux lignes de fabrication distinctes (cf. figure 7B). De plus, les couvertures qui sont soumises à un flux neutronique nettement moindre que les assemblages du cœur, doivent séjourner plus longtemps dans les réacteurs pour obtenir des performances de transmutation équivalentes au mode homogène.

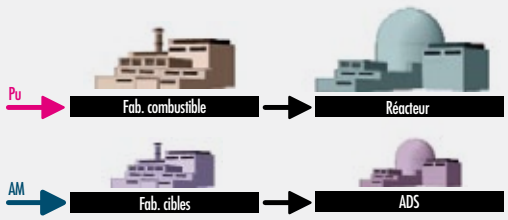
Le mode hétérogène permet de limiter le nombre d'assemblages contenant les actinides mineurs avec cependant l'inconvénient qu'il s'agit d'objets plus concentrés, complexes et fortement sollicités. Tout cela amène à prendre en compte avec une acuité particulière les questions relatives à leur fabrication, leur manutention et à leur transport.

FIGURE 7B : MODE DE TRANSMUTATION HÉTÉROGÈNE EN CCAM



La transmutation peut aussi s'inscrire dans une stratégie différente consistant à découpler cette dernière de la production électrique. La transmutation est alors réalisée dans des systèmes spécialement dédiés à cette fonction, placés dans une strate spécifique séparée des réacteurs électronucléaires. La voie étudiée est celle des systèmes sous-critiques, appelés systèmes hybrides ou ADS (Accelerator-Driven System, cf. figure 7C). Le caractère sous-critique de leur cœur permet en principe de le charger fortement en actinides mineurs tout en assurant son contrôle et sa sûreté, ce qui peut être vu comme un avantage pour la transmutation. Mais pour fonctionner, ces cœurs doivent être couplés à une source externe de neutrons, composée d'un accélérateur de protons et d'une cible de spallation. Les ADS sont de fait des objets complexes dont le développement nécessite la mise au point d'éléments de très haute technicité et nombre d'incertitudes demeurent encore sur la faisabilité de certains de ces éléments ainsi que sur le contrôle et la sûreté de ces systèmes. Les études et recherches sur les ADS ont été conduites pour l'essentiel dans le cadre européen du programme Eurotrans du 6e PCRD, puis dans divers projets du 7e PCRD qui ont notamment concerné la question de l'accélérateur.

FIGURE 7C : MODE DE TRANSMUTATION EN ADS



2. AVANCÉES TECHNIQUES SUR LA SÉPARATION DES ACTINIDES MINEURS..... 13

2.1. Les procédés hydrométallurgiques..... 13
2.1.1. Démarche générale de la recherche 13
2.1.2. Rappel de la problématique technique 14
2.1.3. Avancées techniques sur la séparation séquentielle des actinides mineurs..... 15
2.1.3.1. Voie DIAMEX-SANEX/HDEHP dite PALADIN 16
2.1.3.2. Voie DIAMEX-SANEX avec séparation des extractants 17
2.1.3.3. Voie SANEX-TODGA 18
2.1.3.4. Conclusions sur la séparation séquentielle..... 18
2.1.4. Avancées techniques sur la séparation groupée des actinides mineurs 18
2.1.4.1. Étape 1 : extraction sélective de l'uranium 19
2.1.4.2. Étape 2 : extraction groupée des actinides 20
2.1.5. Avancées techniques sur la séparation spécifique des actinides mineurs..... 20
2.1.6. Consolidation des procédés..... 21
2.1.6.1. Stabilité et régénération des extractants 22
2.1.6.2. Gestion des effluents aqueux 22
2.1.6.3. Technologies pour la mise en œuvre des procédés 22
2.1.6.4. Simulation des procédés..... 23
2.1.6.5. Pilotage des procédés..... 23
2.1.7. Conclusion sur le développement des procédés hydrométallurgiques pour la séparation des actinides mineurs..... 23
2.2. Les procédés pyrochimiques..... 25

2. AVANCÉES TECHNIQUES SUR LA SÉPARATION DES ACTINIDES MINEURS

Les recherches sur la séparation se sont essentiellement tournées vers les procédés hydrométallurgiques, c'est-à-dire du même type que le procédé PUREX mis en œuvre dans les usines de La Hague pour la récupération du plutonium et de l'uranium. Ce choix a découlé en premier lieu de l'aptitude de ces procédés à s'insérer dans les schémas de traitement actuels, mais aussi d'un certain nombre d'atouts dont témoigne le retour d'expérience industrielle : performances de séparation très élevées et quantités limitées de déchets technologiques.

Au début des recherches sur la séparation des radionucléides à vie longue, les chercheurs ont d'abord cherché à exploiter au mieux les potentialités du procédé PUREX. S'agissant des actinides mineurs, il est apparu que le procédé PUREX présentait des potentialités avérées pour séparer le neptunium mais ne pouvait pas se prêter, comme expliqué plus bas, à l'extraction de l'américium et du curium.

Pour ceux-ci, il fallait donc inventer des procédés complémentaires spécifiques. Or les deux éléments américium et curium présentent de très grandes analogies chimiques avec ceux de la famille des lanthanides, qui représentent une part importante des éléments présents dans les déchets. Le développement de procédés de séparation sélective a fait appel à une chimie extrêmement pointue, capable de différencier des éléments aux propriétés très proches. Depuis le début des années 1990, un effort remarquable de recherche a été mené par le CEA et le CNRS mais également au niveau européen dans le cadre des PCRD et a permis de concevoir, à l'échelle du laboratoire, des procédés très innovants.

En complément des études sur les procédés hydrométallurgiques, les possibilités offertes par la pyrochimie ont également été examinées, celle-ci, en dehors de certaines limitations qui lui sont propres, étant réputée présenter des avantages de compacité, de robustesse vis-à-vis de l'irradiation et d'aptitude à traiter des composés difficilement solubles en milieux aqueux.

2.1. LES PROCÉDÉS HYDROMÉTALLURGIQUES

[DTS-04]

2.1.1. DÉMARCHE GÉNÉRALE DE LA RECHERCHE

D'une manière générale, les procédés hydrométallurgiques font appel à des systèmes extractants qui, pour permettre le développement de procédés potentiellement viables, doivent satisfaire plusieurs critères, en premier lieu :

- Aptitude à extraire les éléments d'intérêt avec la sélectivité requise pour assurer les taux de récupération et de pureté souhaités ;
- Réversibilité pour permettre la désextraction des éléments extraits ;
- Stabilité suffisante vis-à-vis de l'hydrolyse et de la radiolyse ;
- Mise en œuvre possible dans des contacteurs à contre-courant en utilisant des diluants acceptables industriellement.

La démarche scientifique est basée sur des développements comportant plusieurs phases :

- La première phase est une phase exploratoire permettant de concevoir, synthétiser et caractériser de nouvelles molécules capables de répondre aux critères ci-dessus. Généralement, l'étape de conception s'appuie à la fois sur des études expérimentales exploratoires et sur des travaux de simulation. Les propriétés extractantes et/ou complexantes des molécules synthétisées sont évaluées par la mesure systématique de leurs performances en utilisant des solutions simulant les solutions réelles.
- Quand un système d'intérêt a été identifié, on entre dans une phase d'études plus approfondies et itératives permettant d'acquérir les données nécessaires à l'élaboration d'un schéma de procédé et à l'établissement de modèles permettant de simuler le procédé. Le schéma est testé pour vérifier son fonctionnement hydrodynamique et ses performances sur les éléments simulables en inactif et si besoin, en actif mais à l'état de traces.
- La validation du concept se concrétise par un ou plusieurs essais à contre-courant dans des contacteurs de laboratoire à échelle réduite mais en actif sur des solutions réelles, au cours desquels sont mesurés les rendements de récupération et les facteurs de décontamination. Ces essais permettent également de s'assurer qu'aucun point rédhibitoire n'empêche le passage aux étapes suivantes. Les résultats expérimentaux obtenus sont confrontés à ceux obtenus par les codes de calcul et servent à améliorer et à qualifier ces derniers.
- Lorsqu'un concept est validé, commence alors une phase d'optimisation et de simplification pour adapter celui-ci aux contraintes industrielles. Cette phase vise, par exemple, à diminuer le nombre d'étapes de procédé en regroupant les fonctions, à réduire les flux pour utiliser des appareils de plus petite taille, à utiliser des réactifs peu coûteux et générant des effluents faciles à gérer.

Ce n'est qu'une fois toutes ces étapes franchies que peut être envisagé le passage à la phase industrielle.

FIGURE 8 : PRINCIPE DE L'EXTRACTION SÉLECTIVE DES CATIONS PAR LE TBP

	Eléments	Degré d'oxydation					
		+I	+II	+III	+IV	+V	+VI
ACTINIDES MAJEURS	Uranium						o
	Plutonium				o		
ACTINIDES MINEURS	Neptunium					o	o
	Américium			o			
	Curium			o			
PRODUITS DE FISSION	Césium	o					
	Strontium		o				
	Lanthanides			o			

Peu ou pas extractible par le TBP — Extractible par le TBP — **O** degré d'oxydation stable en milieu nitrique

2.1.2. RAPPEL DE LA PROBLÉMATIQUE TECHNIQUE

Le procédé PUREX consiste en une première étape de mise en solution nitrique de l'uranium, du plutonium et des autres actinides ainsi que de la majeure partie des produits de fission. Pour séparer et purifier l'uranium et le plutonium, le procédé PUREX met en œuvre des techniques d'extraction liquide-liquide utilisant le TBP comme molécule extractante dilué dans un solvant organique. Le TBP possède en effet la propriété d'extraire spécifiquement les cations aux degrés d'oxydation +IV et +VI (voir Figure 8), qui sont précisément les degrés d'oxydation stables de l'uranium et du plutonium en milieu nitrique. La plupart des produits de fission présents à des degrés d'oxydation +I, +II ou +III ne sont pas extraits, de même que le neptunium(V)[4], l'américium(III) et le curium(III).

S'agissant de séparer les actinides mineurs, on voit que le procédé PUREX présente des potentialités pour extraire le neptunium à condition que celui-ci soit entièrement présent au degré d'oxydation +VI. Pour ce faire, il faut amplifier et accélérer l'oxydation du Np(V) en Np(VI), par exemple en augmentant la concentration d'acide nitrique dans la solution de dissolution. Cette adaptation très simple du procédé PUREX permet d'obtenir une extraction quasi quantitative du neptunium (> 99 %). Une fois extrait, il n'est pas isolé mais récupéré avec l'uranium ou le plutonium selon le mode de gestion envisagé. Ce schéma a été validé en 2005 sur des solutions actives réelles dans la chaîne blindée procédé (CBP) située dans l'installation Atalante du CEA à Marcoule.

En revanche, l'américium et le curium qui sont présents au degré d'oxydation +III dans les solutions de dissolution, ne peuvent être séparés par le TBP. Il a donc été nécessaire de développer de nouveaux systèmes extractants capables d'extraire efficacement les actinides(III) dans un milieu nitrique fortement acide. Pour obtenir ce résultat, les extractants doivent réunir les deux caractéristiques suivantes :

- Comporter des atomes donneurs durs tels que l'oxygène de manière à présenter une forte affinité pour les cations métalliques ;
- Posséder deux fonctions de ce type, afin de renforcer par effet de chélation[5], l'extraction des cations métalliques par rapport à celle de l'acide nitrique.

Parmi les familles d'extractants possédant ces deux caractéristiques, le choix s'est orienté vers les diamides (composé comportant une double fonction amide), et en particulier vers les malonamides où les deux fonctions sont séparées par un seul carbone central.

Il s'avère cependant que l'américium et le curium, qui font partie de la série 5f des éléments, possèdent des propriétés chimiques très voisines de celles des lanthanides appartenant eux à la série 4f, famille dont fait partie bon nombre de produits de fission également présents dans ces solutions. La séparation actinides(III)-lanthanides(III) a donc été une opération particulièrement complexe à réaliser. En outre, la difficulté était accrue par la forte acidité des solutions à traiter, l'extraction des cations métalliques se trouvant en compétition avec celle de l'ion H+.

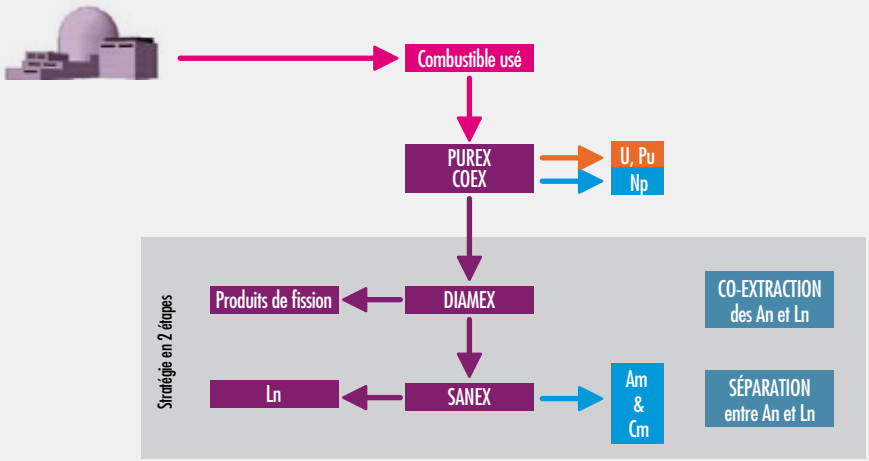
C'est pour cette raison que la stratégie initiale de séparation comportait une première étape consistant à extraire simultanément (coextraire) actinides et lanthanides de la solution de forte acidité issue du procédé PUREX. Le procédé **DIAMEX**, ainsi dénommé car mettant en œuvre un extractant de type diamide, permet d'éliminer une grande partie des produits de fission et de retrouver le mélange actinides-lanthanides dans un milieu de plus faible acidité.

L'étape suivante, consistant à séparer le mélange actinides (Am + Cm) des lanthanides, s'en trouve ainsi facilitée. Pour autant, cette séparation reste une opération particulièrement

4 – En faisant en sorte de le maintenir à ce degré d'oxydation car le neptunium possède 2 degrés d'oxydation stables (V et VI).

5 – Le cation métallique est fixé à une molécule chélatante par au moins deux liaisons à la manière d'une pince. Le complexe ainsi formé est, de la sorte, plus stable.

FIGURE 9 : LE CONCEPT DIAMEX-SANEX EN DEUX ÉTAPES POUR LA RÉCUPÉRATION DE L'AMÉRICIUM ET DU CURIUM



délicate du fait de la grande similitude, déjà évoquée, des propriétés chimiques des éléments présents. La solution réside dans l'utilisation de ligands comportant des atomes donneurs d'électrons moins « durs » que l'oxygène, tels que l'azote ou le soufre, qui réagissent de façon légèrement différente avec les deux familles, ce qui rend possible leur séparation. Les donneurs azotés ont été préférés, car ils permettent une meilleure sélectivité entres actinides et lanthanides et facilitent la gestion des effluents produits. Ils sont à la base du procédé **SANEX** (Selective ActiNides EXtraction) développé pour cette seconde étape. Néanmoins, ces complexants azotés ne peuvent opérer efficacement qu'à faible acidité (pH>2).

Plusieurs variantes du procédé SANEX ont été testées. La voie de référence retenue comporte une extraction conjointe des actinides et lanthanides par un solvant diamide, suivie d'une désextraction sélective des actinides en phase aqueuse à l'aide de l'HEDTA (un complexant azoté de type polyaminocarboxylate - cf. annexe 3) à pH>2. Performant à faible acidité, ce réactif doit être combiné à un extractant acide pour maintenir les lanthanides en phase organique durant l'étape de désextraction des actinides. Pour ce faire, l'acide di-2éthylhexyl phosphorique (noté HDEHP - cf. annexe 3) a été retenu.

Une troisième étape destinée à séparer si besoin l'américium du curium, a également été développée. Le procédé retenu est une extraction sélective de l'américium par un solvant diamide du même type que celui utilisé dans le procédé DIAMEX. Bien que faible, le facteur de séparation existant entre l'américium et le curium rend possible leur séparation effective avec des facteurs de décontamination élevés à condition d'avoir le nombre d'étages suffisant.

Ce concept en deux cycles successifs **DIAMEX-SANEX** ainsi que l'opération suivante, destinée à séparer l'américium du curium, ont été validés avant 2006 (cf. figure 9). Pour mémoire, environ 50 litres de solution de haute activité issue du procédé PUREX ont été traités fin 2005 dans la CBP située dans l'installation Atalante. Lors de l'essai DIAMEX, les actinides mineurs et les lanthanides ont été quantitativement extraits (à mieux que 99,9 %) et convenablement épurés des éléments chimiques parasites (Zr, Mo, Fe…). L'essai SANEX, réalisé peu après dans la chaîne blindée C11/C12 d'Atalante, a été effectué sur quelques litres de la solution de production issue de DIAMEX. Les résultats obtenus ont démontré la validité du concept avec plus de 99,9 % des actinides récupérés. En revanche, par suite d'un mauvais fonctionnement d'une partie de l'appareillage, la quantité résiduelle de lanthanides dans le flux de production a dépassé sensiblement la valeur objectif de 5 % en masse[6]. Enfin, la séparation entre américium et curium a été expérimentée avec succès en 2002 : 99,9 % des deux actinides ont été récupérés et le taux de contamination de l'américium par le curium ne dépassait pas 0,7 %.

Tel était l'état de l'art en 2005, à l'issue de la période de recherche définie par la loi du 30 décembre 1991. Ce programme s'est poursuivi dans le cadre de la loi du 28 juin 2006 et les avancées techniques obtenues sont décrites dans les chapitres suivants.

2.1.3. AVANCÉES TECHNIQUES SUR LA SÉPARATION SÉQUENTIELLE DES ACTINIDES MINEURS [DTS-01]

Rappelons que ces procédés visent à extraire séparément les actinides mineurs à partir de la solution de haute activité issue du procédé PUREX, solution actuellement vitrifiée et dont le contenu constitue aujourd'hui un déchet ultime. Compte tenu des résultats déjà obtenus, les développements menés depuis 2006 se sont naturellement faits dans la continuité des travaux antérieurs, avec l'objectif principal de consolider, de simplifier et d'optimiser les procédés.

6 – Cette teneur résiduelle de 5 % en lanthanides correspond à la quantité maximale acceptable à l'étape de transmutation des actinides.

Les recherches se sont essentiellement focalisées sur le développement de concepts originaux en un seul cycle. Tous les procédés reposent sur les mêmes principes : une extraction conjointe des actinides mineurs et des lanthanides par un diamide de type malonamide (en général le DMDOHEMA - cf. annexe 3) puis une désextraction des seuls actinides en utilisant un complexant azoté sélectif (Figure 10).

FIGURE 10 : PRINCIPE DE LA DÉSEXTRACTION SÉLECTIVE DES ACTINIDES

Pour que cette complexation soit effective, il faut généralement opérer à faible acidité (pH>2). Or, le pouvoir extractant du diamide baisse considérablement dans ces conditions et il est nécessaire de trouver un moyen de maintenir les lanthanides en phase organique, faute de quoi ils rejoindraient les actinides en phase aqueuse et le bénéfice de la complexation sélective serait perdu.

Les différents concepts développés diffèrent par les solutions proposées pour résoudre cette difficulté.

2.1.3.1. VOIE DIAMEX-SANEX/HDEHP DITE PALADIN

Cette première voie dénommée **PALADIN** (pour Partition actinides lanthanides par un diamide complexant incinérable) reprend le principe du procédé SANEX. La désextraction sélective des actinides utilise un complexant de type polyaminocarboxylate (HEDTA ou DTPA- cf. annexe 3) à un pH de l'ordre de 3. Le solvant organique est un mélange de diamide DMDOHEMA et d'un extractant acide HDEHP. A l'opposé du diamide, l'efficacité du HDEHP s'accroît quand l'acidité diminue et ce dernier prend donc le relais du diamide pour maintenir les lanthanides en phase organique dans les conditions de faible acidité (Figure 11).

Toutefois, l'extractant acide exacerbe l'extraction parasite de certains produits de fission (Zr, Mo, Ru…). Contrairement au procédé SANEX opérant en second cycle sur un flux déjà épuré, ces éléments sont ici présents et leur coextraction avec les actinides et les lanthanides ne peut être évitée. Pour empêcher qu'ils s'accumulent dans le solvant ou qu'ils polluent le flux de désextraction des actinides, il a fallu ajouter deux étapes complémentaires de lavage pour éliminer ces éléments parasites (étapes représentées en orange dans le schéma de la Figure 12). Cette solution présente l'inconvénient de complexifier le schéma et de mettre en œuvre des complexants forts qu'il faudra ensuite gérer dans les effluents.

Cette voie PALADIN a cependant le mérite de s'appuyer sur un socle de connaissances très étendu, notamment pour ce qui concerne la stabilité du solvant. Elle a été testée, dans son principe à plusieurs reprises, et à ce stade il n'existe pas de verrou identifié.

FIGURE 11 : PRINCIPE DE L'UTILISATION DU MÉLANGE D'EXTRACTANTS

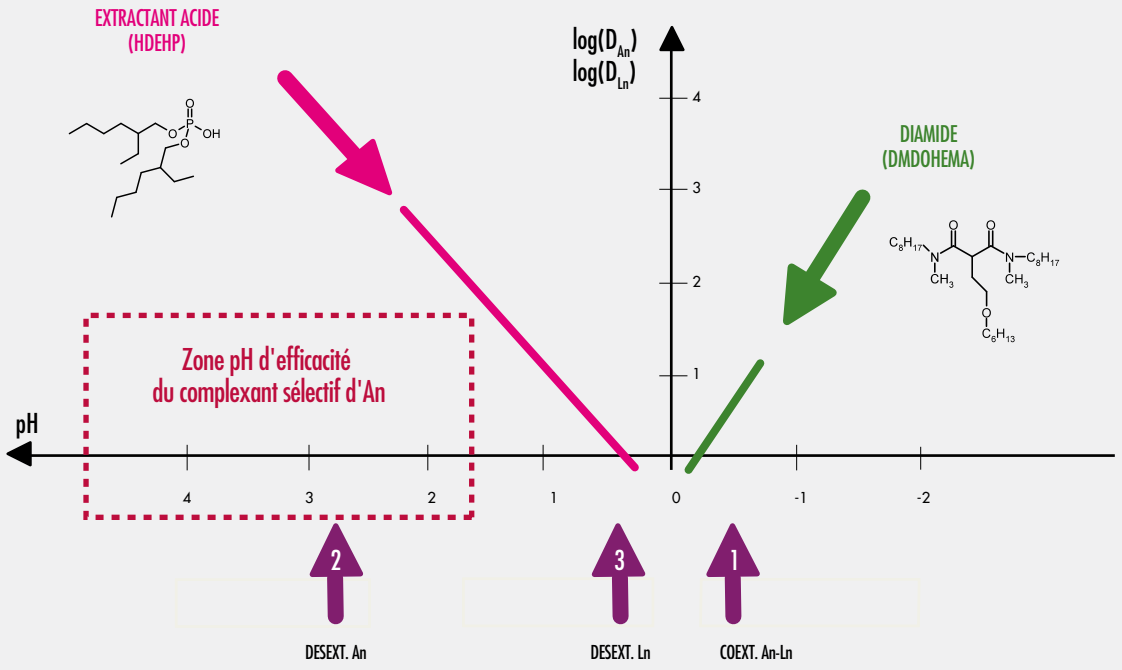
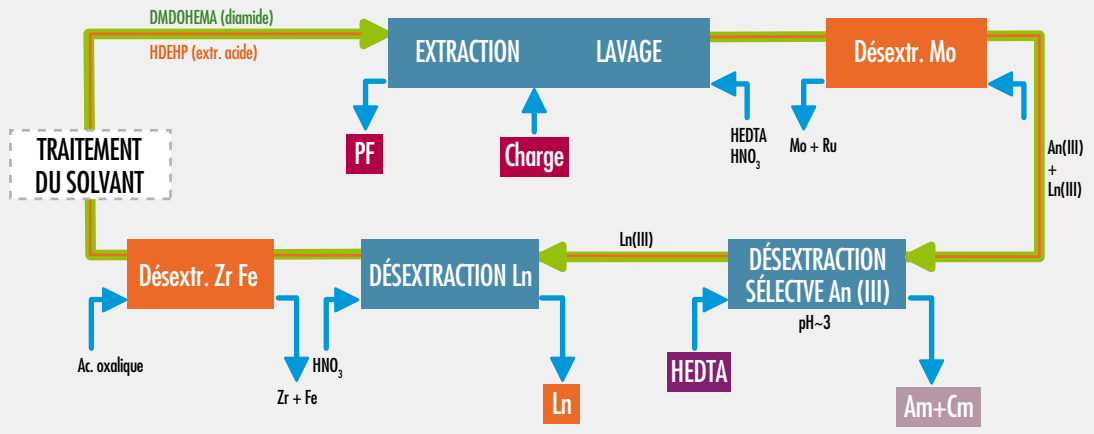


FIGURE 12 : SCHÉMA SIMPLIFIÉ DU PROCÉDÉ PALADIN



2.1.3.2. VOIE DIAMEX-SANEX AVEC SÉPARATION DES EXTRACTANTS

Cette seconde voie est une optimisation de PALADIN visant à s'affranchir des étapes complémentaires de lavage, qui génèrent des effluents difficiles à gérer. Pour ce faire, les deux extractants ne sont plus mélangés au départ mais seulement quand cela est nécessaire, c'est-à-dire à l'étape de désextraction sélective des actinides. Cette modification évite l'extraction parasite de produits de fission puisque l'extractant acide n'est pas présent à cette étape du procédé (cf. figure 13).

En revanche, une telle opération empêche de recycler le solvant sans séparer préalablement les deux extractants. Pour réaliser cette séparation, l'idée de base consiste à jouer sur la plus grande solubilité en phase aqueuse des extractants acides quand le pH augmente. En mettant le mélange organique en contact avec une phase aqueuse possédant un pH d'environ 7, l'extractant acide peut passer en phase aqueuse sous forme d'un sel alors que le diamide reste lui en phase organique.

Le HDEHP étant trop lipophile[7] pour passer suffisamment en phase aqueuse, il a fallu sélectionner un autre extractant acide qui soit un meilleur compromis entre lipophilie (pour continuer à jouer le rôle d'extractant) et solubilité en phase aqueuse (pour permettre la séparation décrite ci-dessus). Le choix s'est porté sur l'acide di-hexyl phosphorique (noté HDHP) comportant des chaînes alkyles plus courtes.

Le HDHP améliore en outre la séparation actinides-lanthanides mais son pouvoir extractant renforcé rend plus difficile la désextraction des lanthanides. Pour pallier cette difficulté et éviter l'utilisation de débits de désextraction trop élevés, il a été nécessaire d'ajouter un complexant des lanthanides en phase aqueuse (noté TEDGA[8]).

Le schéma complet a été testé en inactif sur des solutions simulées. Il s'est avéré que l'étape de séparation des extractants

7 – Lipophile : qui présente de l'affinité pour la phase organique. Le caractère lipophile d'une molécule est généralement lié à la longueur de ses chaînes carbonées.

8 – tétra éthyl diglycolamide (cf. annexe 3).

FIGURE 13 : SCHÉMA SIMPLIFIÉ DU PROCÉDÉ DIAMEX-SANEX AVEC SÉPARATION DES EXTRACTANTS

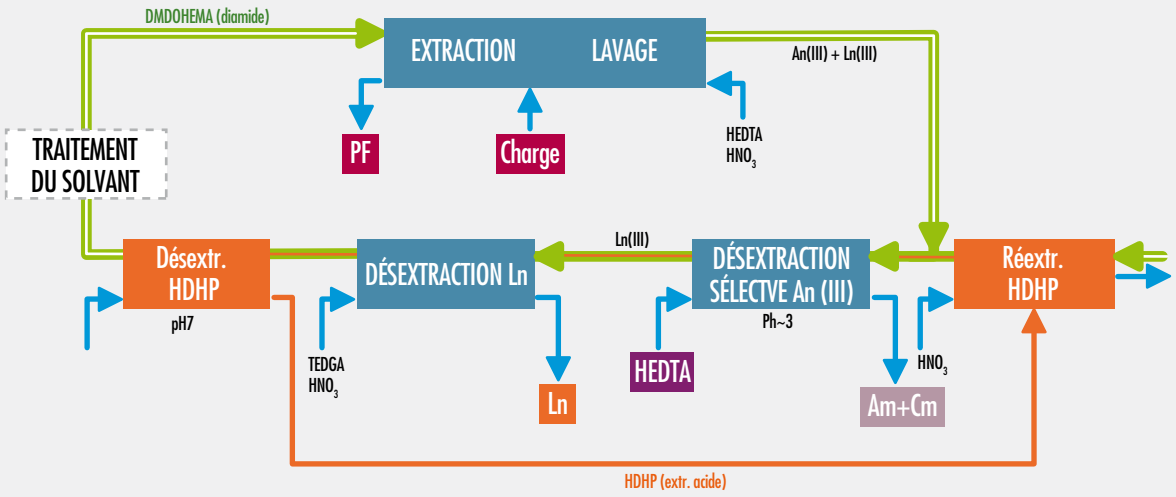
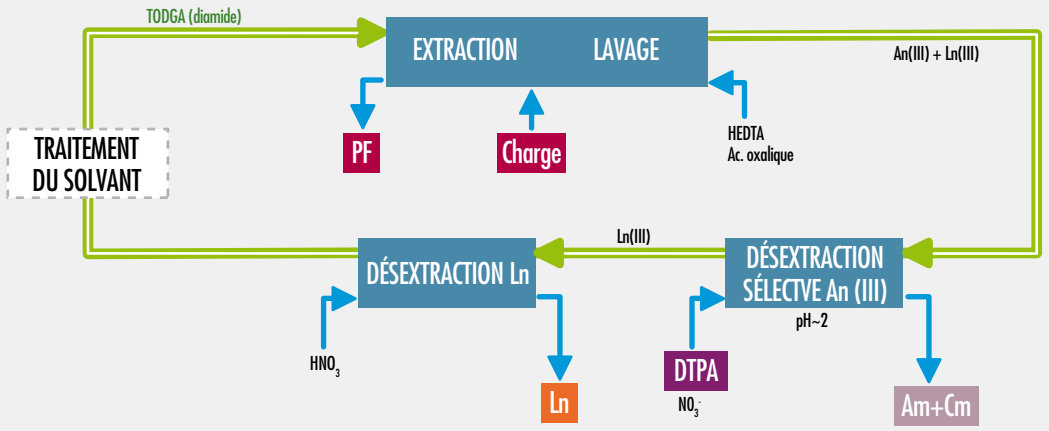


FIGURE 14 : SCHÉMA SIMPLIFIÉ DE LA VOIE SANEX-TODGA



était difficile à maîtriser sur le plan de l'hydrodynamique. Cette difficulté a conduit à mettre en veille le développement de ce procédé et à privilégier d'autres concepts.

2.1.3.3. VOIE SANEX-TODGA

Dans cette troisième voie, l'objectif est de supprimer l'extractant acide en utilisant un diamide dont le pouvoir extractant reste suffisant à faible acidité. Le choix a porté sur le TODGA, un diamide de la famille des diglycolamides avec un atome d'oxygène sur la chaîne liant les deux fonctions amides. Le TODGA possède un pouvoir extractant très élevé, qui permet de réaliser la désextraction sélective des actinides en milieu faiblement acide (vers pH 2) tout en maintenant les lanthanides en phase organique (cf. figure 14).

Cette voie SANEX-TODGA est simple dans son principe puisqu'elle ne comporte que trois étapes principales. Son principal défaut vient de l'étape de désextraction sélective des actinides qui est très sensible à de faibles variations de pH. Le procédé requiert, de ce fait, un pilotage fin qui semble à ce stade réalisable grâce à l'utilisation couplée de l'analyse en ligne et de la modélisation de procédé. Cela constitue néanmoins le point critique de ce procédé.

Un essai sur solution réelle a été réalisé en mars 2009 dans la CBP d'Atalante. Le fonctionnement hydrodynamique s'est révélé satisfaisant et le schéma a pu être piloté avec succès. Les taux de récupération des actinides ont été supérieurs à 99,8 % pour l'Am et 99,9 % pour le Cm avec une excellente décontamination en lanthanides (moins de 2 % en masse).

2.1.3.4. CONCLUSIONS SUR LA SÉPARATION SÉQUENTIELLE

Après la démonstration réalisée en 2005 de la séparation de l'américium et du curium en deux cycles séparés DIAMEX puis SANEX, des concepts originaux en un seul cycle ont été développés. Tous les procédés reposent au départ sur les mêmes principes : une extraction conjointe des actinides mineurs et des lanthanides par un diamide puis une désextraction des seuls actinides en utilisant un complexant azoté sélectif. La difficulté générique de ces procédés est de maintenir les lanthanides en phase organique lors de l'étape de désextraction sélective des actinides et plusieurs solutions ont été proposées.

A ce stade, deux concepts ont été validés au travers d'essais sur solutions réelles ayant abouti à des performances concluantes (plus de 99,9 % des actinides récupérés dans un flux contenant moins de 5 % en masse de lanthanides) :

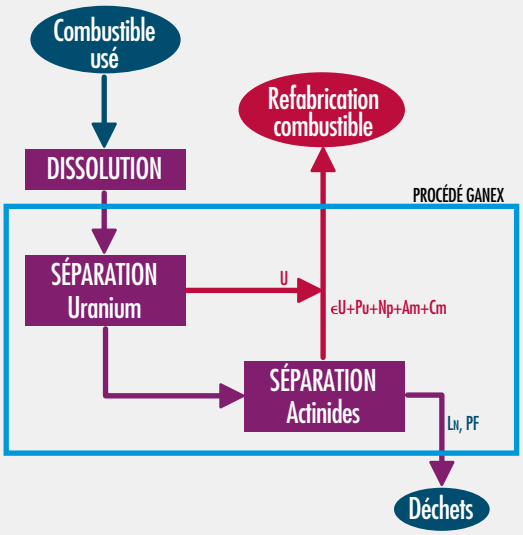
- La voie **DIAMEX-SANEX/HDEHP** dite **PALADIN** pour laquelle de nombreuses connaissances ont été acquises. La flexibilité de ce procédé est un atout important. Ses principaux inconvénients résident dans sa relative complexité et dans le fait qu'elle génère des effluents difficiles à gérer ;
- La voie **SANEX-TODGA** est simple dans son principe puisqu'elle ne comporte que trois étapes principales. Son principal point dur est la très grande sensibilité aux variations de pH d'une partie du procédé qui requiert un pilotage très fin.

2.1.4. AVANCÉES TECHNIQUES SUR LA SÉPARATION GROUPÉE DES ACTINIDES MINEURS [DTS-02]

Dans le concept de séparation groupée, les actinides mineurs ne sont non seulement plus séparés les uns des autres mais sont extraits et gérés conjointement avec les actinides majeurs (uranium et plutonium). Au niveau international, ce concept a souvent été associé au cycle du combustible des systèmes de 4e génération car il apparaissait comme une réponse à trois des objectifs du cahier des charges de ces systèmes :

- La durabilité des ressources en recyclant le plutonium et l'uranium, nécessaires au fonctionnement même des réacteurs de 4e génération ;
- La minimisation des déchets en recyclant les actinides mineurs pour les transmuter ;
- Une résistance accrue aux risques de prolifération dans la mesure où le plutonium reste en permanence associé à l'uranium et aux actinides mineurs.

FIGURE 15 : CONCEPT GANEX DE RECYCLAGE GROUPÉ DES ACTINIDES MINEURS



Il faut cependant bien voir qu'une telle orientation restreint les choix qui peuvent être faits en aval : elle n'est compatible qu'avec le mode de transmutation homogène et conduit à devoir obligatoirement manipuler des matières radioactives contenant du curium, imposant des contraintes sévères aux opérations de fabrication, de manutention et de transport de tous les combustibles.

Contrairement aux autres concepts de séparation des actinides mineurs qui complètent les procédés de traitement existants (PUREX ou COEX™), la séparation groupée des actinides se place en substitution de ces procédés en opérant directement sur les solutions de dissolution des combustibles usés en lieu et place de ces procédés. Il s'agit donc d'une rupture beaucoup plus franche par rapport aux pratiques actuelles.

L'une des difficultés de ce concept est qu'il conduit à traiter dans un même flux des matières dont le niveau de concentration est très différent : en effet, quand la concentration de l'uranium est de 1, celle du plutonium est d'environ 0,2 et celle des actinides mineurs de l'ordre de 0,01 (0,002 pour le seul curium). Il est apparu intéressant d'extraire en tête une grande part de l'uranium afin de réduire ces écarts de concentration dans le cœur du procédé et réserver la capacité de charge, souvent limitée, des molécules à l'extraction du plutonium et des actinides mineurs. Cette option offre en outre l'avantage d'apporter de la souplesse dans la gestion de l'uranium qui peut, selon les besoins, être recyclé en plus ou moins grande proportion.

Le concept de séparation groupée, développé par le CEA et dénommé **GANEX** (Global ActiNide EXtraction), comporte deux étapes :

- Un premier cycle pour extraire sélectivement l'uranium ;
- Un second cycle d'extraction groupée des autres actinides (Pu, Np, Am, Cm).

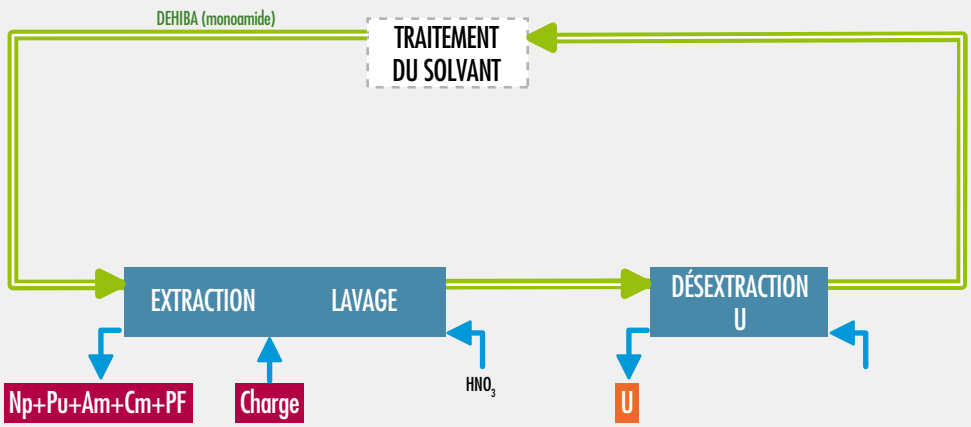
2.1.4.1. ÉTAPE 1 : EXTRACTION SÉLECTIVE DE L'URANIUM

L'extraction sélective de l'uranium utilise des molécules extractantes de la famille des monoamides, déjà étudiées au CEA dans les années 80-90 comme alternative au TBP dans le procédé PUREX. Ce sont des extractants forts des actinides(VI) (uranium en particulier) et dans une moindre mesure des actinides(IV) (plutonium). Aussi a-t-il fallu d'abord ajuster la structure de la molécule pour accroître la sélectivité U(VI)/Pu(IV) tout en assurant une bonne capacité de charge, compte tenu des fortes concentrations d'uranium à extraire.

Le choix a porté sur la molécule DEHiBA[9] qui représente un compromis satisfaisant entre ces deux critères et offre une bonne résistance à la radiolyse. Le schéma, représenté à la Figure 16, est particulièrement simple et n'utilise aucun réactif particulier.

9 – N,N-di-(éthyl-2-héxyl)-isobutyramide (cf. annexe 3).

FIGURE 16 : SCHÉMA DE PRINCIPE DE L'ÉTAPE 1 DE GANEX



Ce procédé a fait l'objet entre 2006 et 2008, d'un ensemble relativement complet d'études et d'essais en vue de démontrer la faisabilité du concept. Il a en particulier été testé avec une solution active réelle issue de la dissolution d'un combustible UOX très irradié (essai réalisé en juin 2008). Les performances du procédé ont été excellentes avec un rendement de récupération de l'uranium supérieur à 99,99 % et des facteurs de décontamination généralement élevés.

2.1.4.2. ÉTAPE 2 : EXTRACTION GROUPÉE DES ACTINIDES

L'uranium ayant été séparé dans un cycle préalable, les actinides restant dans le raffinat (Pu, Np, Am, Cm et les traces d'uranium) doivent être séparés des produits de fission. L'opération s'apparente à ce qui est fait pour l'américium et le curium dans le procédé DIAMEX-SANEX avec cependant deux différences de taille :

- La présence d'éléments nouveaux (Pu, Np) et des états d'oxydation variés : +III (Am, Cm), +IV (Np, Pu), +V (Np), +VI (U, Np) ;
- Des concentrations élevées d'actinides, en particulier de plutonium.

Parmi les différents concepts étudiés, le procédé DIAMEX-SANEX/HDEHP a été choisi comme voie de référence, moyennant plusieurs adaptations pour prendre en compte les particularités énoncées ci-dessus :

- Ajustement du degré d'oxydation du Np par introduction d'un agent réducteur (hydroxyurée) à la désextraction ;
- Augmentation de la température pour accroître la cinétique de désextraction du Np et du Pu ;
- Optimisation de l'étape de lavage Mo-Tc pour trouver un compromis entre décontamination en Tc et pertes de Pu.

Par ailleurs, les étapes de désextraction des lanthanides et de désextraction Zr+Fe ont été fusionnées en une seule grâce à l'ajout d'un complexant fort (TEDGA) en solution aqueuse. Ceci diminue le nombre d'opérations du schéma et réduit de manière importante le volume des effluents aqueux générés.

Le schéma de principe de l'étape 2 du procédé GANEX est représenté à la Figure 17.

Ce schéma a été testé en actif en décembre 2008 en utilisant la solution produite à l'étape 1 de GANEX. Globalement, les actinides ont été récupérés à 99,9 % (99,5 % pour le Np). En revanche, la décontamination des actinides en lanthanides a été très insuffisante puisque plus de 10 % de ces derniers ont suivi le flux des actinides. L'exploitation approfondie des résultats a permis d'expliquer ces performances insuffisantes. Cette analyse a également abouti à réviser le modèle de simulation et à le valider au travers d'une comparaison des profils expérimentaux et calculés de cet essai.

Ce modèle validé a permis de proposer une adaptation du schéma de procédé pour atteindre l'ensemble des performances visées. Bien que ce nouveau schéma n'ait pas été testé expérimentalement, on considère que l'ensemble des résultats déjà obtenus est suffisant pour démontrer la faisabilité, au niveau du laboratoire, du concept de séparation groupée.

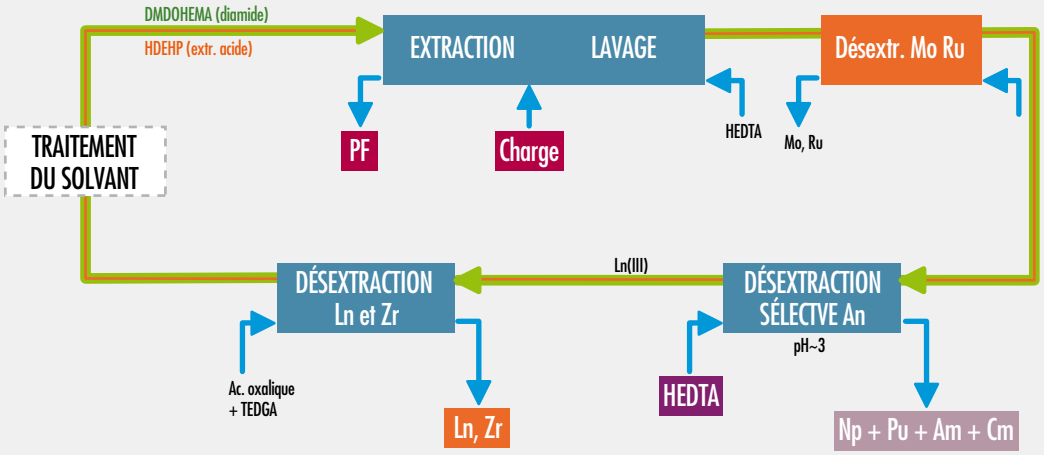
2.1.5. AVANCÉES TECHNIQUES SUR LA SÉPARATION SPÉCIFIQUE DES ACTINIDES MINEURS

[DTS-03]

Derrière cette voie, se place le constat que les avantages et détriments associés à la transmutation des actinides mineurs pouvaient être très différents d'un élément à l'autre. Par exemple :

- La très longue durée de vie du neptunium lui confère une faible contribution à la radiotoxicité des déchets ultimes pour la période généralement retenue comme période d'intérêt (jusqu'à quelques centaines de milliers d'années, la nocivité ayant sensiblement décru au-delà) ;
- L'américium, et, à un degré moindre mais significatif, le curium (par l'intermédiaire de ses descendants) sont les principaux contributeurs à la radiotoxicité des déchets ultimes dans la période considérée. Le curium entraîne toute-

FIGURE 17 : SCHÉMA DE PRINCIPE DE L'ÉTAPE 2 DE GANEX



fois d'importantes contraintes de radioprotection et de thermique qui font s'interroger sur la faisabilité pratique de sa transmutation.

- La transmutation de l'américium procure une réduction de la thermique séculaire des déchets, qui peut permettre une certaine optimisation du stockage.

Ainsi, la transmutation du seul américium peut apparaître comme une première étape pour un éventuel déploiement industriel d'options de transmutation. C'est pourquoi, il a semblé avantageux de développer un procédé de séparation qui n'extrairait que ce seul élément. Ce procédé de séparation a été baptisé EXAm (pour EXtraction de l'Américium).

On connaît les potentialités des procédés d'extraction basés sur l'utilisation de diamide pour séparer l'américium du curium. Malgré le faible facteur de séparation entre ces deux éléments (FS Am/Cm ≈1,6), il est possible de les séparer dès lors qu'un grand nombre d'étages est mis en œuvre. Mais au lieu d'effectuer cette séparation après les cycles DIAMEX et SANEX comme cela a été fait en 2002, il est envisageable de la réaliser dès la toute première étape en extrayant l'américium et en laissant le curium en phase aqueuse. Bien sûr, la présence des lanthanides et des autres produits de fission rend le système plus complexe puisqu'une partie d'entre eux sera extraite en même temps que l'américium. C'est le cas par exemple des lanthanides légers dont les coefficients de partage sont très voisins de celui de l'américium et qui suivront celui-ci.

Quoi qu'il en soit, une fois l'extraction réalisée, la suite des opérations sera similaire à celle du procédé DIAMEX-SANEX classique. La séparation américium / lanthanides légers pourra être réalisée par désextraction sélective de l'américium comme dans le procédé PALADIN (cf. chapitre 2.1.3.1).

L'extraction constitue en revanche le point clé et novateur du procédé EXAm. L'une des difficultés rencontrées est l'importante accumulation de certains lanthanides entre l'extraction et le lavage, entraînant des concentrations de cations dans le solvant localement élevées et proches de la saturation. Il est difficile dans ces conditions de concilier taux de récupération et pureté en conservant des marges opératoires suffisantes.

Afin de surmonter cette difficulté due aux faibles facteurs de séparation obtenus avec le diamide, il a été choisi d'exacerber ceux-ci en opérant en présence de TEDGA, complexant préférentiellement le curium et les lanthanides lourds (pour mémoire, ce complexant est déjà utilisé à la désextraction des lanthanides dans les procédés SANEX et GANEX).

Pour mettre au point un schéma permettant de récupérer 99 % de l'américium avec un facteur de décontamination élevé vis-à-vis du curium, ce procédé a fait l'objet de nombreuses études et essais entre 2008 et 2010. Un essai de validation sur solution réelle active a été réalisé en avril 2010. Malgré un dysfonctionnement apparu après une vingtaine d'heures probablement dû à l'arrêt inopiné d'un réactif, des résultats plutôt satisfaisants ont été obtenus :

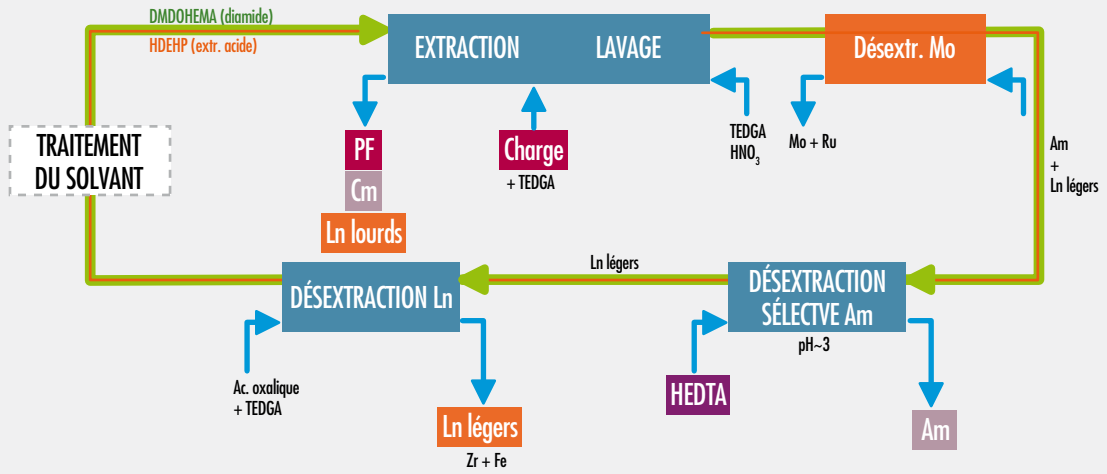
- 99 % de l'américium a été extrait et efficacement séparé du curium (environ 0,2 % du Cm a suivi l'Am) ;
- 98,3 % a été récupéré à l'étape de séparation américium / lanthanides légers avec une excellente décontamination en néodyme (lanthanide le moins bien séparé) ; les 0,7 % manquants ont suivi le molybdène à l'étape de désextraction Mo qui devra être améliorée pour minimiser cette perte d'américium.

La faisabilité du procédé EXAm est donc pratiquement acquise au niveau du laboratoire. Des compléments d'étude restent indispensables pour consolider et simplifier ce procédé. Ainsi, une famille de complexants sélectifs de l'américium vis-à-vis du curium est actuellement à l'étude pour permettre, par exemple, de traiter des flux plus concentrés et d'aboutir à un concept plus attractif.

2.1.6. CONSOLIDATION DES PROCÉDÉS

Après validation des concepts, la consolidation des procédés consiste à adapter ceux-ci aux contraintes industrielles.

FIGURE 18 : SCHÉMA SIMPLIFIÉ DU PROCÉDÉ EXam



Outre la recherche d'un coût acceptable, plusieurs critères techniques sont considérés :

- La complétude : il s'agit de s'assurer de la maîtrise des flux d'entrée (disponibilité des réactifs) et de sortie (gestion des effluents) ;
- Le changement d'échelle : définir les appareils permettant la mise en œuvre industrielle des procédés ;
- La robustesse : il s'agit d'évaluer les marges opératoires du procédé, de proposer des modes de conduite et de contrôle du procédé et d'apprécier la stabilité à long terme des produits recyclés (solvant en particulier).

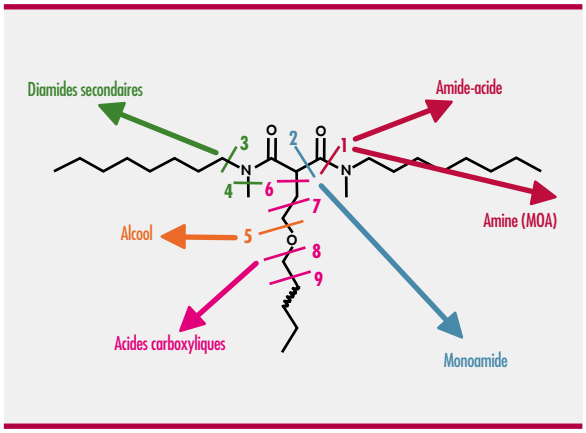
Bien que les différents procédés décrits ci-dessus puissent paraître très hétéroclites, il existe un certain nombre de similitudes entre les diverses voies étudiées, qui permettent de mutualiser une grande partie des études de consolidation.

2.1.6.1. STABILITÉ ET RÉGÉNÉRATION DES EXTRACTANTS [DTS-05]

La mise en œuvre d'un procédé à l'échelle industrielle nécessite de recycler la phase organique le plus longtemps possible. Il faut donc éliminer, autant que faire se peut, les produits de dégradation générés sous l'effet de la radiolyse ou de l'hydrolyse auxquelles est soumis le solvant lors des diverses étapes d'un procédé.

Les produits de dégradation sont formés après rupture de la molécule d'extractant sous l'effet des rayonnements ou du milieu fortement acide. Ces ruptures peuvent se produire en de multiples endroits et conduisent à la formation de composés très divers, plus ou moins gênants dans le fonctionnement du procédé.

La démarche consiste, dans un premier temps, à identifier les différents composés formés et à apprécier les nuisances qu'ils peuvent induire. En règle générale, les produits de dégradation devront être éliminés par un traitement adapté à leur nature. Les composés à caractère basique (tels que les amines) pourront être éliminés par des contacts acides, tandis que les composés acides, s'ils ne sont pas trop lipophiles, pourront l'être par des lavages basiques.



La vérification de l'efficacité de ces traitements de premier niveau fait l'objet d'essais de longue durée dans une installation (boucle Marcel au CEA Marcoule) spécialement conçue à cette fin, où la dégradation est obtenue par hydrolyse acide et radiolyse γ. La représentativité de ce mode de dégradation est consolidée par des études comparatives menées en batch sous radiolyse αet par un essai en continu intégrant l'effet catalytique éventuel de produits de fission ou de corrosion. Un essai dans la boucle Marcel permet de simuler une à trois années de fonctionnement en usine et apporte des résultats précieux sur l'accumulation éventuelle de produits de dégradation et leurs effets sur les performances du procédé.

Il se peut qu'à la longue, l'accumulation de certains produits de dégradation peu ou mal éliminés par le traitement de premier niveau, puisse devenir rédhibitoire. Dans ces conditions, un traitement de second niveau s'imposera mais le choix est réduit par le fait que les molécules d'extractant sont très thermosensibles ce qui interdit des techniques comme la distillation. Des études préliminaires ont été menées pour évaluer les potentialités de l'extraction par CO_2 supercritique, cette technique étant apte à solubiliser préférentiellement certains composés. Les résultats obtenus montrent que la séparation serait possible mais difficile.

2.1.6.2. GESTION DES EFFLUENTS AQUEUX [DTS-06]

Les procédés de séparation des actinides mineurs requièrent plusieurs réactifs organiques dans divers flux aqueux et organiques. Il s'agit d'agents complexants (HEDTA, DTPA, TEDGA), d'agents tampons (acide carboxylique associé à une base), voire d'agents réducteurs. Ces réactifs ainsi que leurs produits de dégradation auxquels peuvent s'ajouter une partie de ceux issus de la dégradation du solvant, vont se retrouver dans les différents effluents aqueux du procédé.

Pour chacun d'entre eux, il a fallu élaborer des scénarios adaptés de traitement permettant une gestion rationnelle des réactifs et des rejets, tout en assurant la qualité des produits finis. Il s'agissait notamment d'évaluer l'impact des espèces organiques sur le fonctionnement et la sûreté des opérations, et de veiller à la compatibilité des flux avec les spécifications des étapes en aval et des exutoires.

A la lumière des résultats obtenus, il apparaît que ces effluents, bien que fortement chargés en réactifs organiques, ne devraient pas poser de problèmes majeurs de gestion. Il sera nécessaire dans certains cas de développer des traitements complémentaires, capables de détruire de façon poussée les espèces organiques.

2.1.6.3. TECHNOLOGIES POUR LA MISE EN ŒUVRE DES PROCÉDÉS [DTS-07]

Des réflexions ont été menées pour préciser les technologies de mise en œuvre des procédés de séparation des actinides mineurs. En première analyse, il ne semble pas nécessaire de développer des extracteurs spécifiques. En effet, la colonne pulsée constitue a priori l'appareil de prédilection pour réali-

ser les opérations d'extraction, même si l'aire interfaciale d'échange créée dans ce type d'appareil est inférieure d'au moins un ordre de grandeur à ce qui est obtenu en mélangeurs-décanteurs.

S'assurer de la mise en œuvre industrielle des nouveaux procédés nécessite ainsi de vérifier que les caractéristiques physico-chimiques des phases en présence permettront d'obtenir un fonctionnement hydrodynamique satisfaisant, c'est-à-dire disposer d'une aire interfaciale suffisante pour le transfert de matière et une circulation des deux phases à contre-courant.

Contrairement à la mise au point des colonnes pulsées de La Hague qui avait largement fait appel à des essais à pleine échelle, la démarche d'extrapolation initiée ici cherchera à tirer parti des méthodes de calcul d'optimisation et ne devrait s'appuyer que sur quelques vérifications expérimentales ciblées.

2.1.6.4. SIMULATION DES PROCÉDÉS [DTS-08]

La modélisation des opérations d'extraction par solvant a été initiée au CEA il y a une trentaine d'années afin de décrire les réactions dans le procédé PUREX. Le code de calcul dénommé PAREX a permis d'accompagner le développement des procédés d'extraction depuis les expériences de laboratoire jusqu'à l'échelle industrielle et s'est révélé particulièrement précieux pour concevoir les schémas d'ateliers et réaliser les analyses de fonctionnement des dossiers de sûreté de l'usine de La Hague.

La description d'autres systèmes d'extraction, notamment ceux développés pour la séparation des actinides mineurs a été réalisée et intégrée dans le code PAREX. Compte tenu de la diversité et de la complexité des systèmes correspondants, il s'est agi d'identifier les phénomènes prépondérants sur lesquels a d'abord porté le travail de développement.

Pour chacun des procédés, ont été considérés les principaux phénomènes suivants :

- La distribution des espèces : équilibre thermodynamique d'extraction par le solvant ;
- Les réactions chimiques en phase homogène ;
- La cinétique de transfert de matière entre les différentes phases ;
- L'hydrodynamique dans les appareils d'extraction : efficacité des contacteurs ;
- Les dégagements thermiques : enthalpie des réactions chimiques, échanges thermiques.

Le code PAREX simule aujourd'hui les procédés DIAMEX, GANEX 1, SANEX-TODGA et EXAm. Chacune des étapes clés de ces procédés a été validée par confrontation à des résultats expérimentaux.

La modélisation des procédés de séparation des actinides constitue un outil précieux pour aider à la compréhension des phénomènes, cibler et donc minimiser les expériences à mettre en œuvre. Elle joue également un rôle important pour définir les schémas de procédé et leurs méthodes de pilotage, surtout pour les procédés présentant une forte sensibilité à certains paramètres opératoires.

Les développements à venir consisteront à consolider la validation des modèles mais également à substituer progressivement certaines acquisitions expérimentales par des simulations numériques basées sur la chimie théorique.

2.1.6.5. PILOTAGE DES PROCÉDÉS [DTS-09]

Le pilotage des procédés est indispensable pour rester dans un domaine de fonctionnement garantissant le maintien de la sûreté et l'atteinte des performances et des spécifications. L'établissement des protocoles de conduite des procédés passe, en premier lieu, par l'identification des paramètres opératoires sensibles, c'est-à-dire ceux pour lesquels une faible variation peut avoir un impact fort sur le fonctionnement du procédé. Les analyses de sensibilité réalisées à l'aide du code PAREX (cf. chapitre précédent) ont permis de mettre en évidence ces paramètres opératoires et les points de suivi pertinents pour rendre compte de l'état du procédé.

D'une manière générale, les principaux éléments à suivre sont les actinides majeurs (U, Pu), les actinides mineurs (Am, Np) et certains lanthanides (Nd, Sm). Si le suivi en ligne par spectrophotométrie est déjà plus ou moins opérationnel pour U, Pu et Am, il est nécessaire d'améliorer ou de développer des techniques analytiques en ligne des éléments mentionnés ci-dessus. Au-delà de ce besoin prioritaire, le suivi d'autres cations (Mo, Pd, Ru, Fe, Tc) ainsi que la mesure précise de pH et d'acidité en haute activité permettraient d'améliorer le pilotage notamment lorsque ces procédés seront mis en œuvre industriellement.

2.1.7. CONCLUSION SUR LE DÉVELOPPEMENT DES PROCÉDÉS HYDRO-MÉTALLURGIQUES POUR LA SÉPARATION DES ACTINIDES MINEURS

Dans le cadre de la loi de juin 2006 sur la gestion durable des matières et déchets radioactifs, de nombreuses études et essais ont été réalisés pour mettre au point des procédés de séparation des actinides mineurs permettant de répondre aux différentes options de gestion envisagées.

Le Tableau 4 présente la synthèse des développements effectués sur chacune des voies étudiées.

Ainsi au terme de l'année 2012, on dispose de solutions éprouvées à l'échelle du laboratoire mais en conditions représentatives, pour chacune des voies étudiées pour la séparation des actinides mineurs :

- séparation de l'américium et du curium (procédés DIAMEX et SANEX, déjà validés en 2005, puis concepts optimisés en un seul cycle PALADIN et SANEX-TODGA en 2009) ;
- séparation groupée des actinides (procédé GANEX, validé en 2008) ;
- séparation du seul américium (procédé EXAm, validé en 2010).

Pour compléter l'ensemble des essais déjà effectués, il est prévu de réaliser, en 2013 et 2014, une démonstration intégrale du recyclage de l'américium depuis la dissolution de

TABLEAU 4 : SYNTHÈSE DES ESSAIS DE VALIDATION DES DIFFÉRENTS PROCÉDÉS DE SÉPARATION DES ACTINIDES MINEURS (N'EST MENTIONNÉ POUR CHAQUE PROCÉDÉ QUE L'ESSAI LE PLUS ABOUTI)

TYPE SEPARATION	PROCÉDÉ	OPÉRATION	ANNÉE ESSAI	INSTALLATION	APPAREILS D'EXTRACTION	SOLUTION UTILISÉE	DURÉE ESSAI	PERFORMANCES	
								Taux récupération des éléments d'intérêt	Facteur décontamination impuretés
Séquentielle (en 2 cycles)	PUREX adapté	séparation Np	2005	CBP	CP	solution active réelle (solution de dissolution)	45 h	Np > 99%	
	DIAMEX (1er cycle)	séparation An(III)+Ln(III)	2005	CBP	CP	solution active réelle (raffinat PUREX)	60 h	Am,Cm > 99,9%	$FD_{Zr} > 880$ $FD_{Mo} = 108$ $FD_{Fe} = 10$
	SANEX (2e cycle)	séparation An(III)/Ln(III)	2005	C11/C12	CC+EC	solution active réelle (production DIAMEX)	35 h	Am,Cm > 99,9%	$FD_{Nd} \sim 80$
	DIAMEX 2	séparation Am/Cm	2002	C17	MD	solution active reconstituée	90 h	Am = 99,3%	$FD_{Cm} \sim 150$
Séquentielle (en 1 cycle)	DIAMEX-SANEX/HDEHP (PALADIN)	An(III)/PF	2000	C11/C12	EC	solution active réelle (raffinat PUREX)	20 h	Am > 99,9% Cm ~ 99,7%	$FD_{Nd} \sim 900$
	DIAMEX-SANEX/HDEHP (avec séparation des extractants)	An(III)/PF	2008	G1	CC-MD-EC	solution simulée	75 h	Nd > 99%	
	SANEX-TODGA	An(III)/PF	2009	CBP	MD	solution active réelle (raffinat PUREX)	30 h	Am>99,8% Cm>99,9%	$FD_{Nd} > 250$
Groupée	GANEX 1	séparation sélective uranium	2008	CBP	MD	solution active réelle (solution de dissolution)	60 h	U>99,99%	$FD_{Ru} > 15000$
	GANEX 2	récupération Pu+AM	2008	CBP	MD	solution active réelle (raffinat GANEX 1)	50 h	compris entre 99,8% et 99,9% pour chaque actinide	$FD_{An/Nd} \sim 16$ $FD_{An/Zr} > 86$
Spécifique	EXAm	extraction Am seul	2010	CBP	MD	solution active réelle (raffinat PUREX)	60 h	Am : 98,3%	$FD_{Am/Cm} \sim 500$ $FD_{Am/Nd} \sim 340$

Légende : INSTALLATION

CBP : Chaîne blindée procédé (ATALANTE)
C11/C12 : Cellules blindées (ATALANTE)
C17 : Cellule blindée (ATALANTE)
G1 : Hall d'essais inactifs ou en U (Marcoule)

APPAREILS D'EXTRACTION

CP : colonne pulsée
CC : colonne à effet Couette
MD : mélangeur-décanteur
EC : extracteur centrifuge

quelques kilogrammes de combustible usé jusqu'à l'élaboration de pastilles $(U,Am)O_2$. Mettant en œuvre successivement le procédé COEX™ puis le procédé EXAm ainsi que les étapes ultérieures de conversion (cf. chapitre 3.3.1) et de fabrication de pastilles contenant de l'américium (cf. chapitre 3.3.2), cet essai d'ensemble constituera un aboutissement des études de séparation-conversion menées dans le cadre de la loi de juin 2006.

Le cœur de ces divers procédés étant validé, il s'agit d'en poursuivre la consolidation pour approcher les conditions industrielles des procédés en termes de mise en œuvre (appareils, conduite), de complétude (fonctions annexes) et de robustesse (fonctionnement dans la durée). L'horizon pour l'aboutissement de ces études se situe au plus tôt dans les années 2020 avec la réalisation d'une installation pilote de séparation des actinides mineurs pour mener, si besoin, des expériences de transmutation à échelle significative.

2.2. LES PROCÉDÉS PYROCHIMIQUES

[DTS-10]

À partir des années 90, les études américaines sur l'électroraffinage de combustibles métalliques ont suscité dans plusieurs pays un regain d'intérêt pour les procédés de traitement non aqueux. En effet, de par leur compacité de principe, leur robustesse vis-à-vis de l'irradiation et leur aptitude à traiter des composés difficilement solubles en milieu aqueux, les procédés pyrochimiques présentent des potentialités intéressantes que l'on se doit d'évaluer, les recherches étant essentiellement menées aux Etats-Unis et en Corée du Sud, à des fins de traitement de combustibles usés.

Le travail réalisé au CEA, depuis le début des années 2000, a eu pour premier objectif d'acquérir un niveau d'expertise suffisant pour pouvoir se prononcer sur les applications potentielles des procédés pyrochimiques dans le cycle du combustible nucléaire. Dans ce cadre, les voies en cours d'investigation dans le monde qui pouvaient conduire à un cœur de procédé de séparation, ont fait l'objet d'une évaluation soit directement au travers de travaux expérimentaux propres, soit indirectement au travers de collaborations.

Deux voies seraient susceptibles de constituer un cœur de procédé pour le traitement de combustibles ou de cibles irradiées :

- L'électroraffinage en milieu chlorure, initialement développé par le DOE (Department of Energy) à Argonne et testé à l'échelle pilote à l'INL[10], qui est en cours d'études dans les pays envisageant l'utilisation de combustibles métalliques dans les RNR (Corée du Sud, Inde…). En effet, les combustibles métalliques se heurtent à des difficultés de mise en solution en milieu nitrique et les procédés pyrochimiques semblent mieux adaptés pour traiter ce type de combustibles, en particulier pour des durées de refroidissement courtes.
- L'extraction réductrice liquide-liquide en milieu fluorure est un procédé original, développé à l'échelle du laboratoire par le CEA, et est particulièrement adapté au traitement des combustibles céramiques oxydes et carbures. Les étapes principales du procédé ont fait l'objet d'expérimentations au laboratoire sans faire apparaître de difficultés majeures. Les essais n'ont néanmoins été menés qu'avec des produits simulés et les performances de certaines étapes du procédé demanderaient à être vérifiées sur du combustible irradié réel.

Parallèlement, des études système ont été menées pour une première optimisation du schéma de procédé en proposant des aménagements visant à limiter fortement la production de déchets (un des points faibles majeurs des procédés pyrochimiques) et à fournir une première image de ce que pourrait être une unité de traitement industrielle. Ces premières études semblent montrer qu'une usine pyrochimique serait au moins aussi complexe qu'une usine hydrométallurgique dans le nombre d'opérations à effectuer.

Dans ces conditions, compte tenu de l'avance actuelle de la technologie hydrométallurgique et de ses atouts pour le traitement de combustibles oxydes, celle-ci a été retenue pour un éventuel premier déploiement d'une installation de séparation des actinides mineurs.

10 – Idaho National Laboratory (USA).

3. AVANCÉES TECHNIQUES SUR LA TRANSMUTATION DES ACTINIDES MINEURS 27

3.1. Rappel de la physique de la transmutation 27
3.2. Résultats et enseignements des expériences de transmutation..... 31
3.2.1. Mode homogène 31
3.2.2. Mode hétérogène 32
3.2.2.1. Mode hétérogène sur cible inerte 32
3.2.2.2. Mode hétérogène en couvertures (CCAM) 33
3.2.3. Transmutation en ADS 34
3.3. Résultats des recherches sur la fabrication des combustibles..... 35
3.3.1. Les procédés de conversion en oxyde 35
3.3.1.1. Coconversion oxalique..... 35
3.3.1.2. Procédés alternatifs..... 36
3.3.2. Les procédés de fabrication des pastilles d'oxyde d'actinides 36
3.3.3. Les technologies de fabrication de combustibles porteurs d'actinides mineurs 37

3. AVANCÉES TECHNIQUES SUR LA TRANSMUTATION DES ACTINIDES MINEURS

Le principe de la transmutation appliquée au traitement des déchets nucléaires consiste à modifier les noyaux des éléments à vie longue afin de transformer les isotopes concernés en des corps stables ou à durée de vie beaucoup plus courte. Le neutron est de loin la particule la mieux adaptée à cette transformation et son utilisation à cette fin est connue depuis longtemps.

3.1. RAPPEL DE LA PHYSIQUE DE LA TRANSMUTATION

[DTS-11]

Les interactions nucléaires sont engendrées dans les réacteurs par collision des neutrons avec les noyaux présents. L'interaction peut avoir lieu sans capture du neutron incident : ce sont des chocs élastiques ou inélastiques qui ralentissent les neutrons et diffusent l'énergie. Par contre, si le noyau capture le neutron incident, il acquiert un excès d'énergie qu'il va libérer de différentes manières :

- En émettant un rayonnement ; on parle dans ce cas de réaction de capture puisque le neutron reste captif du noyau ; le neutron est alors « perdu » ;
- En se scindant en deux fragments de plus petite masse et en émettant simultanément deux à trois neutrons. On parle alors de fission, réaction qui libère une importante quantité d'énergie. Les fragments formés, appelés produits de fission, sont au départ radioactifs, mais la majorité d'entre eux évolue rapidement vers des noyaux stables.

C'est bien évidemment cette seconde réaction qu'il faut privilégier pour transmuter efficacement les actinides mineurs. La capture génère des actinides de rang plus élevé et ne fait généralement que déplacer le problème.

La probabilité qu'a un neutron de provoquer l'une ou l'autre de ces deux réactions est caractérisée par une grandeur dénommée section efficace. Celle-ci est fonction de la nature du noyau et de l'énergie du neutron (Figure 19). Sans entrer dans les détails de la physique nucléaire, on retiendra les points suivants :

- Globalement, les sections efficaces de capture diminuent lorsque l'énergie des neutrons augmente. A l'exception du domaine des résonances où les sections efficaces vont varier très brutalement, les captures seront d'autant moins probables que les neutrons seront rapides ;
- Il en est de même pour les sections efficaces de fission, au moins jusqu'à des énergies de l'ordre du MeV. Mais il faut à ce stade distinguer deux familles de noyaux :
  - Les noyaux comportant un nombre impair de neutrons (^{242}Am, ^{243}Cm, ^{245}Cm…) pour lesquels la barrière [11] de fission est faible. La fission sera plus probable que la capture quelle que soit l'énergie du neutron absorbé. Ces noyaux sont dits « fissiles » ;
  - Les noyaux comportant un nombre pair de neutrons (^{237}Np, ^{241}Am, ^{243}Am, ^{244}Cm…) seront au contraire très peu fissiles et les probabilités de capture neutronique seront généralement supérieures de plusieurs ordres de grandeur à celles de fission. Ces noyaux sont dits « capturants ». Néanmoins, lorsque le neutron incident apporte suffisamment d'énergie pour pouvoir franchir la barrière de fission, la probabilité de fission s'accroît sensiblement et devient alors supérieure à la probabilité de capture.
- Les noyaux fissiles pourront donc être transmutés efficacement dans n'importe quel spectre neutronique mais bénéficieront de sections efficaces plus importantes avec les neutrons de faible énergie ;
- Les noyaux capturants ne pourront fissionner directement qu'avec des neutrons de forte énergie, ce qui peut laisser entendre que leur transmutation requiert obligatoirement des neutrons de ce type. La réalité est plus nuancée car leur transmutation peut aussi passer par des réactions successives avec les neutrons d'énergie moindre : une première absorption transformant le noyau capturant en un noyau fissile et la seconde provoquant la fission de ce dernier.

La vitesse de transmutation d'un radionucléide sera d'autant plus grande que la section efficace d'absorption des neutrons sera élevée mais aussi que le flux de neutrons sera important. Les différents types de réacteur favoriseront différemment ces deux paramètres clés. Par exemple, les réacteurs à neutrons thermiques (REP) combineront des sections efficaces élevées mais un flux neutronique relativement faible. A l'inverse, pour les réacteurs à neutrons rapides (RNR), les sections efficaces seront réduites mais le flux neutronique environ 10 fois plus élevé.

Ainsi, du strict point de vue de la vitesse de transmutation, les REP pourraient être plus efficaces que les RNR, grâce à des sections efficaces beaucoup plus élevées dans le domaine thermique que dans celui des neutrons rapides, avantage conservé malgré un flux neutronique plus faible dans les REP que dans les RNR.

Malgré cet avantage théorique, les neutrons rapides apparaissent mieux adaptés à la transmutation des actinides mineurs. La principale raison est liée au bilan neutronique de la transmutation. En effet, celle-ci est à la fois consommatrice (par les captures) et génératrice (par les fissions) de neutrons et

11 – D'une manière simplifiée, la barrière de fission représente l'énergie d'excitation que doit atteindre le noyau composé (noyau initial ayant absorbé un neutron) pour fissionner. Elle est l'analogue de l'énergie d'activation des réactions chimiques.

FIGURE 19 : SECTIONS EFFICACES DE CAPTURE (EN VERT) ET DE FISSION (EN BLEU) POUR UN NOYAU FISSILE (À GAUCHE) OU CAPTURANT (À DROITE)

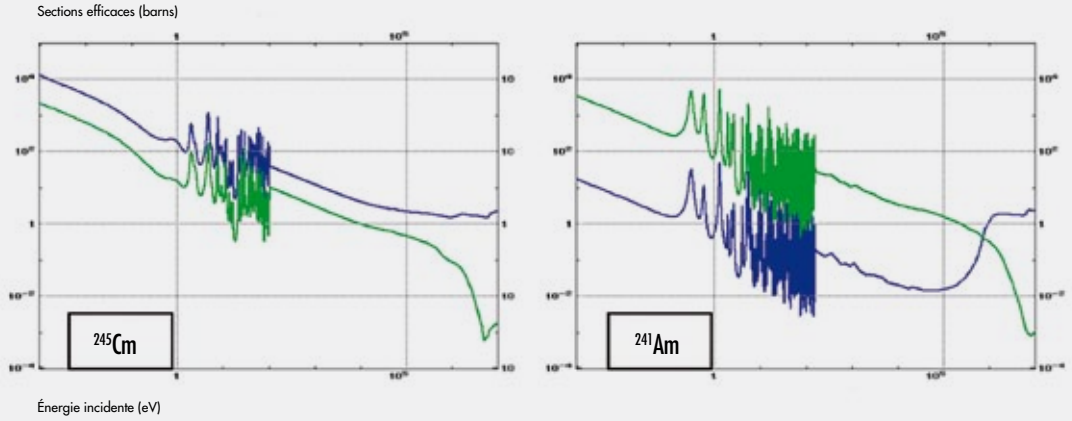


FIGURE 20 : CHAÎNES D'ÉVOLUTION DES ACTINIDES MINEURS SOUS FLUX NEUTRONIQUE (EN ROUGE, LES RADIONUCLÉIDES QUI DISPARAISSENT PRÉFÉRENTIELLEMENT PAR FISSION)

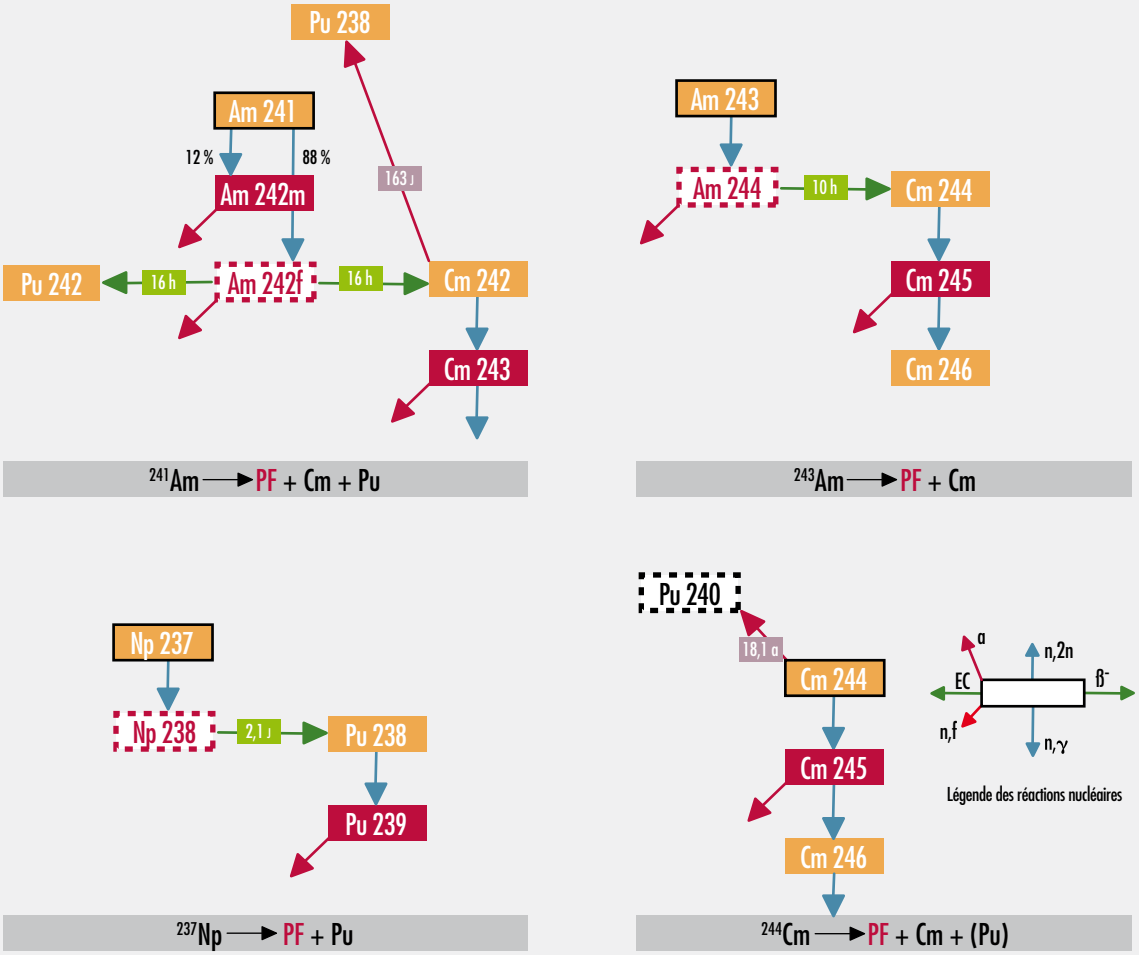
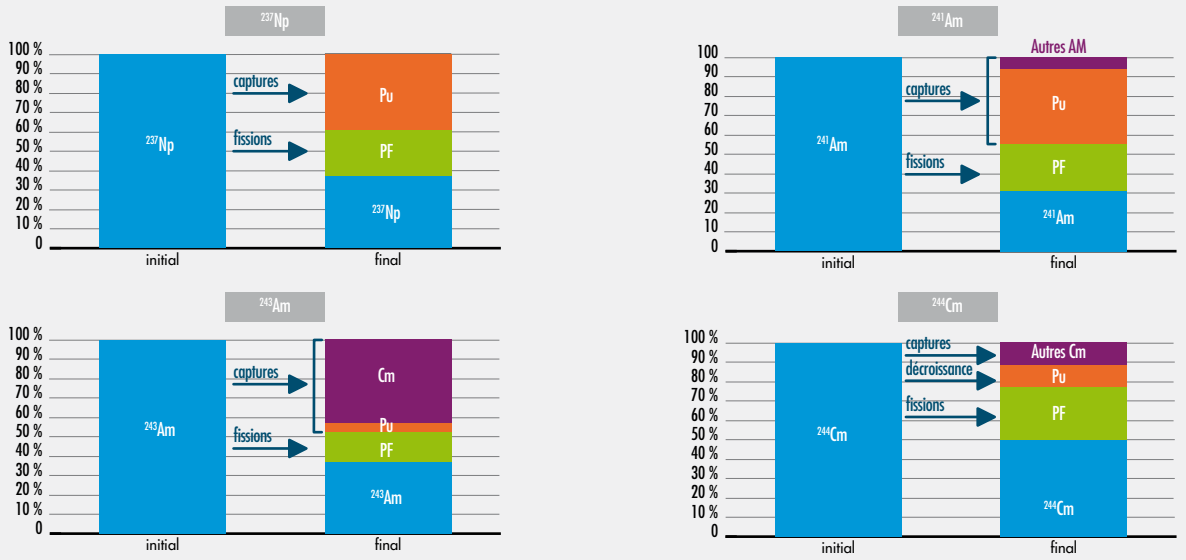


FIGURE 21 : ÉVOLUTION DES QUATRE PRINCIPAUX ISOTOPES D'ACTINIDES MINEURS APRÈS ~5 ANNÉES D'IRRADIATION DANS UN CŒUR DE RÉACTEUR À NEUTRONS RAPIDES. (FLUX : 3,4 10^{15} n/cm²/s, 1 700 JEPP)



son impact dépend du type de réacteur considéré. Comme la grande majorité des actinides mineurs (^{237}Np, ^{241}Am, ^{243}Am, ^{244}Cm) sont des noyaux capturants en spectre thermique, leur transmutation sera dans ce cas consommatrice de neutrons et pénalisera le bilan neutronique du réacteur, nécessitant de surenrichir le combustible en matière fissile. Au contraire, avec les neutrons rapides qui tendent à minimiser les réactions de capture et favorisent les réactions de fission pour l'ensemble des actinides, la transmutation apportera un surcroît de neutrons.

Mais, même en spectre rapide, la transmutation des actinides mineurs est un processus complexe où le noyau initial va subir une chaîne de transformations ne menant pas toujours à la fission. La Figure 20 décrit ce processus pour les quatre principaux isotopes d'actinides mineurs.

La Figure 21 illustre le devenir d'une quantité donnée de chacun des quatre principaux actinides mineurs après 5 années d'irradiation dans le cœur d'un RNR. On notera en particulier que :

- Dans ces conditions d'irradiation, il n'est pas possible d'obtenir une disparation complète des éléments considérés en une seule passe d'irradiation. Il reste en effet entre 30 % (pour l'^{241}Am) et 50 % (pour l'^{244}Cm) de l'élément initial qui doit donc être recyclé ;
- Le taux de fission, c'est-à-dire le taux d'atteinte du véritable objectif de la transmutation, tourne autour de 25 % (seulement 15 % pour ^{243}Am) ;
- La fraction complémentaire qui traduit toutes les évolutions par captures neutroniques n'ayant pas abouti à une fission, représente donc 25 à 50 % de la quantité initiale et dépasse souvent la fraction qui a effectivement fissionné.

La transmutation des actinides mineurs est donc aussi un processus lent dont les durées caractéristiques dépassent généralement largement le temps de séjour du combustible en réacteur. Leur transmutation effective passe obligatoirement par un multirecyclage des éléments considérés.

Au premier ordre, la quantité de matière transmutée dans un système dépend de trois paramètres :

- La vitesse de transmutation, essentiellement régie par le spectre et le flux neutronique comme on l'a vu plus haut ;
- Le temps d'irradiation ;
- La quantité de matière placée sous irradiation (inventaire dans les réacteurs).

La quantité de matière placée sous irradiation peut donc être vue comme un paramètre permettant de contrôler la quantité de matière transmutée. Cela n'est vrai que dans certains cas. Par exemple, s'il s'agit de transmuter un stock existant d'actinides mineurs, il peut être avantageux de minimiser la durée de l'opération ou le nombre de réacteurs mis en œuvre en chargeant au maximum les réacteurs assurant la transmutation. Il existe cependant des limites car, comme on le verra dans ce qui suit, l'ajout d'actinides mineurs dans un cœur de réacteur a des incidences sur ses caractéristiques physiques, qui imposent généralement de ne pas dépasser certaines teneurs pour respecter les critères de sûreté.

Si l'on considère un parc autorecyclant ses propres actinides mineurs, la quantité en réacteur est cette fois entièrement déterminée par le système : la quantité recyclée venant s'ajouter à la quantité produite, il y a augmentation de l'inventaire dans les réacteurs, et par conséquent de la quantité transmutée jusqu'à ce que celle-ci devienne égale à la quantité produite. On obtient alors une stabilisation de l'inventaire et la production ultérieure d'électricité ne s'accompagne plus d'une production supplémentaire d'actinides mineurs. L'inventaire étant déterminé, le nombre de réacteurs chargés en actinides mineurs reste une variable d'ajustement tant qu'il est possible de respecter les limitations spécifiées ci-après.

La principale limitation à l'introduction d'actinides mineurs en réacteur de type RNR est liée à leur impact défavorable sur les coefficients de réactivité et sur les cinétiques du cœur. Les principales grandeurs affectées sont l'effet de réactivité en cas de vidange du caloporteur, l'effet Doppler et la fraction de neutrons retardés.

L'effet de vidange du caloporteur est un effet de réactivité induit par une perte du caloporteur sodium (fuite, ébullition, passage d'une bulle de gaz…). Cet effet existant même en absence d'actinides mineurs [12], est amplifié par la présence de Np et d'Am et peut devenir inacceptable au-delà d'une certaine teneur de ces éléments dans le cœur du réacteur. En revanche, dans le cas d'un RNR refroidi au gaz (RNR-G), cet effet est pratiquement inexistant.

L'effet Doppler correspond à un élargissement des résonances des sections efficaces quand la température du combustible s'élève. Il entraîne une augmentation des captures neutroniques de certains isotopes (^{238}U en particulier) et une diminution immédiate de la réactivité. Il s'agit donc d'un effet de contre-réaction primordial pour la stabilité des cœurs. Le remplacement d'^{238}U par des actinides mineurs va jouer à la fois sur la quantité d'isotopes résonnants et sur la densité neutronique dans la zone d'énergie concernée, le cumul de ces deux effets entraînant une réduction très sensible de l'effet Doppler.

La fraction de neutrons retardés (β_{eff}) est un élément essentiel du contrôle de la réaction en chaîne dans un réacteur nucléaire. En effet, pour que celle-ci reste contrôlable, il est impératif de maintenir la réactivité en dessous de cette valeur β_{eff}, faute de quoi se produirait une divergence extrêmement rapide du flux de neutrons (ce que l'on appelle la criticité prompte, non maîtrisable avec les moyens de contrôle du réacteur). Or, les actinides mineurs (mais aussi le plutonium) présentent des β_{eff} nettement plus faibles que ceux de l'uranium et leur introduction dans le cœur du réacteur a donc pour effet de diminuer la marge par rapport à la criticité prompte.

La réduction conjointe de l'effet Doppler et de la fraction de neutrons retardés associée à l'augmentation de l'effet de vidange conduira donc à limiter à quelques pourcents (2,5 à 3 % pour un RNR-Na, 5 % pour un RNR-G) la teneur maximale admissible d'actinides mineurs dans le cœur des réacteurs. La valeur précise dépend du concept de cœur et ne peut s'apprécier que sur la base d'un dessin précis et d'une étude complète de sûreté.

La quantité maximale d'actinides mineurs pouvant être transmutée en mode homogène est donc limitée par cette teneur maximale et par le nombre de RNR mis en œuvre. On verra plus loin que cette limite n'est pas gênante sauf dans la période de transition entre REP et RNR, pendant laquelle il n'y a pas nécessairement adéquation entre la quantité d'actinides mineurs à transmuter et le nombre de RNR déployés.

12– La réduction de l'amplitude de l'effet de vidange sodium a été retenu comme un impératif pour la conception des cœurs des RNR de 4e génération. Un concept innovant de Cœur à Faible effet de Vidange (CFV) a été développé pour répondre à cette exigence (voir le tome 3 du présent dossier).

Si les actinides mineurs sont recyclés en mode hétérogène sous la forme de cibles introduites dans le cœur, les performances de transmutation seront limitées par le nombre de cibles acceptables dans le cœur, ce qui conduit à des limites assez proches des masses d'actinides mineurs admissibles en mode homogène.

En revanche, si ces cibles sont placées dans les zones périphériques du cœur ou en couvertures, l'impact des actinides mineurs sur la sûreté des cœurs est réduit et il est alors possible d'envisager des cibles fortement chargées. Mais il apparaît alors d'autres contraintes liées, par exemple, à la puissance thermique libérée en cours d'irradiation qui vont limiter en pratique à une vingtaine de pourcents la teneur d'actinides mineurs présente dans ces objets. Le nombre d'emplacements disponibles dans le cœur est fixé par des considérations géométriques : il est par exemple possible d'admettre jusqu'à deux rangées de couvertures chargées en actinides mineurs placées en périphérie du cœur.

Dans ces conditions, la quantité d'AM introduite en couvertures pourrait être de 2 à 3 fois supérieure à celle permise par le mode homogène. Néanmoins, les zones périphériques étant pénalisées par un flux neutronique moindre que celui du cœur, il est nécessaire, pour atteindre des performances de transmutation comparables à celles du mode homogène, d'accroître notablement la durée d'irradiation ce qui contrebalance en grande partie l'avantage de la plus grande capacité.

Une toute autre approche pour dépasser les limites évoquées ci-dessus, qui sont liées à la sûreté des cœurs critiques, est d'introduire les actinides mineurs dans des systèmes sous-critiques appelés systèmes hybrides ou ADS (Accelerator-Driven System). La marge de sous-criticité offerte par ces systèmes permet d'accepter des pénalités plus importantes sur les coefficients de réactivité et donc d'admettre des chargements supérieurs en actinides mineurs, pouvant atteindre plusieurs dizaines de pourcents dans le cœur-même. Il est également possible d'utiliser un combustible sans uranium (solution non viable dans un réacteur critique à cause d'un β_{eff} et d'une contre-réaction Doppler trop faibles) ce qui évite la production de nouveaux transuraniens (Pu et AM) et peut améliorer les performances nettes de transmutation.

Néanmoins, pour fonctionner, ces cœurs doivent être couplés à une source externe de neutrons, constituée d'un accélérateur de protons et d'une source de spallation. En effet l'interaction de protons de haute énergie (au moins plusieurs centaines de MeV) avec une cible suffisamment épaisse pour arrêter le faisceau, provoque l'éjection d'un grand nombre de particules parmi lesquelles on compte de nombreux neutrons. Ainsi, chaque proton incident peut produire plusieurs dizaines de neutrons qui seront utilisés pour entretenir la réaction en chaîne dans le cœur sous-critique.

Si l'accélérateur de protons s'arrête, la production de neutrons s'arrête de même, provoquant l'extinction immédiate de la réaction en chaîne dans le cœur sous-critique. Cet argument, très souvent mis en avant par les promoteurs des ADS, participe effectivement à la sûreté de ces systèmes mais n'en est qu'un élément parmi beaucoup d'autres (par exemple les

conséquences d'une perte de refroidissement restent les mêmes que dans un réacteur critique quant à l'évacuation de la puissance résiduelle). Seules des études de risques appliquées à un cas concret seront susceptibles d'établir les réels atouts et limites de ces systèmes, qui, contrairement aux RNR, ne sont pas prévus pour une production massive d'électricité.

3.2. RÉSULTATS ET ENSEIGNEMENTS DES EXPÉRIENCES DE TRANSMUTATION

La transmutation des actinides mineurs en réacteur à neutrons rapides peut s'envisager selon divers modes : la transmutation homogène où les actinides mineurs à transmuter sont introduits en faible quantité (quelques pourcents) dans le combustible nourricier des RNR, la transmutation hétérogène où les actinides mineurs sont concentrés dans une matrice inerte sur le plan neutronique dans des assemblages cibles spécifiques du cœur RNR (≤20 vol %), la transmutation hétérogène en couvertures où les actinides mineurs sont dilués en faible quantité (<10-20 %) dans le combustible fertile en périphérie du cœur RNR et enfin la transmutation en réacteurs dédiés, les ADS, où le combustible de transmutation, sans uranium, fortement enrichi en actinides mineurs et en plutonium sur support inerte (<50 vol %), fait office de combustible nourricier. Pour ce dernier type de combustible, une grande synergie existe avec les cibles de transmutation sur support inerte.

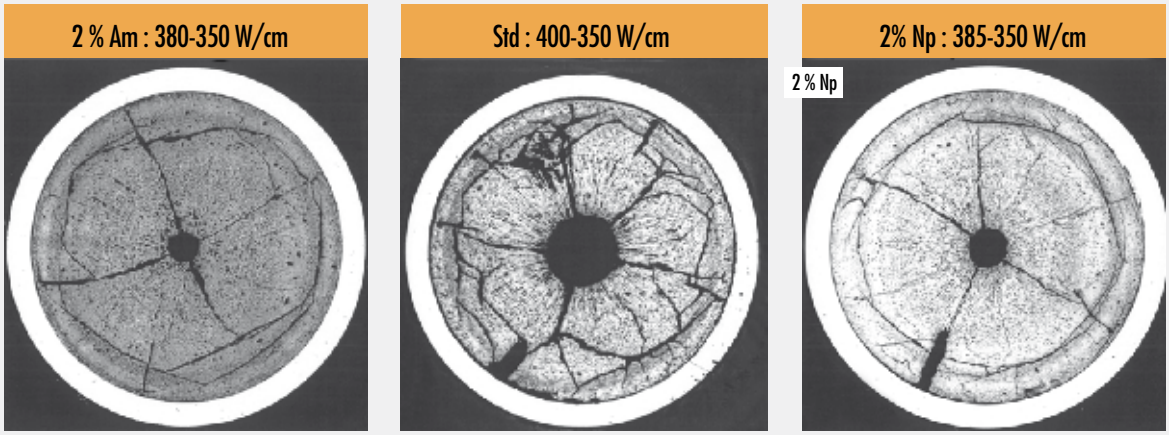
Les propriétés thermiques, physiques et thermochimiques de ces nouveaux combustibles de transmutation diffèrent, plus ou moins significativement selon les concepts, de celles des combustibles sans actinides mineurs, de même que leurs conditions de fonctionnement en réacteur. Aux premiers rangs des propriétés qui ont une importance capitale pour le comportement de ces combustibles et cibles de transmutation, se trouvent la conductivité thermique, la température de fusion, le potentiel d'oxygène, et la tension de vapeur des espèces. La présence accrue d'hélium dans ces combustibles et cibles, engendrée par la décroissance alpha des radionucléides à transmuter, constitue également un paramètre de tout premier plan à considérer. Aussi, un important programme de R&D [DTS-12] a dû être initié, dans le cadre de la loi sur la gestion des déchets radioactifs de 1991 et poursuivi dans le cadre de la loi de 2006, afin d'étudier le comportement de ces nouveaux combustibles sous flux, et être en mesure d'optimiser leur performance de transmutation.

3.2.1. MODE HOMOGÈNE [DTS-13]

Dans ce mode, les éléments à transmuter sont dilués dans du combustible standard à une concentration de quelques pourcents. L'objet des études expérimentales est d'examiner les effets de l'ajout d'actinides mineurs sur le comportement du combustible sous irradiation : les effets les plus notables attendus étant une modification des propriétés thermiques (baisse de la conductivité thermique et de la température de fusion) et une production très supérieure d'hélium pouvant entraîner un gonflement du combustible et une fragilisation de la gaine.

La première expérience intégrale d'irradiation de combustible pour la transmutation en mode homogène a été réalisée dans les années 1980. Cette expérience, dénommée Superfact, a été réalisée conjointement par l'ITU (Institut des Transuraniens, Karlsruhe) et le CEA. Le combustible de type $(U,Pu)O_2$ qui contenait 2 % de ^{237}Np ou 2 % de ^{241}Am, a été irradié dans le réacteur Phénix à Marcoule à un taux de combustion maximal de l'ordre de 70 GWj/t, correspondant à des taux de transmutation des actinides mineurs d'environ 30 %. Les examens réalisés post-irradiation ont montré que les aiguilles contenant des actinides mineurs ne présentaient pas d'anomalies dans leur comportement si ce n'est une production et un relâchement d'hélium supérieurs à ceux du combustible standard mais sans effet néfaste sur la gaine.

FIGURE 22 : EXPÉRIENCE SUPERFACT - MICROGRAPHIES DES PASTILLES DE COMBUSTIBLES CONTENANT DES ACTINIDES MINEURS ET DE COMBUSTIBLE STANDARD (AU CENTRE)



Cette irradiation de type intégrale a été complétée dans les années 2000 par des irradiations analytiques destinées à améliorer la compréhension du comportement sous irradiation :

- L'irradiation AM1 a été réalisée en 2007 dans le réacteur japonais Joyo. Son principal objectif était de démontrer l'absence de fusion de combustible lorsque sa température est maximale en début de vie. Ainsi, malgré des teneurs relativement élevées d'actinides mineurs (jusqu'à 5 %) et une puissance élevée (430 W/cm) aucune fusion du combustible n'a été mise en évidence.
- Les irradiations AFC-2C et 2D réalisées dans le réacteur américain ATR visent à étudier la corrosion de la gaine et le comportement thermique des pastilles pour des taux de combustion élevés (100 à 250 GWj/t). Les résultats ne sont pas encore disponibles.

La faible puissance linéique et le taux de combustion limité de l'expérience Superfact ne permettent pas d'apporter la démonstration complète de faisabilité technique de la transmutation en mode homogène. Les données relatives à l'effet des actinides mineurs sur les performances du combustible ainsi que sur la sûreté (marge sur la fusion, risque de rupture de gaine) sont encore insuffisantes pour assurer une qualification totale de ce type de combustible.

C'est pourquoi un programme de qualification a été défini dans le cadre du Forum international génération IV (GIF) et a fait l'objet en 2007 d'un contrat de collaboration entre le DOE, JAEA et le CEA. Dénommé Gacid (Global Actinides Cycle International Demonstration), le programme prévoit la fourniture des matériaux de base par le DOE, la fabrication des combustibles au CEA et les irradiations dans les réacteurs japonais Joyo et Monju. Il comporte trois étapes de démonstration : (I) ^{241}Am+^{237}Np à l'échelle d'une aiguille, (II) tous les AM à l'échelle d'une aiguille, (III) tous les AM à l'échelle d'un assemblage ou d'un faisceau d'aiguilles. L'ensemble du programme doit être mené sur une période de 20 à 25 ans.

Le contexte actuel est peu favorable à la réalisation de cette expérience. L'indisponibilité des réacteurs Joyo et Monju constitue évidemment un élément pour le moment rédhibitoire. En attendant des informations sur le redémarrage ou non de ces réacteurs, les discussions se poursuivent pour être en mesure d'établir un programme concret et adapté à cette situation.

3.2.2. MODE HÉTÉROGÈNE

3.2.2.1. MODE HÉTÉROGÈNE SUR CIBLE INERTE

Dans ce mode, les éléments à transmuter sont concentrés dans des assemblages spécifiques chargés dans des zones particulières du cœur. L'idée initiale consistait à placer les actinides mineurs dans une matrice inerte du point de vue neutronique, c'est-à-dire dont l'absorption neutronique est faible et ne conduit pas à former de nouveaux éléments radioactifs. L'objectif était alors d'atteindre un taux de fission élevé des actinides en un seul passage en réacteur.

De nombreuses études ont été menées en France et en Europe pour identifier les matrices les plus adaptées. Celles-ci ont été préalablement sélectionnées sur la base de leurs propriétés physico-chimiques puisqu'elles représentent le constituant majoritaire et déterminant pour la bonne tenue du combustible lors de l'irradiation. Les expériences d'irradiation Matina 1&1A [DTS-14B], initiées en 1993 et poursuivies jusqu'en 2008, ont eu pour objectif de tester dans le réacteur Phénix l'effet d'un flux neutronique rapide, combiné ou non à celui des produits de fission, sur le comportement de neuf matériaux candidats : la magnésie (MgO), le spinelle ($MgAl_2O_4$), l'alumine (Al_2O_3), l'aluminate d'yttrium ($Y_3Al_5O_{12}$) ou YAG, le nitrure de titane (TiN) ainsi que quatre métaux (tungstène, niobium, vanadium et chrome).

La magnésie a été identifiée comme l'un des meilleurs candidats potentiels et a été sélectionnée comme matrice inerte céramique de référence. Tous les autres matériaux ont été écartés pour des raisons diverses, en particulier :

- le spinelle et le YAG à cause d'une propension au gonflement dû à une amorphisation de leur structure cristalline par les produits de fission ;
- le niobium et le vanadium pour leur tendance à l'oxydation ;
- le chrome en raison de sa réactivité chimique élevée avec les oxydes d'actinides ;
- le tungstène à cause d'une absorption trop importante des neutrons.

Pour conforter l'intérêt de la magnésie, deux expériences d'irradiation supplémentaires ont été réalisées :

- L'expérience Bora-Bora [DTS-14A] d'irradiation d'aiguilles PuO_2 (40 %) + MgO réalisée dans le réacteur russe BOR-60. Il s'agissait d'acquérir des informations sur le gonflement de la matrice sous flux de neutrons rapides couplé aux dommages résultant des fissions du plutonium, pour des taux de combustion très élevés, proches de 200 GWj/t.
- L'expérience ECRIX-H [DTS-14C] dont les cibles étaient constituées d'oxyde d'américium microdispersé dans une matrice de magnésie. La teneur en américium était de 0,7 g/cm^3 correspondant à une teneur massique d'américium métal d'environ 0,17 g/g de cible. Les cibles ont été irradiées dans le réacteur Phénix pendant un temps équivalent à un peu moins d'une année à pleine puissance, dans un spectre neutronique modéré [13]. Le taux de fission atteint était proche de 250 GWj/t.

Ces expériences montrent que les cibles composites à support MgO présentent un comportement satisfaisant et un gonflement acceptable et compatible avec le dimensionnement d'aiguilles de transmutation, et ceci pour des taux de combustion et des taux de production d'hélium significatifs. De plus MgO représente un compromis acceptable entre les contraintes de fabrication, de traitement et de comportement sous irradiation. Néanmoins, le traitement de la matrice MgO est tout de même contraignant et nécessite de fabriquer davantage de colis de verres.

La voie des cibles à matrices inertes a fait l'objet d'un intérêt marqué dans le passé, comme en témoigne le grand nombre

13 – Dans cette expérience, le flux neutronique était modéré localement par un manchon d'hydrure de calcium. L'augmentation des sections efficaces résultant du ralentissement des neutrons combinée au flux élevé de neutrons au sein d'un RNR permet d'accroître l'efficacité de transmutation des actinides mineurs.

d'études et d'expériences d'irradiation menées en France et en Europe. Cependant, compte tenu des difficultés rencontrées et des questions restant en suspens, cette voie est aujourd'hui considérée comme moins attractive que celle mettant en œuvre une matrice uranium, présentée dans le chapitre suivant.

3.2.2.2. MODE HÉTÉROGÈNE EN COUVERTURES (CCAM) [DTS-15]

Au vu des nombreuses inconnues demeurant quant à l'utilisation d'une matrice inerte, son remplacement par de l'uranium offre des avantages évidents en termes de connaissance des combustibles et de faisabilité de traitement. Aussi, la transmutation hétérogène dans des couvertures chargées en actinides mineurs (CCAM) a été considérée comme une voie plus accessible. Néanmoins, cette proposition est relativement récente et ne bénéficie pour l'heure d'aucune étude expérimentale apportant des éléments de validation.

Le comportement sous irradiation de couvertures contenant une quantité significative d'actinides mineurs, reste empreint d'incertitudes. En effet, les évaluations neutroniques et thermomécaniques relatives aux assemblages CCAM ont mis en évidence une forte production de gaz sous irradiation, combinée à des niveaux de température modérés dans les pastilles (500 à 1500° C). Une telle combinaison pourrait être propice à un gonflement significatif des pastilles d'oxyde d'uranium chargées en AM et conduire à une interaction mécanique forte avec le matériau de gainage des éléments combustibles.

En effet, la chaîne de transmutation des AM (et en particulier celle de l'^{241}Am) comporte des émetteurs alpha à vie courte dont la désintégration va entraîner une production importante d'hélium (les particules α) s'ajoutant aux produits de fission gazeux (Xe, Kr). Ces gaz, peu ou pas solubles dans le combustible, participent dans un premier temps au gonflement du solide, puis diffusent plus ou moins rapidement, selon la température, vers le volume libre du crayon combustible. En même temps, des défauts créés par l'irradiation permettent la création de cavités qui vont piéger les gaz et conduire à la formation de bulles intra ou intergranulaires, responsables du gonflement gazeux du combustible. La modélisation de tous ces mécanismes est très complexe et nécessite des données généralement peu disponibles dans les gammes de concentrations en hélium, d'endommagement et de températures propres au fonctionnement des CCAM.

Dans le but d'apporter rapidement des éléments de faisabilité et à défaut de pouvoir réaliser en France des irradiations en RNR, des premières irradiations de CCAM seront effectuées en réacteur d'essais MTR[14] qui, grâce à leurs caractéristiques neutroniques et leur capacité d'instrumentation, permettent de réaliser des expériences à caractère analytique ou «semi-intégral». L'objectif est d'acquérir des premières données sur le relâchement d'hélium et sur le gonflement des pastilles de combustible sous irradiation dans les conditions de fonctionnement propres aux CCAM.

14 – MTR : acronyme de Material Testing Reactor (réacteur d'essai des matériaux comme le réacteur Osiris de Saclay ou le réacteur Jules Horowitz (RJH) en construction à Cadarache)

FIGURE 23 : SCHÉMA DU DISPOSITIF D'IRRADIATION EXPÉRIMENTAL

Un dispositif d'irradiation spécifique (appelé «mini-aiguille») a été conçu pour réaliser des expériences analytiques en se rapprochant de conditions isothermes (cf. Figure 23). Il est constitué de petits disques (4,5 mm de diamètre, 1 mm d'épaisseur) d'oxyde $(U, AM)O_2$ (en rose) disposés dans des creusets métalliques en alliage de molybdène (en bleu). Ces derniers absorbent le rayonnement gamma qu'ils transforment en chaleur de sorte à porter l'ensemble à la température voulue.

En cohérence avec les teneurs en AM attendues dans les CCAM, les échantillons contiennent 15 % d'^{241}Am. Plusieurs températures sont testées (de 500 à 1 500° C) et deux microstructures sont utilisées pour déterminer l'effet du taux de porosité ouverte sur le relâchement d'hélium. Enfin, deux vitesses de production d'hélium sont également testées (en diminuant la teneur en ^{241}Am) de façon à déterminer l'effet de ce paramètre sur le gonflement. Il est en effet nécessaire de vérifier que le gonflement des CCAM irradiées dans un spectre de MTR est «enveloppe» de celui attendu en spectre rapide afin de pouvoir ultérieurement exploiter à des fins de dimensionnement, les lois qui seront tirées de ces expériences.

Pour tester l'ensemble des configurations correspondant à la grille expérimentale dans un planning serré, deux irradiations successives et complémentaires ont été programmées à un an d'intervalle : l'irradiation Marios faite dans le réacteur HFR[15] (dans le cadre du projet européen Fairfuels) et l'irradiation Diamino menée dans le réacteur Osiris à Saclay, comportant respectivement quatre et six mini-aiguilles, chaque mini-aiguille étant dédiée à l'étude d'une configuration expérimentale.

L'irradiation Marios dans le HFR a débuté en mars 2011 et s'est terminée en mai 2012. Les premiers examens non destructifs sont attendus en fin d'année 2012. L'irradiation Diamino, initialement programmée début 2012, a été décalée de quelques mois suite à des difficultés de fabrication des mini-aiguilles. L'ensemble des examens post-irradiatoires sera réalisé dans la période 2012-2016.

Au-delà de ces premiers essais, il est projeté de réaliser des irradiations semi-intégrales sur des tronçons d'aiguilles comportant quelques pastilles : une irradiation dans le réacteur américain ATR est à l'étude dans le cadre d'une collaboration avec le DOE et une irradiation dans le réacteur HFR (irradiation Marine) a été initiée dans le cadre du projet européen Pelgrimm.

Les étapes suivantes comporteront des expériences d'irradiation sur des aiguilles complètes représentatives du concept final, allant jusqu'à une qualification à l'échelle d'un ou plusieurs assemblages. Le réacteur Astrid sera conçu pour permettre la réalisation de ces expériences [DTS-16].

15 – High Flux Reactor : réacteur à haut flux situé à Petten (Pays-Bas).

3.2.3. TRANSMUTATION EN ADS [DTS-17]

Par principe, les ADS sont conçus pour utiliser des cœurs sans uranium fortement chargés en actinides mineurs dont les contre-réactions thermiques (effet Doppler) et la faible proportion de neutrons retardés seraient rédhibitoires avec des cœurs critiques. Les combustibles pour ADS ont donc des caractéristiques très particulières qui les distinguent des combustibles RNR mais aussi des cibles étudiées dans le concept hétérogène.

Leurs spécificités seront résumées de la manière suivante :

- Il s'agit de combustibles sans uranium afin de limiter la formation de plutonium et d'actinides mineurs ;
- Ces combustibles contiendront jusqu'à 50 % volumique de composés d'actinides mineurs et de plutonium ;
- La transmutation des actinides dans la strate dédiée conduit à une dégradation très marquée du vecteur isotopique du plutonium avec une présence prédominante des isotopes pairs.

Ces caractéristiques ont pour conséquence une production importante d'hélium (par décroissance radioactive d'isotopes à vie courte comme le ^{242}Cm) et des propriétés thermiques dégradées (température de fusion, conductivité thermique, stabilité thermique) par rapport aux combustibles standards. Par ailleurs, leur fabrication et manutention induisent des contraintes d'ordre thermique et radiologique supérieures à celles associées à la mise en œuvre des combustibles pour cœurs critiques. La démonstration de la faisabilité des combustibles ADS, notamment en termes de comportement sous irradiation et fabrication, constitue donc un enjeu majeur pour le développement des réacteurs ADS.

Trois types de composés ont été envisagés : les oxydes, les nitrures et les alliages métalliques. Après une phase d'acquisition de connaissances de base sur les combustibles ADS ou leurs précurseurs (sans actinides mineurs), une évaluation réalisée dans un cadre collaboratif avec Euratom, US-DOE et JAEA a conduit à la sélection de trois types de combustibles dont on a souhaité comparer le comportement sous irradiation dans des conditions représentatives d'un ADS. Il s'agit de combustibles métalliques Pu-AM-40Zr, nitrures (Pu,AM,Zr)N et oxydes, qui ont été irradiés avec succès dans le réacteur Phénix entre 2006 et 2009 dans le cadre de l'expérience Futurix-FTA.

Dans le cadre du programme européen Eurotrans (qui a intégré les phases de conception, fabrication et irradiation de certaines aiguilles de l'expérience Futurix-FTA), les investigations ont ciblé le développement de combustibles adaptés au projet Efit portant sur un réacteur ADS de 400 MWth à caloporteur plomb. Le concept de combustible oxyde a alors été préféré pour bénéficier de l'expérience acquise sur les cibles de transmutation ; les combustibles nitrures constituant une solution de repli. Les combustibles de référence étudiés ont ainsi été des composites constitués d'une dispersion volumique de 30 à 50 % de particules fissiles oxydes dans une matrice inerte métallique (Mo) ou oxyde (MgO). Une alternative aux composites consistant en une solution solide $(Pu,AM,Zr)O_2$ a aussi été investiguée.

Trois irradiations Bodex, Helios et (partiellement) Futurix-FTA, ont été préparées puis réalisées :

- Bodex effectuée dans le réacteur HFR, a porté sur l'étude des mécanismes de relâchement d'hélium dans les matrices inertes molybdène, magnésie et zircone stabilisée, en remplaçant ^{241}Am par ^{10}B pour simuler la production d'hélium sans présenter les contraintes inhérentes à la manipulation de l'américium.
- Helios effectuée dans le réacteur HFR, a visé l'étude de l'évolution du gonflement, du relâchement d'hélium et des gaz de fission en fonction de la microstructure et la température, pour cinq compositions céramiques, homogènes en solutions solides à matrice ZrO_2 ou composites à matrice Mo et MgO, pour des teneurs en américium comprises entre 0,2 et 0,7 g/cm^3.
- Le comportement dans des conditions d'irradiation représentatives d'un cœur ADS, de composites à matrices métallique Mo et céramique MgO, dans lesquels les teneurs massiques en américium sont comprises entre 0,2 et 1,9 g/cm^3, a été étudié dans Phénix dans le cadre de Futurix-FTA.

La faisabilité de la fabrication de combustibles types ADS d'américium a ainsi été démontrée à l'échelle du laboratoire, en mettant en œuvre deux procédés de synthèse des composés d'actinides mineurs :

- coconversation oxalique, pour la préparation des composites CERamiques-CERamiques à matrice MgO (MgO-CERCER), dans Atalante ;
- voie sol-gel : gélification externe des précurseurs hors américium puis infiltration de l'américium, pour la préparation des composites CERamiques-METalliques à matrice Mo (Mo-CERMET) et des combustibles homogènes à matrice ZrO_2, à ITU.

Des nombreuses propriétés hors pile, mesurées sur tout ou partie des combustibles préparés pour les irradiations Futurix-FTA et Helios, on retient en particulier les résultats opérationnels suivants :

- La stabilité en température et la conductivité thermique sont plus élevées pour les composites à matrice Mo par rapport à ceux à matrice MgO. Les marges vis-à-vis de la température maximale de fonctionnement en réacteur en sont ainsi accrues pour les combustibles Mo-CERMET.
- Les tests préliminaires de compatibilité chimique entre les composants des éléments combustibles (phases américiées, matrices inertes, matériaux de gainage) n'ont pas mis en évidence d'interactions entre les composants qui pourraient être rédhibitoires à une utilisation en réacteur.

Les résultats des examens post-irradiatoires des échantillons testés dans Bodex, ont confirmé l'intérêt des matrices : magnésie, molybdène et zircone stabilisée, qui présentent un gonflement modéré (≤9 %) pour les deux températures d'étude (1 000 et 1 100° C).

Les examens non destructifs des aiguilles Helios irradiées ont mis en évidence un fort gonflement (>>10 %) du combustible à matrice Mo irradié à haute température (T>1 200° C) et fort taux de combustion (TC ~ 200 GWj/t), contrairement aux autres combustibles (à matrices Mo, MgO et ZrO_2) irradiés à des

températures et taux de combustion inférieurs (T≤1100°C et TC ≤ 130 GWj/t) dont les gonflements sont restés modérés. Pour l'heure, en l'absence des résultats des examens destructifs qui sont en cours d'acquisition dans le cadre du projet européen Fairfuels (2008-2013) mais aussi des examens post-irradiatoires des combustibles Futurix-FTA (prévus en 2013-2014), il est difficile de se prononcer sur l'intérêt de la matrice Mo.

En conclusion, dans l'état actuel des connaissances, les résultats acquis confirment l'intérêt de la sélection des matrices inertes effectuée. Néanmoins, il est prématuré de conclure sur les performances effectives des combustibles étudiés tant que l'intégralité des examens post-irradiatoires relatifs aux expériences Helios et Futurix-FTA n'aura pas été réalisée et interprétée (2014).

3.3. RÉSULTATS DES RECHERCHES SUR LA FABRICATION DES COMBUSTIBLES

Quel que soit le mode retenu, la transmutation des actinides mineurs passe nécessairement par la fabrication d'un combustible ou d'une cible contenant ces radionucléides. L'oxyde est aujourd'hui le composé de référence retenu pour recycler le plutonium ou transmuter les actinides mineurs. L'oxyde est, de loin, le matériau sur lequel la plus grande expérience a été acquise et représente indubitablement aujourd'hui le meilleur compromis entre performance et risque. D'autres matériaux (carbure, nitrure, métal) présentent sur le papier les avantages d'une densité plus élevée en atomes lourds et d'une meilleure conductibilité thermique mais leur utilisation comporte beaucoup trop d'inconnues pour être envisagée autrement qu'à longue échéance.

3.3.1. LES PROCÉDÉS DE CONVERSION EN OXYDE

[DTS-18]

Les opérations de séparation par voie hydrométallurgique produisent des solutions purifiées contenant, en mélange ou non, les différents actinides sous forme de nitrates. La première étape de la fabrication consiste à récupérer quantitativement les radionucléides d'intérêt en solution pour les transformer en une forme solide adaptée à la fabrication. Les procédés faisant appel à une précipitation chimique, suivie d'une calcination sont couramment utilisés à cette fin mais d'autres procédés sont également examinés dans le but de simplifier ou d'améliorer les techniques de fabrication des combustibles.

3.3.1.1. COCONVERSION OXALIQUE

La précipitation sous forme d'oxalate suivie d'une décomposition thermique transformant ce composé en oxyde, est le procédé exploité industriellement pour le recyclage du plutonium au degré d'oxydation IV. Le développement du procédé COEX™ dont la finalité est de produire un mélange U+Pu et non plus du plutonium pur, a conduit à étudier des procédés permettant la conversion conjointe des deux éléments. Outre les avantages escomptés en matière de réduction des risques de prolifération, ces procédés permettent d'obtenir une solution solide $(U,Pu)O_2$ assurant une meilleure homogénéité du plutonium dans le combustible. Par ailleurs, un tel composé mixte simplifie la manipulation des poudres d'oxyde et leur mélange mécanique, une étape délicate du procédé de fabrication des combustibles car génératrice de fines particules contaminantes.

Ce type d'avantage peut être étendu à la fabrication des combustibles de transmutation. Selon le mode de transmutation retenu, le procédé de fabrication des combustibles utilisera un composé mixte de type :

- $(U,Pu,AM)O_2$ pour la transmutation en mode homogène ;
- $(U,AM)O_2$ pour la transmutation en mode hétérogène en couvertures chargées ;
- $(Pu,AM)O_2$ pour la transmutation en ADS ;

(AM représentant un actinide mineur particulier ou le mélange de tout ou partie d'entre eux).

Le choix du degré d'oxydation des différents éléments est un paramètre important pour obtenir une phase solide de composition maîtrisée et au sein de laquelle la répartition des actinides soit la plus homogène possible. D'un point de vue pratique, il est visé un degré d'oxydation unique quand cela est possible, ou à défaut des degrés d'oxydation distincts mais en ciblant une réactivité la plus semblable possible dans le système chimique considéré. Il a été retenu d'opérer avec un mélange actinides(IV)-actinides(III) : le degré d'oxydation (IV) de l'uranium est nécessaire pour une précipitation quantitative et une qualité homogène du précipité ; les autres actinides sont utilisés au degré d'oxydation III (Pu, Am, Cm) ou IV (Np).

Le procédé de conversion U(IV)-Am(III) a été étudié au laboratoire à l'échelle du gramme et a permis d'obtenir un oxyde mixte $(U,Am)O_2$ avec une teneur en Am proche de 10 %. L'oxalate mixte cristallise sous forme d'une solution solide et sa calcination sous atmosphère inerte permet de conserver le degré d'oxydation (IV) de l'uranium et produit une nouvelle solution solide avec une répartition parfaitement homogène de l'uranium et de l'américium au sein du solide. Par ailleurs, la synthèse d'un gramme d'une solution solide $(U,Cm)O_2$ obtenue par coconversion oxalique, a été réalisée dans Atalante. Cet essai a mis en évidence que sous l'effet de la forte radiolyse alpha, l'uranium(IV) s'oxydait rapidement en uranium(VI). Ce point n'a pas été rédhibitoire au laboratoire mais pourrait le devenir à plus grande échelle.

L'atout majeur de la coconversion oxalique est de bénéficier du retour d'expérience de la conversion du Pu(IV), mise en œuvre dans les usines de traitement industrielles depuis plus de 50 ans. Les études menées dans le cadre du procédé COEX™ pour étendre la conversion oxalique à la gestion des mélanges U(IV)+Pu(III), offrent une base de connaissances transposables à la mise au point de procédés pouvant gérer les actinides mineurs et l'américium en premier lieu. La différence notable tiendra en une mise en œuvre du procédé dans des installations comportant une protection radiologique plus importante. Des opérations qui nécessitent des interventions humaines ou des opérations de maintenance fréquentes, la filtration par exemple, devront être automatisées avec une maintenance des appareils à distance.

3.3.1.2. PROCÉDÉS ALTERNATIFS

La conversion des actinides sous forme de particules sphériques cohésives plutôt qu'en poudres fines, toujours délicates à manipuler lorsqu'elles renferment des produits très radioactifs, constitue une voie potentielle de progrès. L'obtention de solides d'actinides sous forme de microsphères, c'est-à-dire de billes de diamètre compris entre quelques dizaines de µm et quelques mm selon l'application, peut être assurée de différentes manières :

- Le modelage du solide peut se faire par gélification d'une solution dispersée sous forme de gouttelettes sphériques ; la transition vers le gel étant provoquée par une hydrolyse. Ce sont les procédés dits « sol-gel » ;
- Une autre voie consiste à fixer les actinides, par échange d'ions, sur des sphérules de résine organique préformées. Après un traitement thermique adapté, on obtient les oxydes d'actinides sous forme de microbilles parfaitement calibrées.

Procédé sol-gel

La variante retenue, dite de gélification « interne », consiste à utiliser une solution concentrée d'ions métalliques contenant un additif gélifiant. Sous l'effet de la température, cet additif (HTMA[16] + urée) se décompose, conduisant à une augmentation du pH responsable de l'hydrolyse des cations métalliques. Après gélification, les microsphères sont récupérées, lavées, séchées et enfin calcinées.

Des expériences ont été réalisées au laboratoire à partir d'un mélange uranium (90 %)-américium (10 %). Les microsphères obtenues apparaissent homogènes en composition mais les analyses par diffraction des rayons X n'ont pas permis de statuer formellement sur l'obtention d'uns solution solide. Ces expériences ont montré que les caractéristiques des sphérules obtenues étaient extrêmement sensibles à la composition chimique des solutions d'actinides. Celle-ci conditionne, en particulier, la présence de produits de réaction dans le gel qui, en s'éliminant sous forme de gaz lors de la calcination, va être à l'origine d'une fracturation et d'une porosité importante.

Ce procédé nécessite une forte concentration d'actinides (de l'ordre de 1 mol/l) dans une solution peu acide. La stabilité de ces solutions en milieu très radioactif est clairement un point critique du procédé et on peut craindre la précipitation d'hydroxydes des actinides à ces faibles acidités. La gestion des effluents issus de la gélification est également un point dur de par la présence simultanée d'ions nitrate et ammonium, et de nombreux composés organiques provenant des réactifs introduits.

Procédé de fixation sur résine

Le principe d'un procédé de coconversion U-Am repose sur la fixation par échange d'ions des cations uranium(VI) et américium(III) sur des sphérules de résine carboxylique. Le support chargé en actinides subit ensuite un traitement thermique oxydant, qui a pour objectif d'éliminer la matière carbonée pour ne laisser que les oxydes d'uranium et d'américium intimement mélangés. Une étape de réduction est enfin nécessaire pour ajuster la stœchiométrie en oxygène du mélange d'oxydes.

16 – héxaméthylènetétramine.

La fixation sur résine carboxylique n'est effective que pour des pH supérieurs à 3-4 ce qui nécessite des solutions d'actinides faiblement acides dont la chimie est délicate du fait des risques d'hydrolyse des cations métalliques. La calcination sous atmosphère oxydante qui permet d'éliminer le carbone de la structure et de former des objets sphériques, constitue l'étape clé du procédé dont dépendront des caractéristiques des microbilles, en particulier leur morphologie (sphéricité, état de surface), leur microstructure (porosité, surface spécifique) et leur nature (teneur résiduelle en carbone, cristallinité de l'oxyde).

Du fait de sa relative simplicité, cette voie semble intéressante pour des applications à long terme car son faible niveau de développement laisse encore en suspens beaucoup de points durs. Les principaux points à étudier concernent la chimie des actinides en milieu peu acide et sous forte radiolyse ainsi que le contrôle de la composition en actinides du milieu.

En conclusion, la coconversion oxalique, du fait de sa relative maturité, est la technologie à privilégier pour des applications à court ou moyen terme. Elle produit des poudres d'oxyde d'actinides adaptées aux procédés connus de fabrication des combustibles. Les procédés alternatifs, visant à produire des particules calibrées à la place de poudres, présentent un intérêt certain, notamment en relation avec le développement de procédés innovants de fabrication des combustibles.

3.3.2. LES PROCÉDÉS DE FABRICATION DES PASTILLES D'OXYDE D'ACTINIDES [DTS-19]

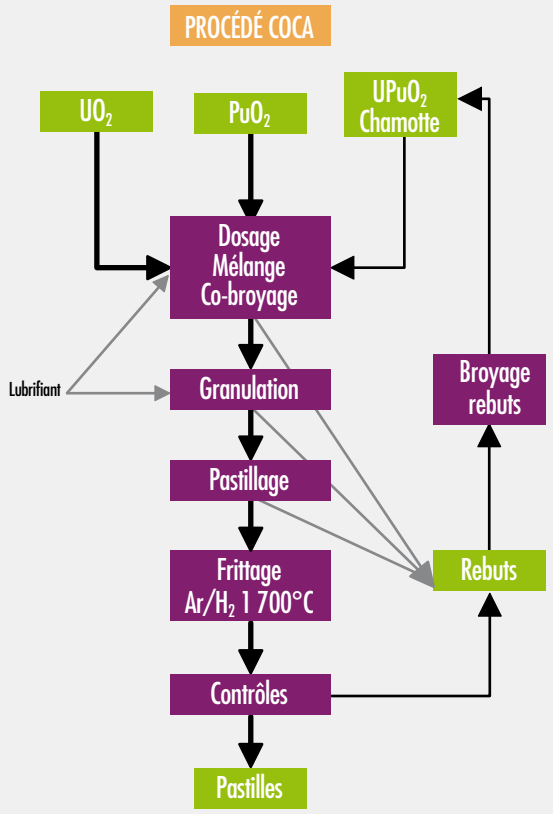
L'expérience de fabrication de combustibles mixtes $(U,Pu)O_2$ est très importante en France, qu'il s'agisse de combustibles destinés aux réacteurs à neutrons rapides ou pour le recyclage du plutonium dans les réacteurs à eau. Ainsi entre 1963 et 1999, plus de 100 tonnes de combustibles RNR ont été fabriquées dans l'Atelier technologique du plutonium (ATPu) à Cadarache. Cette installation mettait en œuvre le procédé COCA représenté à la Figure 24.

Ce procédé consiste à cobroyer les poudres d'UO_2 et PuO_2 en proportions convenables pour obtenir directement la teneur de plutonium spécifiée dans le combustible. Cette première étape, destinée à homogénéiser le mélange et uniformiser la morphologie des poudres, est suivie d'une étape de granulation permettant aux poudres finement broyées de couler. La poudre est alors pressée sous forme d'une pastille dite «crue » qui préfigure la forme finale.

Les pastilles sont ensuite frittées dans un four à 1 700° C sous un mélange argon-hydrogène (5 %) dont le contrôle permet d'ajuster le rapport stœchiométrique entre l'oxygène et les métaux. Le frittage, qui favorise le passage d'un système de particules individuelles à un état compact et monolithique, apporte à la pastille sa résistance mécanique et sa géométrie définitive.

L'essentiel des recherches menées à ce stade visent à simplifier le procédé et notamment à s'affranchir au maximum des manipulations de poudres génératrices de poussières et contaminant les installations. Par exemple, l'utilisation d'une poudre d'oxyde mixte $(U,Pu)O_2$ obtenue par coconversion pourrait permettre de simplifier l'étape de cobroyage, voire même de la supprimer si l'oxyde mixte possède d'entrée la composition finale.

FIGURE 24 : PRINCIPE DU PROCÉDÉ COCA POUR LA FABRICATION DE COMBUSTIBLE RNR



3.3.3. LES TECHNOLOGIES DE FABRICATION DE COMBUSTIBLES PORTEURS D'ACTINIDES MINEURS [DTS-19]

Les actinides mineurs présentent des spécificités par rapport à l'uranium et au plutonium, notamment en termes de nuisances radiologiques et de propriétés thermodynamiques qui font que les procédés classiques ne peuvent s'appliquer tels quels et que des adaptations, voire des innovations doivent être recherchées.

L'américium qui est un émetteur gamma et plus encore le curium qui est un puissant émetteur de neutrons, nécessitent, à la différence des procédés actuels qui sont mis en œuvre en boîtes à gants, un travail téléopéré. Cette contrainte très forte, impose de développer des procédés les plus simples possibles, limitant le nombre d'étapes et utilisant des technologies compatibles avec un travail automatisé et téléopéré. La question des très fines particules émises lors des opérations de broyage, de granulation et d'éventuelle rectification des pastilles qui tendent à s'accumuler dans les équipements, les filtres des enceintes et sur les parois des cellules, constitue un problème radiologique compte tenu des caractéristiques des isotopes qui seraient mis en œuvre. Une des préoccupations pour les procédés du futur est donc de viser à supprimer ces étapes pénalisantes.

Pour ce faire, on favorisera les procédés utilisant des précurseurs déjà sous forme d'un mélange intime, tels que les solutions solides $(U,Am)O_2$ comme les poudres coconverties ou des mélanges homogènes à l'échelle des cristallites qui pourraient éviter l'étape de broyage. Dans le même esprit, la mise en œuvre de granulés ou de sphérules permettrait de s'affranchir de l'étape de la granulation. Enfin, il faut favoriser les procédés ne conduisant qu'à peu de déformation lors du frittage de sorte à éviter le besoin de rectifier les pastilles. Enfin, l'importante volatilité de l'américium lors d'un frittage réactif incite à opérer avec une solution solide déjà formée ; le risque de sublimation de l'américium, figé dans la structure, est alors limité.

Compte tenu de la forte production d'hélium en cours d'irradiation, une microstructure particulière pourrait s'avérer nécessaire pour maîtriser le gonflement des pastilles combustibles. On recherche notamment une porosité ouverte importante pour favoriser la diffusion du gaz hors de la pastille.

Comme rappelé plus haut, la métallurgie des poudres est aujourd'hui la voie de référence de laquelle découle l'essentiel des données disponibles. Cette méthode a été utilisée pour la production d'échantillons destinés aux irradiations expérimentales Marios et Diamino.

Parmi les voies alternatives, la métallurgie des sphérules semble intéressante tant par la simplification des étapes que par la possibilité de réduire l'empoussièrement des équipements. Deux voies sont étudiées :

- La première voie s'apparente à la métallurgie des poudres conventionnelle dans laquelle les poudres auraient subi une granulation conduisant à des sphères de taille maîtrisée. Les sphérules permettent ainsi de fabriquer les pastilles qui sont ensuite empilées de manière classique pour aboutir à une aiguille de combustible.
- La deuxième voie utilise directement les sphérules pour fabriquer les aiguilles de combustibles. Le procédé consiste à remplir les aiguilles de granulés (procédé Vipac russe) ou de sphérules (procédé Spherepac américain) de différentes classes granulométriques et à densifier le remplissage sous l'effet de vibrations (vibro-compaction). Cette technique apparaît très attractive dans la mesure où elle offre une simplification extrême mais le retour d'expérience est exclusivement étranger et ne permet pas à ce stade de statuer sur la faisabilité technologique pour une application mettant en œuvre des actinides mineurs. Une qualification en réacteur sera ensuite nécessaire pour se prononcer sur la viabilité du concept.

A toutes les étapes de la fabrication, de nouvelles technologies d'équipement seront recherchées pour répondre au besoin de changement d'échelle et à l'objectif d'une production industrielle. Ces développements concerneront la technologie de co-précipitation, le système de filtration, le four de calcination ou encore la presse. L'apport de l'automatisation et de la robotique sera évalué dans le but d'améliorer la gestion des chaînes blindées. L'ensemble de ces procédés et équipements devra être qualifié dans des conditions représentatives, d'abord sur des plateformes en inactif puis au sein d'une installation active préfigurant les futures installations de production.

4. LE DÉVELOPPEMENT DES OUTILS DE TRANSMUTATION 39
4.1. Les capacités comparées de transmutation des différents systèmes 39
4.2. Le développement des RNR électrogènes 40
4.3. Le développement des ADS 41
4.3.1. Démonstration expérimentale du concept ADS 41
4.3.2. Les accélérateurs pour les ADS 43
4.3.3. Matériaux pour la spallation, expérience Megapie 44
4.3.4. Etudes de concepts de forte puissance 44
4.3.5. Conclusion des études de développement des ADS 45

4. LE DÉVELOPPEMENT DES OUTILS DE TRANSMUTATION

4.1. LES CAPACITÉS COMPARÉES DE TRANSMUTATION DES DIFFÉRENTS SYSTÈMES

Les différents systèmes peuvent être caractérisés par leur capacité de transmutation des actinides mineurs, laquelle sera usuellement rapportée à la quantité d'énergie produite par le réacteur de transmutation et exprimée en kg/TWhe. Compte tenu de l'énergie libérée par une fission (~200 MeV), 1 TWhe correspond à la fission d'environ 115 kg de matière[17]. En faisant l'hypothèse irréaliste que cette énergie provient uniquement de la fission des actinides mineurs, on voit que cette valeur de 115 kg/TWhe constitue un maximum théorique de la capacité de transmutation quel que soit le système.

Le Tableau 5 fournit quelques valeurs typiques de la capacité de transmutation des différents modes de transmutation. Il est important de noter que pour le mode homogène, il s'agit d'une valeur nette résultant d'un bilan entre formation et consommation d'actinides mineurs dans le cœur du réacteur (une valeur nulle signifie que le cœur peut transmuter autant d'actinides mineurs qu'il en produit ; une valeur positive traduit la capacité du cœur à transmuter des AM exogènes). Pour les deux autres modes, il s'agit de la consommation du seul dispositif de transmutation indépendamment des quantités produites par ailleurs. Ainsi en mode hétérogène, la capacité de transmutation exogène peut s'obtenir en déduisant la production d'AM du cœur (~4 kg/TWhe).

Comme attendu, les ADS présentent de loin la capacité de transmutation la plus élevée : 95 kg/TWhe soit environ 20 fois plus que celle obtenue par exemple dans un RNR en mode homogène (5 kg/TWhe). Cela signifie que pour transmuter une même quantité d'actinides mineurs, les ADS auraient à produire 20 fois moins d'énergie qu'un RNR. Mais quelle en serait la traduction pratique ?

17 – En considérant un rendement de conversion de la chaleur en électricité de 40 %.

Les RNR sont conçus pour produire de l'énergie et leur potentiel de transmutation est en quelque sorte un « sous-produit » de cette production d'énergie. Pour fixer les idées, un parc de 60 GWe de RNR (environ 40 réacteurs) offrirait un potentiel de transmutation de l'ordre de 2 t/an d'actinides mineurs.

Compte tenu de leur capacité de transmutation environ 20 fois plus élevée, un parc ADS de puissance 20 fois moindre (3 GWe) serait donc en mesure d'assurer le même service de transmutation. Mais les ADS industriels, tels qu'ils se dessinent aujourd'hui, sont encore des machines de petite puissance (environ 10 fois moindre que celle d'un RNR) et dans ces conditions, une simple règle de trois montre qu'il faudrait construire environ 20 ADS pour constituer cet ensemble de 3 GWe et se doter d'un potentiel de transmutation équivalent à celui offert par un parc de 40 RNR.

Ce nombre élevé de machines peut être considéré comme un handicap pour des installations déployées à seule fin de transmutation. La puissance d'un système de transmutation est donc un critère aussi important que sa capacité de transmutation, et dans le cas des projets actuels d'ADS, leur puissance reste beaucoup trop faible pour pouvoir réellement bénéficier de la forte capacité de transmutation permise pas le concept. Des recherches sont en cours afin de concevoir des ADS de plus forte puissance, ce qui diminuerait le nombre de machines nécessaires.

Concernant les RNR destinés à la production d'énergie, la question se pose de savoir si les différentes technologies envisageables (sodium, plomb, gaz, sels fondus) présentent ou non des capacités de transmutation équivalentes. Comme déjà vu plus haut, la capacité de transmutation dépend essentiellement du niveau de flux neutronique, de son spectre en énergie et des teneurs admissibles en actinides mineurs. Le Tableau 6 résume d'une manière qualitative l'évolution de ces différents paramètres entre les 4 systèmes.

TABLEAU 5 : ORDRE DE GRANDEUR DE LA CAPACITÉ DE TRANSMUTATION DES DIFFÉRENTS MODES DE TRANSMUTATION

MODE DE TRANSMUTATION	Homogène			Hétérogène (CCAM)		ADS
Teneur AM	1 %	2 %	4 %	10 %	20 %	55 %
Capacité de transmutation AM (kg/TWhe)	0*	5*	14*	3,5 (-0,5*)	6 à 8 (2 à 4*)	95*

* capacité de transmutation d'actinides mineurs exogènes au réacteur

TABLEAU 6 : PRINCIPAUX PARAMÈTRES PHYSIQUES RÉGISSANT LA CAPACITÉ DE TRANSMUTATION DES DIFFÉRENTES TECHNOLOGIES DE RNR

	Sodium	Plomb	Gaz	Sels fondus
Niveau de flux	élevé	élevé mais inférieur au RNR-Na	moyen	élevé
Spectre neutronique	favorable	légèrement moins favorable que RNR-Na	légèrement plus favorable que RNR-Na	favorable
Teneurs AM admissibles	2,5 à 3 %	probablement > 3% (marges à l'ébullition importantes)	env 5 % (faible effet de vidange)	élevées (bénéficient de contre-réactions favorables)

Un paramètre compensant un autre, les systèmes de technologie « classique » (sodium, plomb, gaz) présentent des capacités de transmutation proches ; le réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium étant le système le plus favorable pour la transmutation en raison notamment de son niveau de flux neutronique élevé. Grâce à ses potentialités à admettre de plus fortes teneurs d'actinides mineurs, le RNR à sels fondus présente théoriquement une capacité de transmutation supérieure qu'il faudrait quantifier plus précisément nonobstant les nombreuses inconnues demeurant sur ce système.

4.2. LE DÉVELOPPEMENT DES RNR ÉLECTROGÈNES

Le développement des RNR de 4e génération est traité en détail dans le tome 3[18] et le tome 4[19] du présent dossier. On n'abordera ici que des aspects propres à la transmutation des actinides mineurs.

L'incidence technique de la transmutation des actinides mineurs, du point de vue de la conception et de l'exploitation des réacteurs, porte sur les trois sujets suivants : le cœur, la manutention des combustibles et la chaudière nucléaire.

Impact sur le cœur

L'introduction de masses importantes d'actinides mineurs induit une évolution des coefficients de sûreté d'un cœur de RNR-Na :

- augmentation de l'effet en réactivité de la vidange du sodium (augmentation de la réactivité en cas de perte du caloporteur sodium) ;
- diminution de l'effet Doppler (coefficient de contre-réaction en cas d'augmentation de la température du combustible).

On sait que le mode de transmutation homogène va dégrader les coefficients de sûreté du cœur de façon d'autant plus importante que la teneur en actinides mineurs sera élevée. Une limite de 2,5 à 3 % semble en première approche acceptable pour le cœur SFR V2b. La limite reste à préciser pour le cœur CFV. Ces valeurs devront être validées par des études de comportement des cœurs lors de transitoires accidentels.

Par contre, dans le cas de la transmutation hétérogène et plus particulièrement pour les concepts CCAM ou CCAm, les actinides mineurs à transmuter sont introduits en périphérie de cœur et, même à forte teneur, leur impact sur les coefficients de réactivité reste marginal.

Impact sur la manutention des combustibles

Dans les RNR construits jusqu'à présent, la manutention des assemblages neufs s'effectue sans protection biologique particulière et sans système de refroidissement. Ceux-ci s'avéreront probablement nécessaires pour manipuler les assemblages contenant des actinides mineurs et notamment ceux comportant de fortes teneurs (CCAM en particulier). A noter que l'utilisation d'assemblages contenant du plutonium de qualité « dégradée » (Pu provenant du traitement de combustibles MOX) pourrait déjà rendre nécessaire la mise en place d'une protection biologique, certes moindre que celle envisagée pour les assemblages contenant des AM et notamment du curium.

La Figure 25 montre le cheminement des combustibles usés dans un RNR-Na. Les assemblages nécessitent une période de décroissance significative de leur puissance résiduelle avant de pouvoir être entreposés sous eau. En effet, cet entreposage doit être précédé d'une opération de lavage destinée à supprimer toute trace de sodium. La puissance maximale pour le lavage est aujourd'hui de 2,5 kW. Des recherches ont pour objectif d'atteindre 7,5 kW.

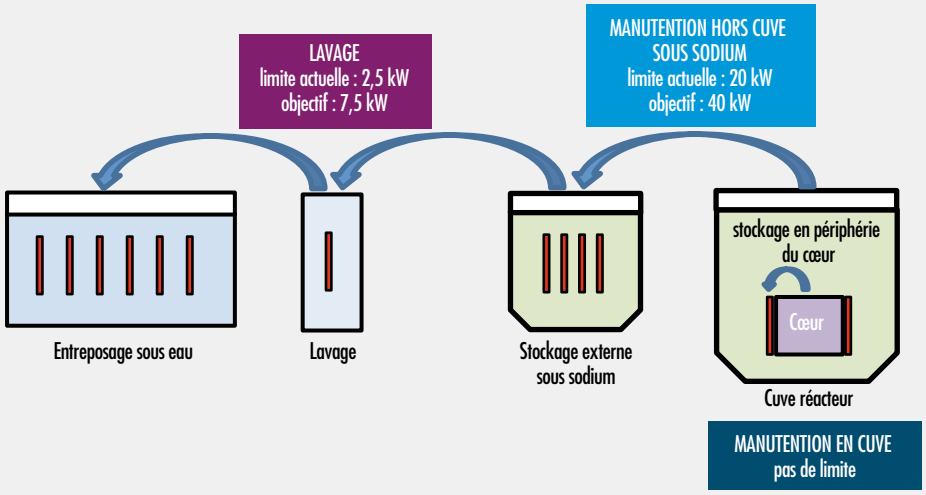
Durant cette période de décroissance, un entreposage en sodium est donc nécessaire. Celui-ci peut se faire dans la cuve-même du réacteur en périphérie du cœur (stockage interne) ou dans une cuve distincte (stockage externe[20]) munie des systèmes adéquats d'évacuation de la puissance résiduelle. Si la manutention en cuve des combustibles n'est pas contrainte par une limite de puissance résiduelle, il n'en est pas de même pour le transfert des assemblages en dehors de la cuve réacteur. Les puissances maximales admissibles sont de 7,5 kW si l'environnement est un gaz (solution envisagée pour EFR) ou 20 kW si l'opération se fait sous sodium (cas d'un pot de transfert comme sur Phénix ou Superphénix). Des recherches portent sur les possibilités de porter cette dernière valeur à 40 kW.

18 – Les réacteurs à neutrons rapides de 4e génération à caloporteur sodium - le démonstrateur technologique Astrid.

19 – Les réacteurs à neutrons rapides de 4e génération à caloporteur gaz - le réacteur expérimental Allegro. Les autres filières à neutrons rapides de 4e génération.

20 – Aussi appelé barillet (Superphénix).

FIGURE 25 : SCHÉMA DE MANUTENTION DES ASSEMBLAGES USÉS DANS UN RNR-Na



Si la transmutation des actinides mineurs en mode homogène a un impact modéré sur la puissance résiduelle des combustibles usés, il en va tout autrement pour la transmutation en mode hétérogène et notamment pour les couvertures fortement chargées que ce soit en actinides mineurs (CCAM) ou en américium seulement (CCAm). Comme on le verra plus loin, certains assemblages pourraient nécessiter :

- plusieurs dizaines de jours (contre moins de 2 jours pour un assemblage MOX-RNR) pour atteindre la limite de 40 kW permettant d'envisager leur transfert hors de la cuve réacteur ;
- 7 à 15 ans de refroidissement (contre environ 100 jours pour un assemblage MOX-RNR) avant d'atteindre une puissance thermique de 7,5 kW permettant de les entreposer sous eau.

Les stockages internes et externes devront être dimensionnés en conséquence.

Impact sur la chaudière nucléaire

La transmutation des actinides mineurs n'impacte pas au premier ordre la conception de la chaudière nucléaire. Toutefois, certaines options de transmutation peuvent conduire à augmenter les dimensions du cœur avec de légères répercussions sur le diamètre de la cuve. C'est le cas par exemple de la transmutation en mode hétérogène qui nécessite l'ajout d'une à deux rangées de couvertures à la périphérie du cœur. Ce peut être également le cas des options qui nécessitent d'augmenter la capacité du stockage interne. En tout état de cause, l'impact sur le diamètre de cuve resterait très modeste : +0,5 m pour une cuve d'une vingtaine de mètres de diamètre.

4.3. LE DÉVELOPPEMENT DES ADS

[DTS-20] Contribution du CNRS

Les systèmes dédiés à la transmutation des actinides mineurs visent à maximiser la capacité de transmutation par l'utilisation de cœurs fortement chargés en actinides mineurs et dépourvus d'uranium. Dans ces conditions, il est aujourd'hui admis que la sous-criticité est incontournable, du fait des mauvaises caractéristiques neutroniques des combustibles très chargés en actinides mineurs. La proportion de neutrons retardés en particulier est très faible pour ces noyaux, et l'incinération dédiée en mode critique demande à introduire une masse significative d'^{238}U, qui dégrade sensiblement les performances de transmutation.

Outre les travaux menés sur le développement des combustibles pour ADS (cf. 3.2.3), les recherches actuelles concernent la démonstration expérimentale du concept d'ADS de plusieurs dizaines de MW thermiques du point de vue de la physique du cœur, de la tenue des matériaux et des accélérateurs. Les études par simulation concernent l'étude de concepts de fortes puissances et des performances des scénarios de transmutation associés. Ces recherches sont majoritairement menées en France par le CNRS.

4.3.1. DÉMONSTRATION EXPÉRIMENTALE DU CONCEPT ADS

Depuis le milieu des années 1990 le concept de réacteur sous-critique piloté par accélérateur a refait surface dans un concept revisité par C. Rubbia. Ce dernier a conduit à cette époque deux expériences au CERN afin de renforcer le concept théorique par une approche expérimentale. Les expériences Feat (First Energy Amplifier Test, 1995) et Tarc (Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing, 1996) visaient à démontrer le gain en énergie d'un tel système pour l'une (c'est-à-dire à quantifier sa capacité à produire plus d'énergie qu'il n'en consomme) et son aptitude à la transmutation de certains déchets nucléaires pour l'autre.

A la même époque (1996-1997) s'est mis en place en France le groupement de recherche Gedéon (Gestion des Déchets par des Options Nouvelles) établissant une convention entre

le CEA, le CNRS, EDF puis Framatome avec pour objectif de coordonner l'effort de recherche sur la transmutation des isotopes à durée de vie longue, axe I de la loi sur la gestion des déchets radioactifs du 30 décembre 1991. Cet effort s'est surtout concentré, dans un premier temps, sur le potentiel en la matière des réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur ainsi que sur leur faisabilité. Ainsi plusieurs programmes de recherche ont été soutenus portant sur les différents aspects d'un ADS : l'amélioration des données et des modèles nucléaires liés à la spallation, l'amélioration de la compréhension des phénomènes physico-chimiques de corrosion dans la cible de spallation et de la tenue des matériaux associés, l'étude de couplage entre un réacteur et une source externe de neutrons, et l'amélioration des performances des accélérateurs linéaires fournissant les faisceaux pilotant la source de neutrons. A l'échelle internationale, ces sujets ont aussi trouvé soutien dans les programmes-cadres européens d'Euratom lors des appels portant sur la problématique de la gestion des déchets et plus particulièrement sur l'axe séparation & transmutation (FP5, 6 et 7). Lors du 6e programme-cadre, ces recherches ont été groupées au sein d'un même projet intégré « Eurotrans », dédié plus particulièrement au design avancé d'un ADS expérimental de faible puissance (inférieure à 100 MWth) afin de faire la démonstration technique de la faisabilité de la transmutation dans un tel système. Elles ont, petit à petit, conduit les évolutions du projet belge de démonstrateur d'ADS Myrrha (SCK-CEN) en vue duquel des études ont encore été soutenues au sein du 7e PCRD.

Programme MUSE 1998-2004

Le programme Muse (MUltiplication d'une Source Externe) a débuté en 1995 en collaboration avec le CEA, EDF et Framatome. Le but de ce programme était l'étude paramétrique de différentes configurations sous-critiques rapides alimentées par différents types de source de neutrons avec, comme premier objectif, la démonstration de la validité des techniques de mesure et des schémas de calcul associés, jusque-là uniquement utilisés pour des systèmes rapides critiques. Il s'est ouvert dans sa dernière phase à une collaboration européenne (projet « Muse », financé par le 5e PCRD d'Euratom de 2000 à 2004) et a mis à disposition des expérimentateurs une maquette d'ADS (d'une puissance inférieure à 100 W en mode sous-critique) constituée du réacteur Masurca (Maquette de SURgénérateur à CAdarache), et d'une source de neutrons T(d,n) délivrée par l'accélérateur Génepi (GEnérateur de NEutrons Pulsé Intense). Le cœur était chargé en combustible UO_2 et PuO_2 (MOx) additionné de sodium solide pour représenter le caloporteur d'un système à neutrons rapides, entouré de réflecteurs axiaux et radial constitués d'acier et de sodium. L'ensemble était entouré d'un écran fait de blocs d'acier.

Ce programme expérimental a permis de mettre en œuvre avec succès un réacteur sous-critique à spectre rapide piloté par un accélérateur : son exploitation n'a pas mis au jour de difficultés particulières. Bien que d'un faible niveau, la puissance thermique du réacteur a été pilotée par l'intensité du faisceau délivré par l'accélérateur, vérifiant ainsi la loi liant ces deux paramètres et régissant ces systèmes couplés. Les mesures de caractérisation du cœur ont fourni des données qui ont pu être exploitées pour la qualification des outils de calcul, élargissant la base de données expérimentales relative aux réacteurs en configuration sous-critique. Une méthodologie générale de suivi en ligne de la réactivité, s'appuyant sur une mesure relative et une approche absolue, a pu être proposée. L'approche par mesure absolue nécessitant une interruption courte de faisceau, a permis d'ajouter cette caractéristique au cahier des charges de l'accélérateur pilotant les ADS. Cette méthodologie dans son ensemble n'a toutefois pas pu être validée expérimentalement dans ce programme, notamment parce que les caractéristiques de l'accélérateur ne permettaient pas de réaliser la structure de faisceau adéquate. Le programme expérimental Guinevere a été mis en place dans ce contexte pour poursuivre et finaliser ce travail.

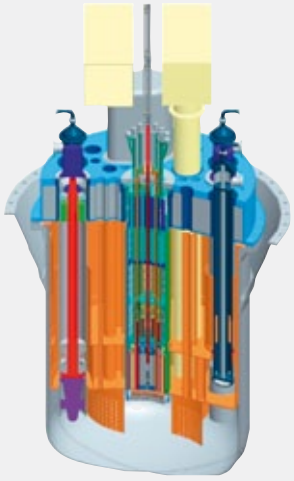
Programme Guinevere-Freya 2007-2015

Au cours du 6e programme-cadre d'Euratom, toutes les études dédiées à la faisabilité d'un ADS de puissance de démonstration ont été regroupées au sein du projet intégré Eurotrans subdivisé en cinq domaines. Le domaine 2 « ECATS » a regroupé les études expérimentales touchant au cœur sous-critique. Suite à l'annulation de l'expérience Trade-plus, le programme Guinevere a pris le relais pour être intégré à Eurotrans début décembre 2006.

Guinevere (Generator of Uninterrupted Intense Neutrons at the lead Venus REactor), qui s'inscrit dans la droite ligne de l'expérience Muse, consiste en une expérience de couplage entre un réacteur maquette sous-critique (le réacteur Venus du SCK-CEN, Mol, Belgique) et une source de neutrons de 14 MeV générés par l'accélérateur de deutons Génepi-3C (réactions T(d,n) à 220 keV). Ce couplage, réalisé à puissance quasi-nulle, permet d'étudier la cinétique du cœur indépendamment des aspects thermiques, dans une configuration proche des caractéristiques prévues pour un ADS de puissance. Son originalité réside, d'une part, dans la composition du réacteur, un cœur d'uranium métallique enrichi additionné de plomb solide figurant le caloporteur d'un ADS et muni de réflecteurs en plomb (il s'agit là encore de représenter un système à neutrons rapides), et d'autre part, dans les caractéristiques de la source de neutrons capable de fournir des faisceaux ayant la structure en temps adéquate pour le monitoring « en ligne », c'est-à-dire un fonctionnement en mode continu au cours duquel on peut pratiquer des interruptions très brèves et cycliques.

La réalisation de ce projet, initié par le SCK-CEN et le CNRS avec le concours de la Direction de l'énergie nucléaire (DEN) du CEA, a nécessité trois années pour construire l'installation expérimentale. Terminée début 2010, puis testée au cours des deux années suivantes, l'installation est maintenant opérationnelle et les expériences ont débuté en avril 2012. Elles se déroulent dans le cadre du projet européen Freya (Fast Reactor Experiments for hYbrid Applications) débuté dans le 7e programme cadre d'Euratom en mars 2011. Ce programme porte non seulement sur la validation de la méthodologie pour le monito-

FIGURE 26 : PROJET MYRRHA



ring en ligne de la réactivité d'un ADS, mais également sur la caractérisation de cœurs sous-critiques et critiques : cette dernière permet de fournir des données expérimentales précieuses pour la qualification des codes qui sont utilisés pour les études de conception et les dossiers de permis d'exploitation des cœurs envisagés pour Myrrha (cf. figure 26). Le projet Myrrha dont la puissance est de l'ordre de 100 MWth, est destiné à démontrer le pilotage d'un système sous-critique préindustriel, mais constituera également une installation d'irradiation permettant l'étude de matériaux pour les réacteurs rapides ou pour la fusion, ou encore la production de radio-isotopes.

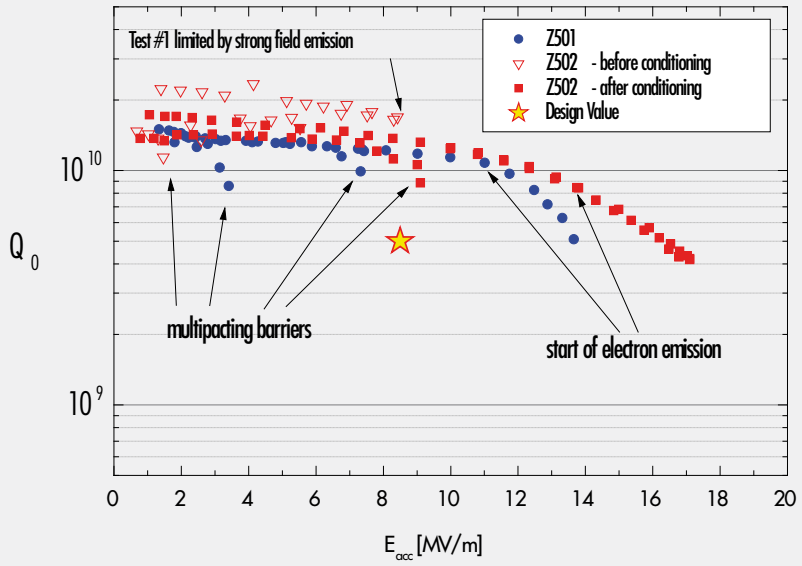
4.3.2. LES ACCÉLÉRATEURS POUR LES ADS

Un système de type ADS nécessite l'utilisation d'un accélérateur de protons de forte puissance, produisant des faisceaux continus de quelques MW (600 MeV, 4 mA pour le démonstrateur Myrrha) à quelques dizaines de MW dans le cas d'un système industriel. Outre cette importante puissance du faisceau, la spécificité principale d'un tel accélérateur est qu'il doit être extrêmement fiable afin de ne pas induire de contraintes thermiques trop importantes sur la cible et les structures du cœur du réacteur et d'assurer un niveau de disponibilité de l'installation acceptable. Seul un nombre très restreint de pannes faisceau par an pourra être toléré : dans le cas de Myrrha par exemple, l'objectif est d'obtenir moins de 10 interruptions faisceau de plus de 3 secondes en 3 mois d'opération, ce qui est sensiblement plus sévère que les performances atteintes à ce jour avec ce type de machines.

Le schéma de référence d'un tel accélérateur ADS a été défini, et son schéma détaillé est actuellement en cours de développement dans le cadre du projet Myrrha. Coordonnés au niveau européen par l'IPN Orsay[21] et largement soutenus par les programmes-cadres d'Euratom (FP6 et FP7), ces travaux préconisent l'utilisation d'une solution basée sur un accélérateur linéaire supraconducteur modulaire, incluant un certain nombre de redondances permettant d'augmenter très largement le niveau de fiabilité. Cette ana-

21 – Institut de Physique Nucléaire d'Orsay, unité mixte de recherche de l'IN2P3 (Institut de Physique Nucléaire et de Physique des Particules du CNRS) et de l'Université Paris-Sud.

FIGURE 27 : PERFORMANCE EXPÉRIMENTALE D'UNE CAVITÉ SUPRACONDUCTRICE 700 MHz DE MOYENNE ÉNERGIE, ILLUSTRANT LES MARGES DISPONIBLES SUR LE POINT DE FONCTIONNEMENT



lyse a notamment mené à proposer plusieurs solutions ciblées très innovantes :

- scénarios de récupération « en ligne » de certaines pannes, comme les pannes de systèmes radiofréquence alimentant les cavités supraconductrices du Linac principal après l'injecteur. Pour ce faire, les cavités doivent fonctionner relativement loin de leur point de fonctionnement ultime, comme illustré sur la figure 27.
- duplication de l'injecteur. Le faisceau ayant une vitesse trop faible pour mettre en œuvre des solutions de récupération en ligne, la solution proposée consiste à installer un injecteur de secours, avec un aimant d'aiguillage rapide assurant la continuité du faisceau en cas de panne du premier injecteur.

Ces thèmes de recherche sont d'ores et déjà mis en place dans divers laboratoires français et européens, plusieurs programmes de R&D visant à montrer, par la construction et le test de composants prototypes, que le niveau de fiabilité requis devrait pouvoir être atteint.

4.3.3. MATÉRIAUX POUR LA SPALLATION, EXPÉRIENCE MEGAPIE

Le projet international Megapie (MEGAwatt PIlot Experiment) a été initié en 1999 par le CEA (France), PSI (Suisse), FZK (Allemagne) rejoints par le CNRS (France), ENEA (Italie), SCK-CEN (Belgique), JAERI (Japon), DOE (Etats-Unis), KAERI (Corée) et l'UE (Union européenne). Il prendra fin en 2013 après avoir atteint l'ensemble des objectifs qui lui avaient été assignés.

L'irradiation, réalisée du 14 août au 21 décembre 2006 sur le site expérimental SINQ du Paul Scherrer Institut (Suisse), a permis de démontrer la faisabilité technologique d'une cible de spallation en plomb-bismuth liquide, soumise à une puissance faisceau de l'ordre du mégawatt. Ainsi, la conception, la construction et l'opération d'une telle cible ont été validées ouvrant la porte à de futurs projets d'ADS ou de cibles de spallation de haute puissance comme MTS (Etats-Unis), ESS (Suède) ou Myrrha (Belgique). La cible en métal liquide de Megapie a aussi permis d'augmenter les flux de neutrons disponibles sur les lignes expérimentales de SINQ d'environ 80 % par rapport à la cible solide précédemment utilisée.

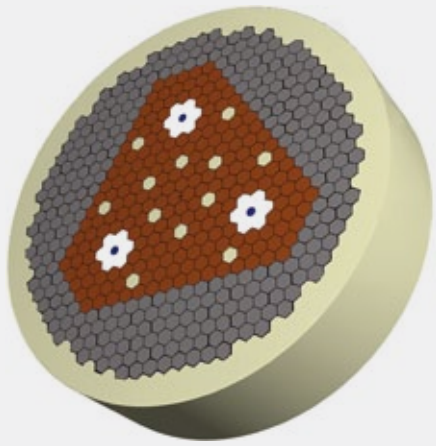
Depuis la fin de l'irradiation, la cible avait été entreposée au PSI, transférée au dépôt intermédiaire central, ZWILAG (Suisse), afin d'y être découpée en 2009. Les tronçons ont été retournés au PSI en 2011. Le démantèlement de la cible terminé et validé sans incident majeur, les 667 échantillons des matériaux de structure de la cible sont en préparation avant d'être distribués aux partenaires du projet pour évaluer le comportement de ces matériaux sous irradiation et en présence de plomb-bismuth. Les premiers résultats des examens sont attendus pour 2013.

4.3.4. ÉTUDES DE CONCEPTS DE FORTE PUISSANCE

Les études de scénarios qui ont été menées jusque-là sont basées sur le projet EFIT (d'une puissance de 385 MWth), prototype industriel d'ADS développé dans le cadre du programme européen Eurotrans. La faible puissance unitaire du concept de référence conduit à un nombre important d'ADS (de l'ordre de 20 - cf. chapitres 4.1 et 5.2.1) afin d'absorber le flux d'actinides mineurs provenant de la strate électrogène, et conduit également à des temps de cycle courts et à un inventaire d'actinides mineurs à l'équilibre plus élevé que dans le cas de la transmutation en RNR.

Pour pallier ces points faibles, un concept original de grande puissance a été exploré à l'IN2P3. La puissance thermique du système et donc la quantité d'actinides mineurs transmutée par ADS est ainsi augmentée significativement. Le concept théorique d'ADS de grande puissance présenté ici (cf. figure 28) est basé sur l'utilisation de trois cibles de production de neutrons appelées cibles de spallation, qui permet d'aplatir la nappe de

FIGURE 28 : ÉTUDE DE CONCEPT DE FORTE PUISSANCE



Intensité faisceau	47 mA
Puissance thermique	1,4 GW
Puissance volumique	353 W/cm^3 (de comb.)
Taux de combustion	210 MWj/t$_{NL}$
Masse MgO **Masse d'actinides en cœur** **Actinides mineurs** **Pu**	8 t 12 t 7 t 4 t
Masse d'actinides transmutés par an	~500 kg
Temps de cycle (années) **Irradiation** **Refroidissement** **Fabrication**	12 5 5 2

puissance, facteur limitant pour la puissance du système car particulièrement piquée dans un réacteur sous-critique.

La technologie retenue se compose d'un unique accélérateur de protons de haute intensité (environ 50 mA) et de haute énergie (1 GeV) qui se divise en trois sous-faisceaux guidés vers trois cibles de spallation disposées dans le cœur sous-critique. Les caloporteurs envisagés sont le sodium et le plomb, et permettent d'atteindre des densités de puissance élevées, favorables pour baisser l'inventaire d'actinides mineurs à l'équilibre. Le combustible est constitué d'une matrice inerte, MgO, lui conférant une bonne conductivité thermique.

Le tableau de la figure 28 résume les caractéristiques d'un tel système à l'équilibre, appliqué à une strate électrogène constituée de REP multirecyclant le Pu, l'ADS recyclant tous les actinides mineurs (Np, Am et Cm). Le même type de système est adaptable à l'incinération de l'Am seul.

Appliqué au parc français de 60 GWe et à une production d'environ 430 TWh, avec ce type de système, la strate incinératrice nécessiterait environ 8 et 4 réacteurs, pour une strate électrogène constituée de REP et de RNR respectivement.

D'autres pistes sont possibles pour augmenter la puissance d'un ADS incinérateur d'actinides mineurs, ainsi JAERI propose par exemple un concept de 800 MWth, pour lequel la nappe de puissance est aplatie par une gestion radiale hétérogène des assemblages. Dans tous les cas, l'augmentation de la puissance d'un ADS incinérateur est un point clé qui doit gouverner les études de concepts dans la période à venir.

4.3.5. CONCLUSION DES ÉTUDES DE DÉVELOPPEMENT DES ADS

Les enjeux de recherche sur les ADS pour une démonstration industrielle peuvent se résumer :

- Etudes de concepts de forte puissance pour rendre la stratégie de la double strate plus performante.
- Matériaux spécifiques à la cible de spallation, subissant un fort flux de neutrons de haute énergie (fenêtre, cible, structures…)
- Combustibles très chargés en actinides mineurs (près de 50 %) restent un enjeu majeur à tous les stades : fabrication, irradiation (matrice inerte, gonflement, tenue de la gaine), transport et retraitement. Les recherches doivent donc être poursuivies, en lien avec les combustibles étudiés pour la transmutation hétérogène en couvertures de RNR, également très chargées en actinides mineurs.
- Même si des solutions innovantes ont été développées ces dernières années, la fiabilité des accélérateurs de haute intensité dédiés au pilotage d'un cœur sous-critique reste un enjeu majeur à démontrer. Les recherches dans ce domaine doivent être poursuivies et approfondies en s'appuyant sur les activités expérimentales développées autour de Myrrha.
- Les recherches actuelles théoriques et expérimentales sur le contrôle et la mesure en ligne du niveau de la sous-criticité d'un ADS doivent être adaptées et testées pour un système de forte puissance, fonctionnant en continu.

Il faut enfin souligner que la démonstration du concept d'ADS à des puissances non encore industrielles mais déjà significatives, étape indispensable, est aujourd'hui sérieusement envisagée, notamment dans le cadre des projets d'ADS européen (Myrrha) et chinois (C-ADS). Ces deux projets expérimentaux, basés sur des réacteurs au plomb-bismuth d'une puissance de l'ordre de 100 MWth, affichent aujourd'hui l'ambition d'entrer en phase de construction d'ici 2015 pour une mise en opération avant 2025.

5. ÉTUDES TECHNICO-ÉCONOMIQUES DE LA SÉPARATION-TRANSMUTATION ... 47

5.1. Objectifs et méthodologie des études technico-économiques ... 47
5.1.1. Rappel du cadre des études technico-économiques ... 47
5.1.2. Les scénarios étudiés ... 48
5.1.2.1. Technologies de recyclage ... 48
5.1.2.2. Scénarios de recyclage ... 49
5.1.2.2. Caractéristiques des installations ... 49
5.2.2.4. Contraintes retenues pour les scénarios ... 51
5.1.3. Les critères d'évaluation ... 51
5.2. Les résultats des scénarios ... 51
5.2.1. Les inventaires ... 51
5.2.1.1. Les principaux résultats à l'équilibre ... 52
5.2.1.2. La période transitoire ... 52
5.2.1.3. La disponibilité du plutonium ... 52
5.2.1.4. Les inventaires en actinides mineurs ... 53
5.2.2. Impact sur la gestion des déchets ... 54
5.2.2.1. Volume des déchets ... 55
5.2.2.2. Inventaire de radiotoxicité ... 56
5.2.2.3. Impact radiologique du stockage ... 56
5.2.2.4. Puissance thermique des déchets ... 57
5.2.3. Impact sur les installations du cycle ... 62
5.2.3.1. Impact sur la fabrication ... 63
5.2.3.2. Impact sur le traitement ... 63
5.2.3.3. Impact sur les transports ... 64
5.2.3.4. Impact sur le réacteur ... 65
5.2.4. Impact sur l'économie ... 66
5.2.4.1. Approche A ... 67
5.2.4.2. Étude de sensibilité ... 68
5.2.4.3. Approche B ... 68
5.2.5. Autres critères ... 70
5.2.5.1. Risques industriels ... 70
5.2.5.2. Aspects dosimétriques ... 70
5.2.5.3. Résistance à la prolifération ... 71
5.3. Les scénarios dits « de fin de vie » (ou de « phase-out ») ... 71
5.3.1. Scénarios de principe ... 73
5.3.2. Scénarios utilisant le seul parc existant ... 73
5.3.3. Conclusion des scénarios de fin de vie ... 74

5. ÉTUDES TECHNICO-ÉCONOMIQUES DE LA SÉPARATION-TRANSMUTATION

5.1. OBJECTIFS ET MÉTHODOLOGIE DES ÉTUDES TECHNICO-ÉCONOMIQUES

[DTS-21]

5.1.1. RAPPEL DU CADRE DES ÉTUDES TECHNICO-ÉCONOMIQUES

L'étude de la séparation et de la transmutation des éléments radioactifs à vie longue a constitué l'un des trois axes de recherche prescrits par la loi du 30 décembre 1991. Les programmes de recherche qui se sont déroulés depuis maintenant près de 20 ans ont permis d'explorer une assez large panoplie d'options envisageables, tant pour les opérations de séparation que pour celles de transmutation. L'éventail des recherches a été progressivement circonscrit aux options qui paraissaient les plus pertinentes pour une possible mise en œuvre industrielle ce qui a conduit à faire des choix dont certains sont structurants pour l'étude qui est menée ici :

- La mise en œuvre de la transmutation n'est envisagée que dans le cadre d'un parc nucléaire futur comportant des réacteurs adaptés à la transmutation et des installations du cycle capables d'assurer la séparation et le recyclage des radionucléides d'intérêt. Cette stratégie ne s'applique donc pas aux colis de verre du parc électronucléaire actuel (déchets déjà produits et déchets engagés), déchets ultimes destinés au stockage géologique.
- Conformément à la loi de juin 2006 prescrivant de rechercher « une diminution de la quantité et de la nocivité des déchets radioactifs », les éléments cibles d'une option de séparation-transmutation sont les actinides mineurs qui, une fois le plutonium extrait, représentent la composante majoritaire de l'inventaire radiotoxique des déchets à moyen et long termes. Néanmoins, cette option n'a de sens qu'en accompagnement d'une stratégie de recyclage du plutonium qui constitue donc le dénominateur commun de tous les scénarios étudiés.
- Les produits de fission ou d'activation à vie longue ne représentent qu'une très faible proportion de l'inventaire radiotoxique mais en raison de leur relative mobilité dans le milieu géologique, certains d'entre eux (^{129}I, ^{36}Cl) sont à l'origine de l'impact radiologique calculé pour le stockage géologique. Cet impact est extrêmement faible et très inférieur aux exigences réglementaires. Par ailleurs, les études ont montré que la séparation-transmutation de ces éléments était très difficile voire impossible (cf. Annexe 1 : La transmutation des PFVL). Aussi, cette option n'est pas considérée dans les scénarios étudiés.

Quelle que soit la technologie mise en œuvre, la transmutation des actinides mineurs est un processus lent et complexe, et nécessite plusieurs passes en réacteur et donc un multirecyclage des éléments considérés. Une mise en œuvre de la séparation-transmutation permet de réduire immédiatement la quantité d'actinides mineurs mise aux déchets puisque ceux-ci n'y sont plus envoyés (les rendements élevés escomptés pour les opérations de recyclage font que seules des quantités minimes - il est visé de l'ordre de 0,1 % - restent dans les déchets). En revanche, leur inventaire dans les réacteurs et dans le cycle va augmenter et se stabiliser au niveau où leur production sera égale à leur disparition par transmutation. L'importance de cet inventaire dépendra des options de transmutation retenues.

Les options étudiées recouvrent les diverses possibilités offertes par les différents modes de transmutation :

- Le mode de transmutation homogène consistant à diluer les actinides mineurs dans l'ensemble des combustibles des cœurs de RNR ;
- Le mode de transmutation hétérogène consistant à concentrer les actinides mineurs dans des assemblages spécifiques. L'option la plus étudiée est celle des couvertures chargées en actinides mineurs (CCAM) placées en périphérie du cœur des réacteurs, les actinides mineurs étant introduits à une teneur de l'ordre de 10 à 20 % dans une matrice d'oxyde d'uranium. Une autre option examinée est celle des combustibles porteurs d'actinides mineurs (CPAM) dans laquelle ceux-ci sont introduits à teneur plus faible dans des combustibles placés dans la zone externe du cœur.
- Le mode de transmutation en strate dédiée consistant à transmuter les actinides mineurs dans des systèmes spécifiques (ADS) séparés des réacteurs producteurs d'électricité.

Enfin, les actinides mineurs ne constituant pas un ensemble monolithique, les avantages et détriments associés à leur transmutation pourront être très différents d'un élément à l'autre :

- La très longue durée de vie du neptunium lui confère une faible contribution à la radiotoxicité des déchets ultimes pour la période généralement retenue comme période d'intérêt (jusqu'à quelques centaines de milliers d'années, la nocivité ayant sensiblement décru au-delà) ;
- L'américium, et, à un degré moindre mais significatif, le curium (par l'intermédiaire de ses descendants) sont les principaux contributeurs à la radiotoxicité des déchets ultimes dans la période considérée. Le curium entraîne toutefois d'importantes contraintes de radioprotection et de thermique qui font s'interroger sur la faisabilité pratique de sa transmutation (cf. Annexe 2 : Problématique du curium dans le cycle).
- La transmutation de l'américium procure une réduction de la thermique séculaire des déchets, qui peut permettre une optimisation du stockage.

Ainsi, la transmutation du seul américium peut apparaître comme une première étape pour un déploiement industriel d'options de transmutation. Cela constitue l'hypothèse d'une partie des scénarios retenus dans le cadre de cette étude.

5.1.2. LES SCÉNARIOS ÉTUDIÉS

Pour évaluer les différentes options de gestion des déchets, les études de scénarios constituent un outil précieux. Elles procurent une image globale du cycle et des déchets produits au cours du temps, depuis la situation actuelle jusqu'à la situation d'équilibre, et fournissent un bilan technico-économique du scénario considéré. Elles permettent d'apporter un éclairage sur la période transitoire, souvent la plus délicate à gérer en termes de disponibilité de matières, de capacités de recyclage ou d'accumulation de matières entreposées. Les scénarios visent à illustrer l'introduction de la transmutation dans un parc électronucléaire futur sans que l'évolution de ce parc soit le résultat d'une quelconque analyse de compétitivité.

Dans une première phase, on a fait le choix de retenir des scénarios contrastés de gestion des matières afin de mettre l'accent sur les apports et détriments des différentes voies envisagées et de dégager les grandes tendances. Il est important de signaler que ces scénarios ont été conçus pour évaluer des options et non pour tenter de décrire ce que sera la réalité industrielle. Les hypothèses attachées aux scénarios reposent sur l'expérience industrielle transposée au mieux à ces nouvelles options de gestion des matières; elles ne préjugent pas des mises au point de procédés et développements technologiques à mener.

Les scénarios étudiés dans cette première phase ont en commun de considérer que le renouvellement du parc actuel de réacteurs se ferait à puissance installée quasi-constante (60 GWe) produisant 430 TWhe/an. Il serait déployé 40 GWe de réacteurs à eau de type EPR™ entre 2020 et 2040 puis 20 GWe de réacteurs à neutrons rapides entre 2040 et 2050. La date de 2040 correspond à l'hypothèse habituellement retenue pour un possible début de déploiement de la filière RNR et est cohérente avec les grandes échéances de renouvellement du parc électronucléaire et des usines du cycle. L'introduction d'un second ensemble de 40 GWe de RNR se ferait à partir de 2080 en remplacement des EPR™ arrivés en fin de vie. A partir de 2100, le parc électronucléaire serait entièrement constitué de RNR (Figure 29).

Dans tous les scénarios avec transmutation, il est supposé une mise en œuvre conjointe de la séparation et de la transmutation à l'horizon 2040 dès l'introduction des premiers RNR.

La plupart des scénarios sont étudiés jusqu'en 2150, date à laquelle un régime stationnaire devrait être atteint. Pour vérifier ce point, l'un des scénarios a été prolongé jusqu'en 2500 pour s'assurer de l'absence de dérives lentes. Les quantités initiales de matières sont issues de l'inventaire national des déchets radioactifs et des matières valorisables, réalisé par l'Andra en 2006.

Dans ce qui suit, on distinguera essentiellement trois périodes caractéristiques :

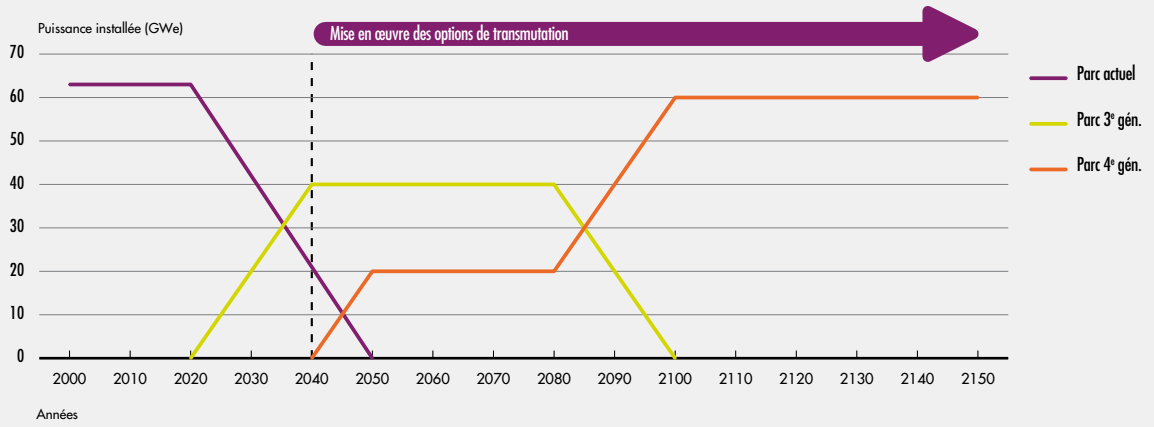
- Avant 2040, période préalable à la mise en œuvre des scénarios dans la continuité de la situation actuelle;
- 2040 à 2110, période transitoire correspondant à un parc mixte REP-RNR;
- Après 2110, période « à l'équilibre » correspondant à un parc entièrement équipé de RNR et à un cycle totalement dédié à leurs combustibles.

5.1.2.1. TECHNOLOGIES DE RECYCLAGE

La majorité des scénarios étudiés considèrent que les réacteurs à neutrons rapides sont des réacteurs à caloporteur sodium (RNR-Na) ce qui constitue l'hypothèse la plus vraisemblable pour un déploiement qui commencerait en 2040. Le scénario F5 suppose qu'il s'agira de réacteurs à caloporteur gaz (RNR-G). Le scénario F7 considère le déploiement d'ADS en parallèle du déploiement des RNR-Na.

À titre de comparaison, un scénario (dénommé F25) ne met en œuvre aucun réacteur à neutrons rapides et considère que les réacteurs construits seront entièrement de type EPR™. Ce scénario suppose en outre l'arrêt du traitement des combustibles usés et du recyclage du plutonium avant 2040.

FIGURE 29 : PRODUCTION PAR FILIÈRE



5.1.2.2. SCÉNARIOS DE RECYCLAGE

Parmi les scénarios considérant le déploiement de RNR-Na, plusieurs options différenciées ont été retenues :

- Le multirecyclage du seul plutonium (scénario F4)
- Le multirecyclage du plutonium et de tout ou partie des actinides mineurs en mode homogène :
  - de tous les actinides mineurs (scénario F2A)
  - de l'américium seul (scénario F2B)
- Le multirecyclage du plutonium et de tout ou partie des actinides mineurs en mode hétérogène dans des couvertures :
  - de tous les actinides mineurs (scénario F1G) (CCAM)
  - de l'américium seul (scénario F1J) (CCAm)
- Le multirecyclage du plutonium et de l'américium en mode hétérogène dans des combustibles porteurs d'américium (scénario F28) (CPAm)
- Le multirecyclage du plutonium en RNR-Na et multirecyclage des actinides mineurs dans une strate dédiée ADS (scénario F7).

Les principaux scénarios étudiés sont résumés dans le tableau suivant.

Le déploiement de réacteurs à neutrons rapides nécessite de récupérer une masse importante de plutonium contenue dans les combustibles usés entreposés en vue de leur traitement. Pour la première vague de déploiement en 2040, le besoin en Pu sera majoritairement couvert par le traitement des combustibles REP-MOX usés.

D'autres scénarios, retenant d'autres hypothèses pour la constitution du parc électronucléaire, ont également été examinés : scénarios à puissance installée croissante, parcs mixtes REL/RNR, RNR déployés plus tardivement (2080)… Ces scénarios, étudiés en premier lieu pour évaluer les transitions possibles entre le parc électronucléaire actuel et un parc RNR de 4e génération (cf. tome 1), ont également été examinés sous l'angle de la transmutation des actinides mineurs.

5.1.2.3. CARACTÉRISTIQUES DES INSTALLATIONS

Réacteurs EPR™

- Puissance thermique unitaire : 4 500 MWth
- Puissance électrique nette unitaire : 1 550 MWe
- Rendement : 34,4 %
- Masse de combustible dans le cœur : 120 t_{MLI}
- Nombre d'assemblages combustibles : 241 (265 crayons/assemblage)
- Gestion : 4 cycles de 370 JEPP
- Taux de combustion moyen : 55 GWj/t (UOX)

RNR-Na

Les caractéristiques retenues sont celles du cœur SFR V2b [22] défini en 2008 :

- Puissance thermique unitaire : 3 600 MWth
- Puissance électrique nette unitaire : 1 450 MWe
- Rendement : 40,3 %
- Masse de combustible dans le cœur : 74 t_{MLI} (dont Pu : 12,2 t)
- Nombre d'assemblages combustibles : 453 (271 aiguilles/assemblage)
- Gestion : 5 cycles de 410 JEPP
- Taux de combustion moyen : 100 GWj/t

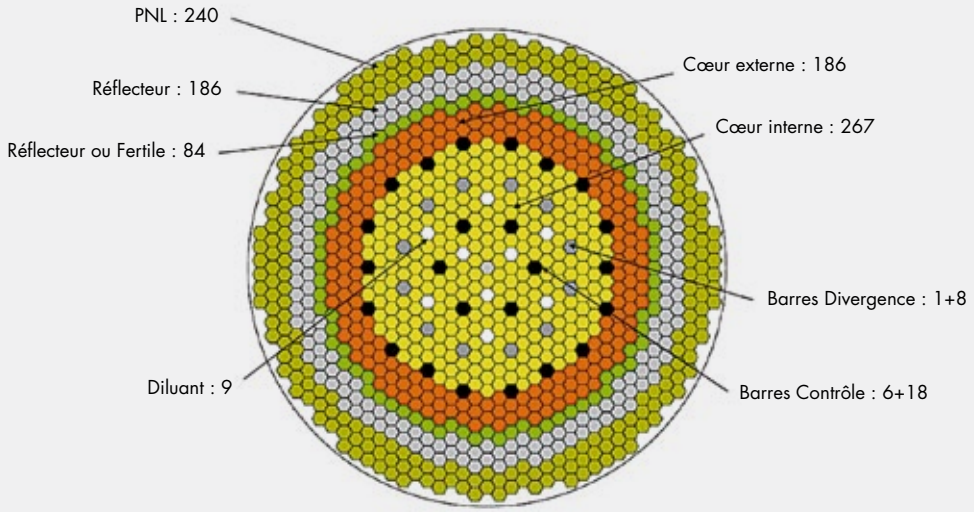
Le scénario F1 considère le déploiement de RNR-Na équipés de couvertures radiales permettant la transmutation des actinides mineurs ou de l'américium seul. Ces couvertures sont

22 – Il a été vérifié qu'un passage du concept SFR V2b (pris en compte ici) au concept CFV (développé pour accroître la sûreté des cœurs et actuellement considéré comme le concept de référence) ne remettrait pas en cause les principaux résultats obtenus dans ces études technico-économiques.

TABLEAU 7 : RÉSUMÉ DES PRINCIPAUX SCÉNARIOS ÉTUDIÉS

	F4	F2A	F2B	F1G	F1J	F7	F5	F28
Réacteurs à neutrons rapides	RNR-Na	RNR-Na	RNR-Na	RNR-Na	RNR-Na	RNR-Na + ADS	RNR-G	RNR-Na
Pas de transmutation	X							
Transmutation en mode homogène		AM	Am				AM	
Transmutation en mode hétérogène (CCAM et CCAm)				AM	Am			
(CPAm)								Am
Transmutation en strate dédiée						AM		

FIGURE 30 : CŒUR SFR V2b



placées à la périphérie du cœur sur 1 ou 2 rangées et possèdent les caractéristiques suivantes :
– Teneurs en AM (ou Am) : 20 % max
– Support : uranium appauvri
– Masse des couvertures : 10,6 à 11,8 t par rangée
– Nombre d'assemblages de couvertures : 84 (1 rangée) ; 174 (2 rangées)
– Longueur de cycle : 4 100 JEPP (retournement à mi-cycle)
– Taux de combustion moyen : ~40 GWj/t (1re rangée) ; ~20 GWj/t (2e rangée)

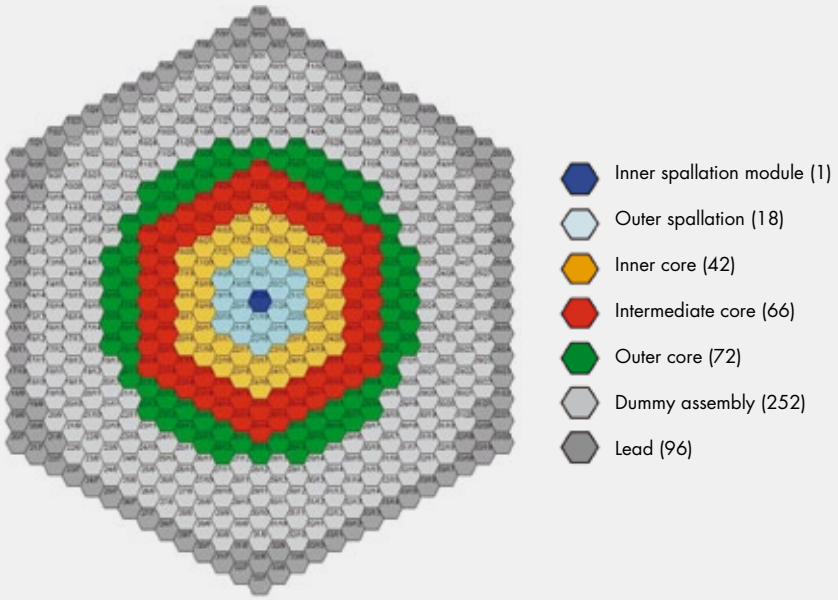
RNR-G

L'image de cœur utilisée correspond au concept de référence actuel (aiguilles carbure et gainage en céramique composite, iso-générateur) conçu pour recycler le plutonium et transmuter les actinides mineurs en mode homogène dans le cœur :
– Puissance thermique unitaire : 2 400 MWth
– Puissance électrique nette unitaire : 1 080 MWe
– Rendement : 45,0 %
– Masse de combustible dans le cœur : 68 t_{MLI} (dont Pu : 10,8 t)
– Taux de combustion moyen : 51 GWj/t

ADS

Le modèle retenu (ADS Pb-EFIT) est celui étudié dans le cadre du projet Eurotrans. Il possède les caractéristiques suivantes :
– Puissance thermique unitaire : 384 MWth

FIGURE 31 : CŒUR ADS Pb-EFIT



– Puissance électrique nette unitaire : 154 MWe
– Rendement : 40 %
– Masse de combustible dans le cœur : 5,4 t_{MLI} (dont Pu : 2,45 t)
– Nombre d'assemblages combustibles : 180 (169 aiguilles/assemblage)
– Gestion : 3 cycles de 365 JEPP
– Taux de combustion moyen : 78 GWj/t

On verra que la faible puissance du modèle considéré constitue un élément pénalisant pour le scénario mettant en œuvre les ADS et qu'il aurait été plus attractif de prendre en compte des systèmes de plus forte puissance. Néanmoins, il faut être conscient qu'il n'existe encore aucune démonstration de faisabilité d'un concept ADS, même de faible puissance, et que le modèle considéré dans ces scénarios représente ce qui existe de plus « industriel » actuellement. Les ADS de forte puissance relèvent aujourd'hui davantage d'une piste théorique à explorer que d'une donnée de scénario crédible.

Le combustible est composé d'oxyde de plutonium et d'actinides mineurs sur une matrice inerte de type MgO (oxyde de magnésium). Les teneurs moyennes des oxydes de plutonium et d'actinides mineurs sont respectivement de 33 % et 40 %.

La durée de vie de tous les réacteurs considérés ci-dessus est de 60 ans. Par hypothèse, la durée de vie des installations du cycle est, à ce stade, fixée à 40 ans. Au-delà des installations actuelles qui restent en fonctionnement jusque vers 2040, ce sont trois générations d'usines qui se succèdent sur la période considérée dans les scénarios. Les deux premières accompagnent respectivement la première et la seconde vague de déploiement des réacteurs à neutrons rapides. La troisième génération est associée à un parc constitué dans sa globalité de RNR.

La nature et les quantités de combustibles à traiter ou à fabriquer évoluant grandement entre 2040 et 2150, chaque génération d'usines présente des caractéristiques propres.

5.1.2.4. CONTRAINTES RETENUES POUR LES SCÉNARIOS

Les scénarios ont été bâtis sur des concepts techniques connus ou en développement qui ont été extrapolés aux situations rencontrées dans les scénarios. Il est certain que les progrès techniques qui seront accomplis dans les périodes de temps considérées rendront obsolètes certaines des options ou des hypothèses retenues aujourd'hui. Cela n'obère en rien les résultats de ces études de scénarios qui n'ont pas l'objectif d'être représentatives d'un futur (que l'on ne connaît pas), mais de mettre en évidence les points durs qui pourraient accompagner la mise en œuvre de ces scénarios afin d'orienter, le cas échéant, la recherche de solutions à ces difficultés techniques.

Il en est de même pour un certain nombre de contraintes qui ont été introduites dans les hypothèses des scénarios pour donner un fil conducteur commun à l'enchaînement et au déroulement des opérations dans le temps. Il s'agit de contraintes de nature industrielle liées par exemple à des capacités de traitement ou d'entreposage, ou des limitations techniques comme le temps de refroidissement minimal des combustibles. Aucune de ces contraintes ne semble avoir de caractère impératif et certaines d'entre elles pourraient être ajustées si nécessaire.

5.1.3. LES CRITÈRES D'ÉVALUATION

La transmutation des radionucléides à vie longue s'inscrit dans le souhait d'optimiser la gestion des déchets radioactifs et des bénéfices peuvent en être espérés sur le plan technique, économique ou sociétal. D'un autre côté, la transmutation implique de réaliser des opérations industrielles nouvelles souvent complexes et qui peuvent être coûteuses et risquées.

Un tel sujet présente donc un niveau de complexité important et le nombre de critères d'évaluation peut rapidement devenir très élevé, les rendant inexploitables dans la pratique. Les études de scénarios fournissent quant à elles un grand nombre de résultats dans des domaines variés qui ne peuvent qu'amplifier cette tendance.

La sélection des critères d'évaluation a été une question centrale de l'analyse que l'on a cherché à mener : ils doivent tenir compte du point de vue de l'ensemble des acteurs (scientifiques, industriels, politiques, public…), ne pas être redondants et former un ensemble cohérent qui soit le moins contestable possible. La méthode utilisée a consisté à regrouper sous un certain nombre de questions clés, l'ensemble des interrogations des différents acteurs, puis de définir, dans un second temps, les indicateurs permettant de répondre à ces questions. Celles-ci sont reprises et détaillées ci-dessous :

– Quels sont les inventaires et les caractéristiques des matières et déchets induits par les différents scénarios ?
– Quel est l'impact des différents scénarios sur les caractéristiques des installations (réacteurs, usines, entreposages) et les besoins en transport ?
– Quel est l'impact des différents scénarios sur le stockage géologique ? (emprise souterraine, sûreté…)
– Quel est l'impact de chaque scénario sur la radioprotection du public et des travailleurs ?
– Quel est l'impact économique de chaque scénario ?
– Quel est le risque industriel inhérent à chaque scénario ?
- Maîtrise, maturité et progressivité de l'introduction des technologies dans le parc ;
- Flexibilité des technologies face à des changements éventuels de contexte
- Conséquence de défaillances
– Quelle est la résistance à la prolifération de chaque scénario ?

Le chapitre suivant apporte des éléments de réponse à ces différentes questions.

5.2. LES RÉSULTATS DES SCÉNARIOS

5.2.1. LES INVENTAIRES

Comme déjà évoqué plus haut, le dénominateur commun des scénarios étudiés est de disposer d'une stratégie de recyclage du plutonium car une quelconque gestion des actinides mineurs ne peut avoir de sens si l'on ne dispose pas simultanément d'une technologie capable d'utiliser de manière pérenne l'actinide majeur qu'est le plutonium.

On sait que les réacteurs à neutrons rapides offrent cette possibilité. En spectre rapide, tous les isotopes du plutonium sont fissiles et contribuent positivement au bilan neutronique de sorte que le recyclage du plutonium est possible quelle que soit sa qualité isotopique. Le recyclage récurrent du plutonium dans les RNR permet, pour une large gamme de composition du lot de plutonium initial, de faire évoluer sa composition isotopique vers une composition d'équilibre, permettant naturellement le recyclage du plutonium dans de tels systèmes.

Contrairement à un parc de réacteurs à eau qui produit inévitablement des quantités croissantes de plutonium (atteignant 1 600 tonnes en 2150 pour le scénario considéré), un parc de RNR recyclant le plutonium permet de stabiliser l'inventaire de Pu vers 900-1 000 tonnes pour une capacité installée de 60 GWe (cf. figure 32). La stabilisation implique que les RNR soient isogénérateurs, c'est-à-dire qu'ils produisent autant de plutonium qu'ils en consomment. Le parc est alors capable de s'autoalimenter en plutonium et ne requiert qu'un appoint d'uranium 238 pour fonctionner.

5.2.1.1. LES PRINCIPAUX RÉSULTATS À L'ÉQUILIBRE

Dans le cas du recyclage du Pu seul en RNR sans transmutation des AM, la teneur en actinides mineurs dans le combustible irradié est d'environ 0,4 % (contre environ 0,1 % dans un combustible REP-UOX)

La transmutation des actinides mineurs conduit à considérer à l'équilibre :

– une teneur d'environ 1,2 % d'AM dans les combustibles dans le cas de la transmutation en mode homogène ; dans ce cas tous les réacteurs du parc sont impliqués ;
– ou une rangée de couvertures radiales chargées à 20 % d'actinides mineurs dans 75 % des réacteurs du parc ;
– ou le déploiement de 18 ADS de 385 MWth dans le cas de la transmutation en réacteurs dédiés.

La transmutation du seul américium nécessite à l'équilibre :

– une teneur d'environ 0,8 % en mode homogène dans la totalité du parc ;
– ou une rangée de couvertures radiales chargées à 10 % d'américium dans tous les réacteurs du parc.

5.2.1.2. LA PÉRIODE TRANSITOIRE

Elle se révèle plus contraignante car il n'y a pas nécessairement adéquation entre la quantité d'actinides mineurs à transmuter et le nombre de RNR déployés. C'est en particulier le cas entre 2040 et 2100. Cela conduit par exemple :

– en mode homogène, à atteindre une valeur d'environ 2,5 % d'actinides mineurs dans le combustible (en optimisant la stratégie de traitement des combustibles usés) ;
– en mode hétérogène, à considérer deux rangées de couvertures chargées à 20 % d'actinides jusque vers 2100.

Ces résultats dépendent des hypothèses retenues pour les scénarios et en particulier des contraintes qui leur ont été associées. Ces hypothèses ont déjà fait l'objet d'un travail d'optimisation pour essayer de lisser les pics rencontrés qui dimensionnent les installations du cycle.

5.2.1.3. LA DISPONIBILITÉ DU PLUTONIUM

Le déploiement de réacteurs à neutrons rapides requiert de récupérer une masse importante de plutonium contenue dans les combustibles usés : en premier lieu pour la fabrication du premier cœur (même si en toute rigueur, il est possible aussi de réaliser les premières charges à l'uranium enrichi, ce qui n'a pas été considéré dans le scénario étudié), puis ultérieurement pour produire les recharges de combustibles. Dans les conditions du scénario retenu, le déploiement de la première vague de RNR-Na à partir de 2040 ne pose pas de problèmes et l'on peut aboutir à un parc 100 % RNR avant la fin du siècle, soit en anticipant le traitement des combustibles RNR usés (temps de refroidissement réduit à 3,4 ans au lieu de 5 ans), ou en faisant évoluer le concept de réacteur (mise en place de couvertures fertiles) pour disposer du plutonium nécessaire.

Le déploiement de réacteurs ADS est également confronté à un léger déficit de plutonium. Des pistes semblables à celles évoquées ci-dessus sont envisageables.

Le déploiement de RNR-G se heurte, quant à lui, pour le scénario étudié, à un déficit de plus de 500 tonnes de plutonium. Cela indique que le concept isogénérateur considéré n'est pas, pour ce type de réacteurs, compatible avec le scénario envisagé et qu'il faudrait a minima prendre en compte l'adjonction de dispositifs fertiles.

FIGURE 32 : INVENTAIRE GLOBAL EN PLUTONIUM

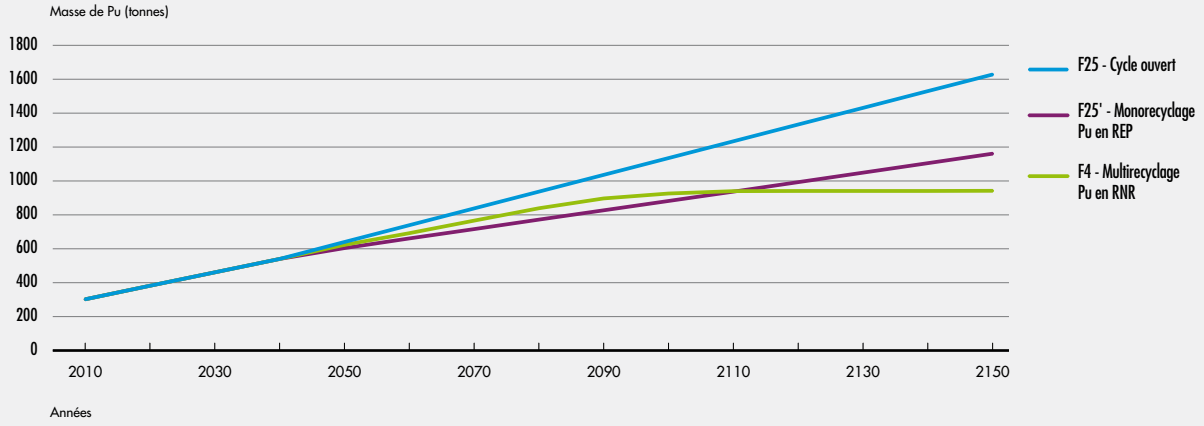
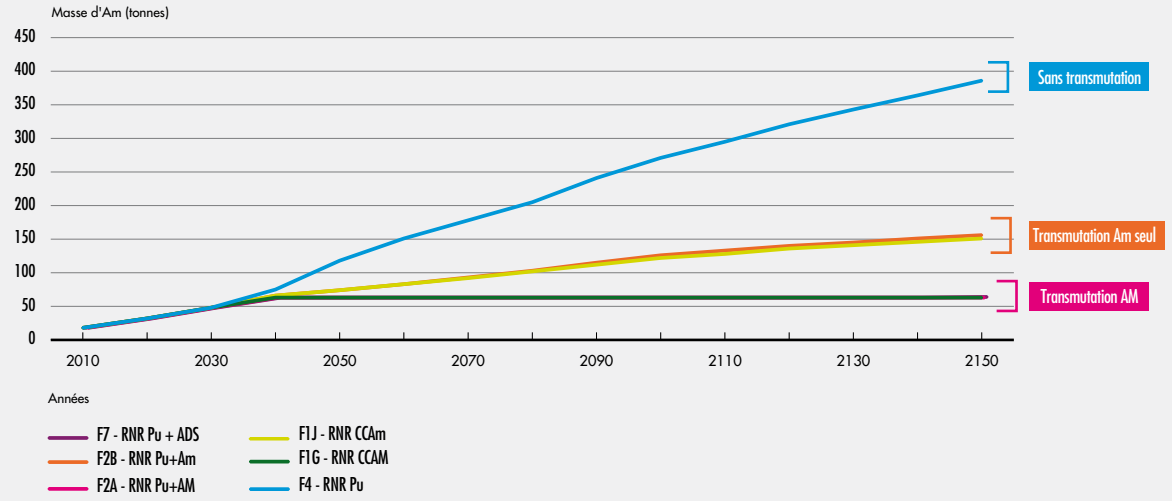


FIGURE 33 : INVENTAIRE DES ACTINIDES MINEURS AUX DÉCHETS



5.2.1.4. LES INVENTAIRES EN ACTINIDES MINEURS

Inventaire dans les déchets

Le recyclage et la transmutation des actinides mineurs permettent de limiter considérablement la quantité présente dans les déchets puisque de facto, à l'exception de pertes minimes, ceux-ci n'y sont plus envoyés. L'inventaire des actinides mineurs dans les déchets dépendra pour l'essentiel de l'option de transmutation retenue (Figure 33).

Si le non-recyclage des actinides mineurs conduit à augmenter continûment leur inventaire aux déchets (pour atteindre près de 400 tonnes en 2150), la transmutation de la totalité des actinides mineurs permet de stabiliser cet inventaire aux alentours de 60 tonnes, quel que soit le mode de transmutation retenu (homogène, hétérogène, ADS). Entre ces deux options extrêmes, la transmutation du seul américium entraîne une augmentation modérée de l'inventaire aux déchets, due au curium et au neptunium : la valeur atteinte en 2150 est de l'ordre de 150 tonnes.

Inventaire dans le cycle

Le pendant immédiat de la mise en œuvre d'une option de transmutation des actinides mineurs est une augmentation de l'inventaire en cycle. On rappelle que le terme « cycle » désigne ici l'ensemble des installations de la boucle suivie par les actinides (usine de fabrication des combustibles, réacteur, usine de traitement).

Quel que soit le mode de transmutation, l'inventaire en actinides mineurs dans le cycle va augmenter jusqu'au niveau d'équilibre où leur production sera égale à leur disparition par transmutation. Les inventaires sont d'autant plus faibles que le mode de transmutation est plus efficace. On voit sur la Figure 34 que le mode homogène conduit toujours aux inventaires les moins élevés (76 tonnes pour la transmutation de tous les actinides mineurs, 57 tonnes pour la transmutation du seul américium). Le mode hétérogène mène à des valeurs supérieures (respectivement 110 tonnes et 86 tonnes) traduisant une cinétique de transmutation plus faible puisque les couvertures sont placées dans des zones périphériques où le flux neutronique est réduit.

La transmutation dans des combustibles porteurs d'actinides mineurs conduit à un inventaire proche de celui obtenu avec le mode homogène. Ce résultat reflète l'équivalence des flux neutroniques pour ces deux modes de transmutation.

Le haut niveau d'inventaire en cycle (155 tonnes) pour la transmutation en ADS s'explique de la manière suivante : bien que l'inventaire en réacteur soit comparable à celui de la transmutation homogène en RNR, la faible durée du cycle d'irradiation (3 ans), due à la faible puissance des ADS[23], rend l'inventaire hors

23 – Les cœurs de petite taille ont des fuites neutroniques proportionnellement plus élevées et nécessitent un rechargement en matière fissile fréquent.

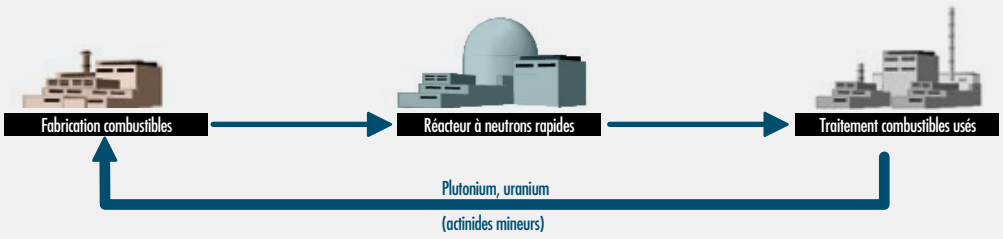
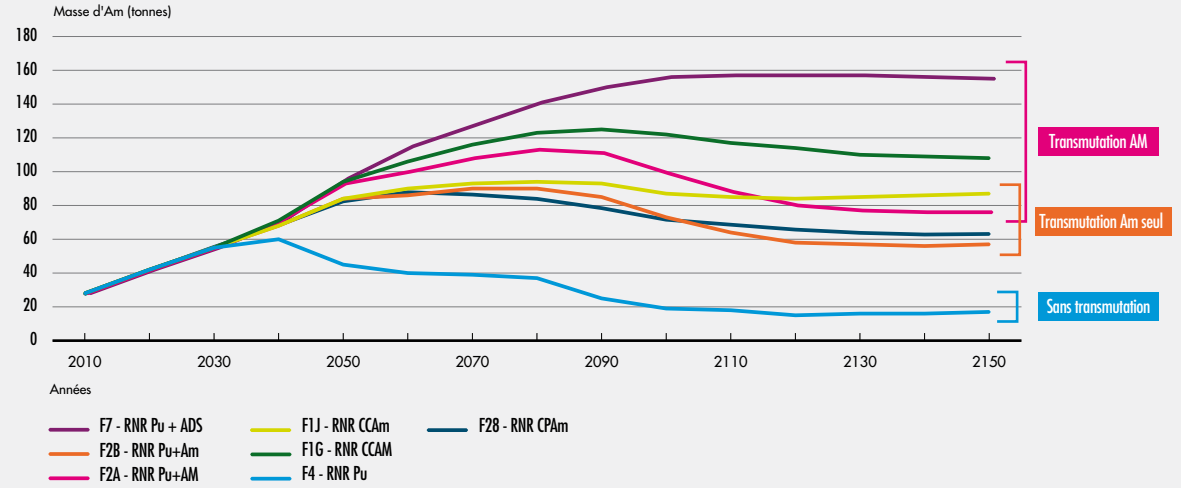


FIGURE 34 : INVENTAIRE DES ACTINIDES MINEURS EN CYCLE



réacteurs (5 ans pour le traitement + 2 ans pour la fabrication) proportionnellement plus important. Ce terme devient ici prédominant. L'augmentation de la puissance des ADS permettrait d'aller vers des inventaires comparables à ceux des RNR.

Toutes ces valeurs peuvent être comparées au cas sans transmutation pour lequel l'inventaire en cycle se stabilise à moins de 20 tonnes d'actinides mineurs.

Inventaire total

La Figure 35 présente l'inventaire total en actinides mineurs globalisant les quantités présentes dans les déchets et dans le cycle. Seuls les scénarios comportant la transmutation de tous les actinides mineurs permettent de stabiliser leur inventaire, le niveau le plus faible est atteint avec la transmutation en mode homogène (135 tonnes), suivi de l'hétérogène (170 tonnes) et du scénario de transmutation en ADS (220 tonnes).

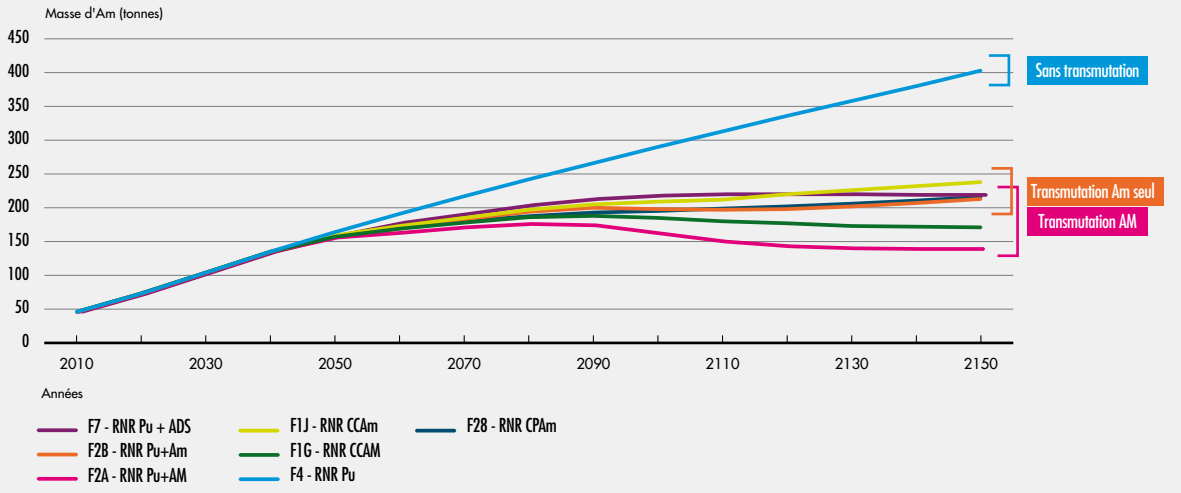
Les scénarios avec transmutation de l'américium seul induisent une légère augmentation continue de l'inventaire global en AM du fait de l'accumulation du neptunium et du curium dans les déchets. Par rapport aux scénarios recyclant l'ensemble des AM, l'écart s'établit à environ 70 tonnes en 2150 aussi bien en mode homogène qu'hétérogène.

En revanche, pour le scénario de multirecyclage du Pu seul sans transmutation des actinides mineurs, leur inventaire global croît tout au long du scénario quasi linéairement pour atteindre 400 tonnes en 2150.

5.2.2. IMPACT SUR LA GESTION DES DÉCHETS

Comme montré ci-avant, la mise en place de la transmutation des actinides mineurs permet de réduire la quantité mise aux déchets. Mais la question se pose de savoir en quoi, cela peut constituer une amélioration dans la gestion globale des déchets. Différents indicateurs sont susceptibles d'être utilisés pour mesurer l'effet de cette réduction d'inventaire.

FIGURE 35 : INVENTAIRE GLOBAL EN ACTINIDES MINEURS



5.2.2.1. VOLUME DES DÉCHETS

La transmutation des actinides mineurs est souvent associée à l'idée de diminuer sensiblement le volume ou la masse des déchets de haute activité. Si la transmutation permet effectivement de réduire la masse d'actinides mineurs présents dans les déchets, il n'est pas toujours justifié de transposer directement ce résultat aux déchets proprement dits.

En effet, la masse ou le volume des déchets HA à stocker est lié directement au nombre de colis primaires produits. Les colis primaires CSD-V[24] doivent respecter les deux limites opérationnelles suivantes :

– Une limite chimique correspondant à une teneur en produits de fission et actinides (PFA) dans le verre bornée en pratique à 17,5 % (exprimée en masse d'oxyde) ; la masse d'actinides étant généralement inférieure d'au moins un ordre de grandeur à la masse de produits de fission, le nombre de colis sera impacté au premier ordre par la masse de produits de fission à vitrifier et sera en conséquence peu influencé par le scénario de transmutation considéré ;

– Une limite de teneur en émetteurs alpha pour faire en sorte que le nombre de désintégrations alpha cumulé sur 10 000 ans soit limité par gramme de verre à 1. 10^{19} (valeur actuelle) ou 2. 10^{19} (valeur jugée accessible dans l'avenir compte tenu des avancées scientifiques dans le domaine). Contrairement à la précédente, cette limite impactera la masse d'actinides mineurs introduite par colis. Le nombre de CSD-V produits pourra dans ce cas être très dépendant du scénario de transmutation considéré.

Le Tableau 8 indique pour chacun des scénarios la limite régissant la production de CSD-V et le nombre de colis produits sur l'ensemble de la durée du scénario.

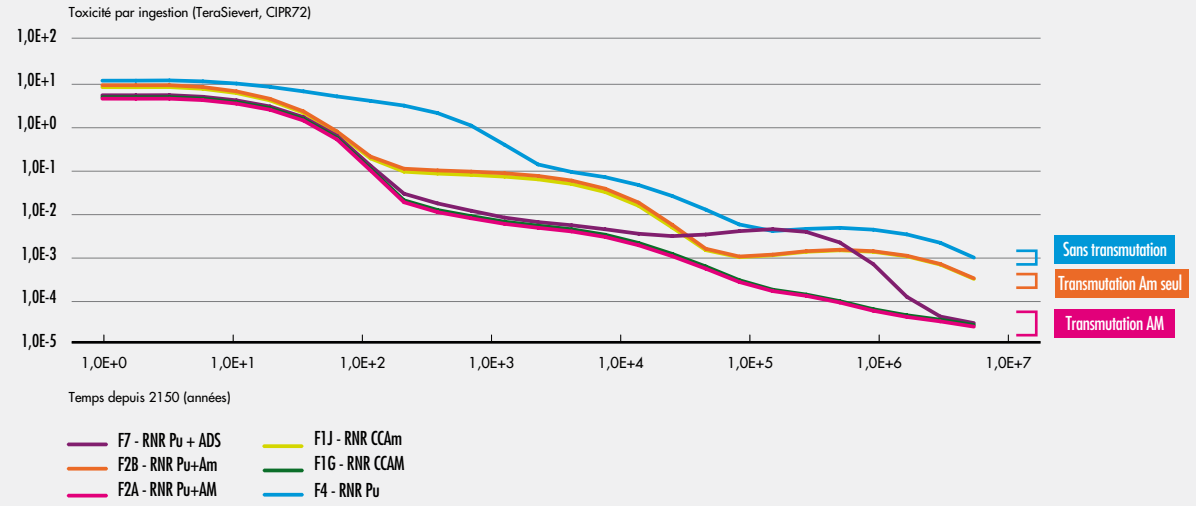
Avec la limite alpha actuelle (1.10^{19} désintégrations par g de verre), la transmutation des actinides mineurs permet de réduire d'une quarantaine de pourcents la quantité de déchets vitrifiés produite. Si, selon toute vraisemblance, la limite alpha est doublée, la mise en œuvre de la transmutation n'apporte alors qu'une réduction d'une dizaine de pourcents de la quantité de CSD-V.

24 – Colis Standard de Déchets Vitrifiés

TABLEAU 8 : QUANTITÉ ET VOLUME DES DÉCHETS VITRIFIÉS DE HAUTE ACTIVITÉ SELON LES SCÉNARIOS

SCÉNARIOS	Limite alpha à 1. 10^{19}		Limite alpha à 2. 10^{19}	
	Limite opérationnelle	Nombre et volume des CSD-V	Limite opérationnelle	Nombre et volume des CSD-V
SANS TRANSMUTATION	alpha	150 000 colis (26 000 m³)	PFA	103 000 colis (18 000 m³)
TRANSMUTATION Am SEUL	PFA	96 000 colis (17 000 m³)	PFA	96 000 colis (17 000 m³)
TRANSMUTATION Am	PFA	89 000 colis (16 000 m³)	PFA	89 000 colis (16 000 m³)

FIGURE 36 : INVENTAIRE DE RADIOTOXICITÉ PAR INGESTION DES DÉCHETS PRODUITS APRÈS LA DATE DE MISE EN ŒUVRE DE LA TRANSMUTATION



5.2.2.2. INVENTAIRE DE RADIOTOXICITÉ

La notion d'inventaire de radiotoxicité par ingestion correspond à la dose que recevrait un ensemble d'individus qui aurait ingéré la totalité de la matière radioactive considérée. Cette valeur, attachée à une source, ne s'appuie sur aucun scénario de contamination et suppose que les radionucléides sont potentiellement libres et disponibles. Elle ne doit donc pas être assimilée à un impact dosimétrique qui prend en compte les barrières et les mécanismes de transfert depuis la source jusqu'à l'individu.

L'inventaire radiotoxique par ingestion reste néanmoins une caractéristique de la nocivité intrinsèque des déchets radioactifs. C'est pour cette raison qu'elle est depuis longtemps couramment utilisée, notamment dans les exercices internationaux, pour comparer les différents scénarios de traitement et de gestion de déchets radioactifs.

La Figure 36 représente l'inventaire en radiotoxicité par ingestion des déchets produits après la date de mise en œuvre de la transmutation et selon les différents scénarios étudiés ; on s'intéresse à l'évolution dans le temps de cette radiotoxicité du fait de la décroissance des éléments radioactifs. Au cours des 100 premières années suivant la mise au stockage, la principale contribution provient des produits de fission et les différences entre scénarios sont peu marquées. Au-delà de la centaine d'années, ce sont évidemment les scénarios avec transmutation de tous les AM qui permettent les réductions de radiotoxicité les plus marquées. Le gain par rapport au scénario sans transmutation (F4) varie entre 20 et 100 et se maintient tout au long de la période considérée.

Les scénarios avec transmutation de l'américium seul permettent des réductions similaires au cours du premier millénaire mais cette réduction s'atténue nettement par la suite pour ne plus dépasser un facteur 2. Cela s'explique par la présence de ^{240}Pu, radionucléide à vie longue (6 600 ans) produit par la décroissance radioactive du ^{244}Cm, dont les quantités augmentent significativement avec la transmutation de l'américium (^{243}Am) : la mise aux déchets de ce curium limite donc, dans une large mesure, le gain sur la radiotoxicité à long terme des déchets.

Si l'on s'intéresse maintenant à l'ensemble des déchets produits au cours des scénarios étudiés (Figure 37), on constate que la réduction de radiotoxicité est moindre et se trouve limitée par le talon des déchets produits avant la mise en œuvre de la transmutation. Le gain lié à la transmutation de tous les AM par rapport au scénario sans transmutation, se situe dans une plage de 5 à 8. Cette valeur n'est qu'indicative puisqu'elle dépend du poids relatif des déchets produits avant et après mise en œuvre de la transmutation

On notera que l'on retrouve la limitation déjà évoquée sur le gain en radiotoxicité au-delà de 1 000 ans si l'on ne recycle que l'américium.

Remarque : le talon que constitue, à l'autre extrémité, l'inventaire de matières présent dans le cycle en fin de scénario (arrêt des systèmes électronucléaires de fission) devrait pouvoir être significativement résorbé par la mise en œuvre d'opérations particulières ; de tels scénarios dits « de fin de vie » ou de « phase-out » sont examinés plus loin au chapitre 5.3.

5.2.2.3. IMPACT RADIOLOGIQUE DU STOCKAGE

Si l'inventaire de radiotoxicité peut constituer un indicateur pertinent pour mesurer la dangerosité des déchets stockés, il ne peut rendre compte directement des conséquences de la présence de ces déchets pour l'homme ou l'environnement. En effet, par conception, un stockage vise à protéger l'homme et l'environnement en isolant les déchets de l'homme et en limitant le transfert des substances radioactives jusqu'à l'en-

FIGURE 37 : INVENTAIRE DE RADIOTOXICITÉ PAR INGESTION DES DÉCHETS PRODUITS AU COURS DES SCÉNARIOS ÉTUDIÉS

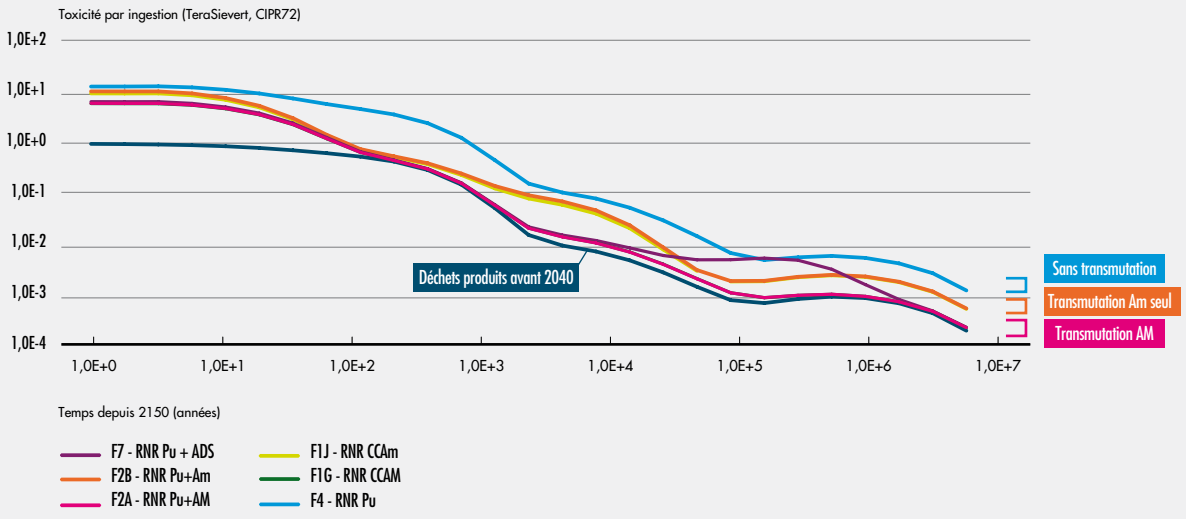
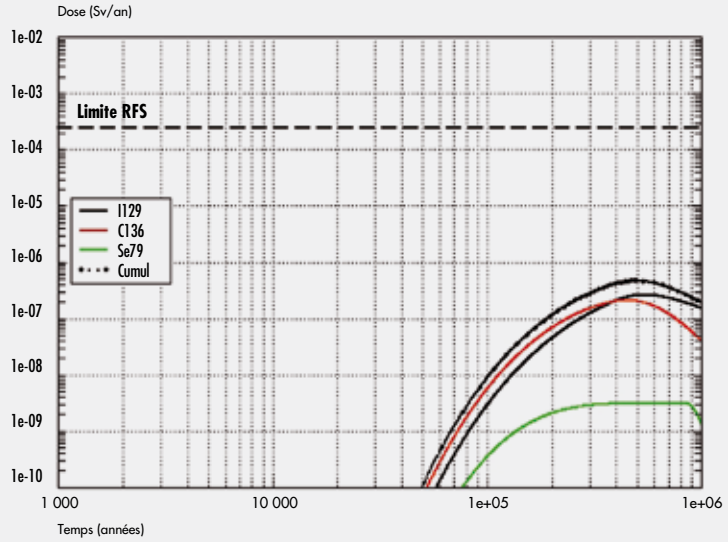


FIGURE 38 : DOSES À L'EXUTOIRE SAULX DE L'OXFORDIEN – COLIS TYPES (C1+C2) SCÉNARIO D'ÉVOLUTION NORMALE



vironnement. Différentes barrières sont mises en œuvre de manière à assurer cette protection dans diverses situations d'évolution normale ou altérée.

Vis-à-vis du transfert des substances radioactives, l'impact radiologique à l'exutoire constitue un indicateur essentiel de sûreté du stockage pour le long terme et vise à représenter le détriment maximal auquel seront soumises les populations vivant à proximité. Dans l'étude de sûreté qu'elle a menée pour le dossier 2005, l'Andra démontre que les seuls contributeurs aux doses radiologiques reçues aux exutoires du stockage sont les produits de fission ou d'activation à vie longue : ^{129}I, ^{36}Cl et ^{79}Se (cf. Figure 38). Les niveaux atteints sont très inférieurs à la limite de 0,25 mSv/an fixée par la Règle fondamentale de sûreté (RFS).

Pour les actinides, l'Andra a mis en évidence que leur forte rétention chimique dans les argilites du Callovo-Oxfordien les confinait quasi-totalement dans le champ proche, et que la quantité pouvant migrer par diffusion et sortir de la formation hôte, dans l'hypothèse la plus pénalisante, était négligeable quel que soit l'horizon temporel considéré. Partant de ce constat, leur contribution à l'impact global pour les scénarios d'évolution normale est nulle. Les actinides ont par contre été pris en compte dans des calculs d'impact en situations altérées (par exemple en cas de forage accidentel dans le stockage), leur contribution restant négligeable pour les cas étudiés.

Dans ces conditions, il apparaît que la présence ou non d'actinides dans les déchets n'est pas de nature à modifier l'impact radiologique du stockage sur son environnement. On en conclut donc que la transmutation des actinides mineurs ne peut avoir d'effet tangible sur cet indicateur.

Seules des situations d'intrusion, conduisant à mettre directement en contact des individus avec les déchets, sont susceptibles de conduire à une contribution déterminante des actinides à la dose délivrée. La fonction d'isolation des déchets des activités humaines, assurée notamment par le stockage en profondeur et l'absence de ressources à caractère exceptionnel sur le site, vise à prévenir ce risque.

5.2.2.4. PUISSANCE THERMIQUE DES DÉCHETS

Un autre critère qui peut être considéré est la puissance thermique résiduelle des colis HA issus du traitement des combustibles usés. Cette puissance thermique conduit à une élévation de la température qu'il faut limiter afin, d'une part, d'éviter les domaines des températures élevées où les phénomènes sont encore mal connus et entachés d'incertitudes et, d'autre part, de prévenir d'éventuels effets cinétiques accélérateurs de l'altération des colis ou du milieu géologique. Pour les calculs de dimensionnement thermique, l'Andra a retenu une température maximale de 90° C au contact de la roche. Cette limite amène des contraintes pour le stockage, notamment un entreposage préalable d'au moins 60 ans et la nécessité d'espacer les colis et donc d'utiliser la ressource stockage dans des conditions qui ne sont peut-être pas optimales.

La puissance thermique des colis HA comporte essentiellement trois composantes :
– les produits de fission de période moyenne (~30 ans) : ^{137}Cs et ^{90}Sr ;
– le ^{244}Cm de 18 ans de période ;
– l'^{241}Am de période 433 ans.

Les deux premières composantes ont une contribution significative pendant 100-120 ans. Au-delà, la puissance thermique résiduelle des colis HA est essentiellement due à l'^{241}Am qui constitue un talon thermique décroissant beaucoup plus lentement. De ce fait, à puissance thermique initiale donnée, l'américium est un plus grand consommateur d'espace que les radionucléides de période plus courte.

TABLEAU 9 : NOMBRE ET VOLUME DES COLIS PRIMAIRES PRODUITS DANS LES TROIS SCÉNARIOS ÉTUDIÉS

SCÉNARIOS		Pas de transmutation	Transmutation Am seul	Transmutation de tous les AM
COLIS HA (CSD-V)		103 000 colis (18 000 m³)	96 000 colis (17 000 m³)	89 000 colis (16 000 m³)
COLIS MA-VL	DÉCHETS DE STRUCTURE (CSD-C)	246 000 colis (45 000 m³)	254 000 colis (46 000 m³)	255 000 colis (46 000 m³)
	DÉCHETS TECHNOLOGIQUES	55 000 colis (15 000 m³)		

Aussi, l'association de la transmutation de l'américium, permettant de l'enlever des colis de déchets, et d'une durée d'entreposage suffisante pour laisser décroître la puissance des produits de fission et du curium offre, dans son principe, une possibilité de réduire l'emprise souterraine d'un site de stockage géologique des déchets, dans l'objectif d'optimiser l'utilisation de la « ressource rare » que constitue un site de stockage.

Afin d'avoir une idée plus précise et plus complète de l'influence sur le stockage de la séparation-transmutation des actinides mineurs contenus dans les combustibles usés, il a été demandé à l'Andra d'évaluer l'impact de la nature des déchets HA et MA-VL issus d'options de transmutation, sur le dimensionnement et le coût de leur stockage.

Trois scénarios ont servi de base à cette étude :

– Le premier scénario est relatif au recyclage du plutonium seul (scénario F4), les actinides mineurs et les produits de fission constituant alors des déchets HA.

– Le deuxième est relatif au recyclage du Pu et à la transmutation de l'ensemble des actinides mineurs en CCAM (scénario F1G) ; les déchets HA ne contiennent que des produits de fission.

– Le troisième est relatif au recyclage du plutonium et la transmutation du seul américium en CCAm (scénario F1J) ; les déchets HA comprennent alors les produits de fission, le curium et le neptunium.

A noter que les déchets considérés dans cette étude n'entrent pas, pour l'essentiel, dans le modèle d'inventaire de dimensionnement du projet Cigéo. La présente évaluation porte sur un ou deux stockages hypothétiques qui seraient mis en œuvre pour de nouveaux parcs électronucléaires. Mais elle retient par hypothèse une situation géologique similaire à celle de Meuse/Haute-Marne.

Une première étude menée en 2010 avait pour objectifs : (i) de comparer l'emprise souterraine, le volume excavé et le

FIGURE 39 : ÉVOLUTION DE LA PUISSANCE THERMIQUE DES COLIS CSD-V AVEC LA DURÉE D'ENTREPOSAGE

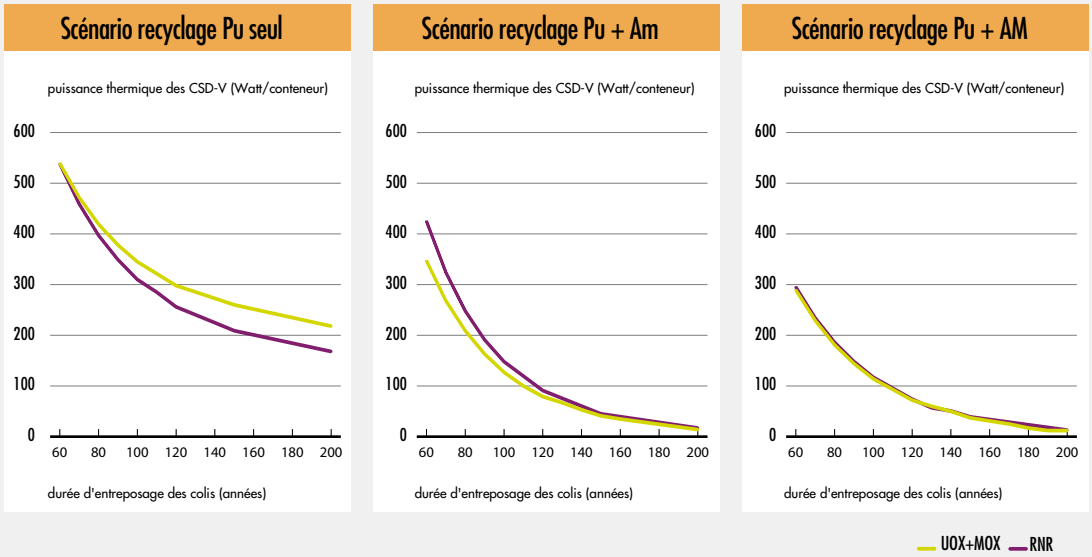
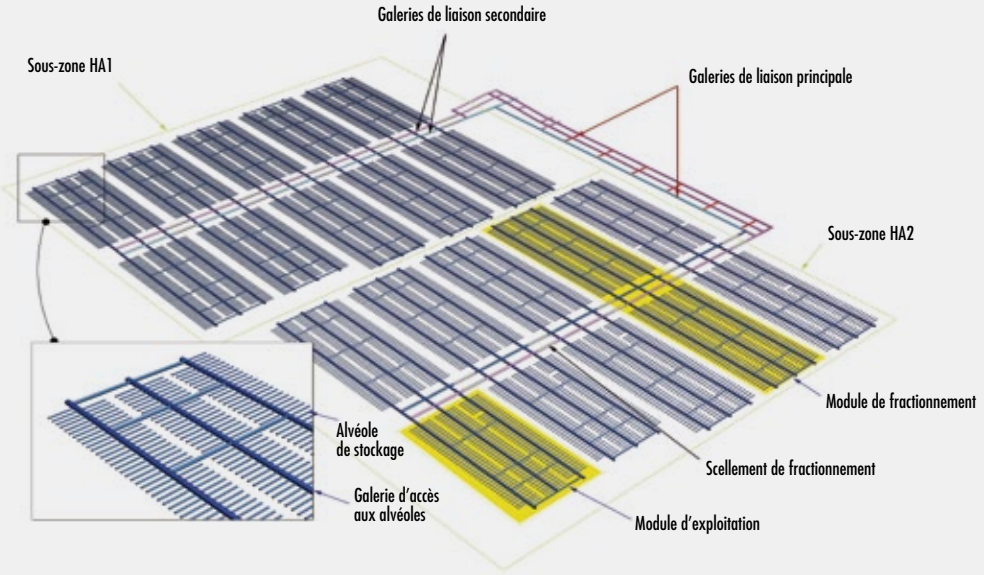


FIGURE 40 : PRINCIPE D'ORGANISATION D'UNE ZONE DE STOCKAGE DES DÉCHETS HA



coût du stockage pour chaque scénario, (ii) d'évaluer l'impact de la durée préalable d'entreposage (70 ans ou 120 ans), (iii) de comparer l'emprise et le coût de deux centres de stockage successifs et ceux d'un centre unique.

Le nombre de colis attendu a été déterminé pour chacun des trois scénarios et est indiqué dans le Tableau 9. On constate que les quantités sont proches d'un scénario à l'autre. A noter que les flux annuels apparaissent du même ordre de grandeur que ceux envisagés dans le cadre du projet Cigéo. Cela permet de reconduire les options actuelles du projet en matière d'infrastructures et de moyens d'exploitation.

Si le nombre de colis produits est du même ordre de grandeur pour tous les scénarios, on constate, comme attendu, d'importantes disparités entre les puissances thermiques émises par les colis CSD-V (Figure 39) ; elles sont pour l'essentiel dues à la puissance thermique de l'américium présent ou non dans les colis.

Pour cette étude, l'Andra a retenu des architectures de stockage comparables à celles du projet Cigéo. Les colis HA sont déposés dans des alvéoles de stockage consistant en des micro-tunnels dont le diamètre est proche de celui des colis de stockage, ménageant un faible jeu pour leur manutention. Ces alvéoles sont desservies par des galeries d'accès elles-mêmes horizontales, situées dans le même plan que les alvéoles. Les alvéoles sont revêtues d'un chemisage métallique qui assure leur stabilité dimensionnelle.

Les alvéoles de stockage sont organisées en « modules ». Ces modules sont réalisés au fur et à mesure de la mise en stockage des colis de déchets, le creusement d'un nouveau module s'effectuant pendant l'exploitation du précédent. Les modules sont desservis par des galeries de liaison secondaires.

La modularité participe à la sûreté à long terme. Elle permet en effet de compartimenter le stockage pour réduire la quantité de déchets et de radionucléides qui pourraient être affectés dans une situation hypothétique de défaillance ou d'intrusion. L'inventaire radiologique du stockage est ainsi fractionné. Pour cette étude, l'Andra a choisi de dimensionner chaque module de façon à ce que l'inventaire en produits de fission à vie longue qu'il contient (en pratique l'iode 129) soit comparable à celui des modules de stockage de déchets HA du projet étudié en Meuse/Haute-Marne. Le nombre de modules reste donc constant et c'est leur taille qui diminue quand la compacité du stockage augmente.

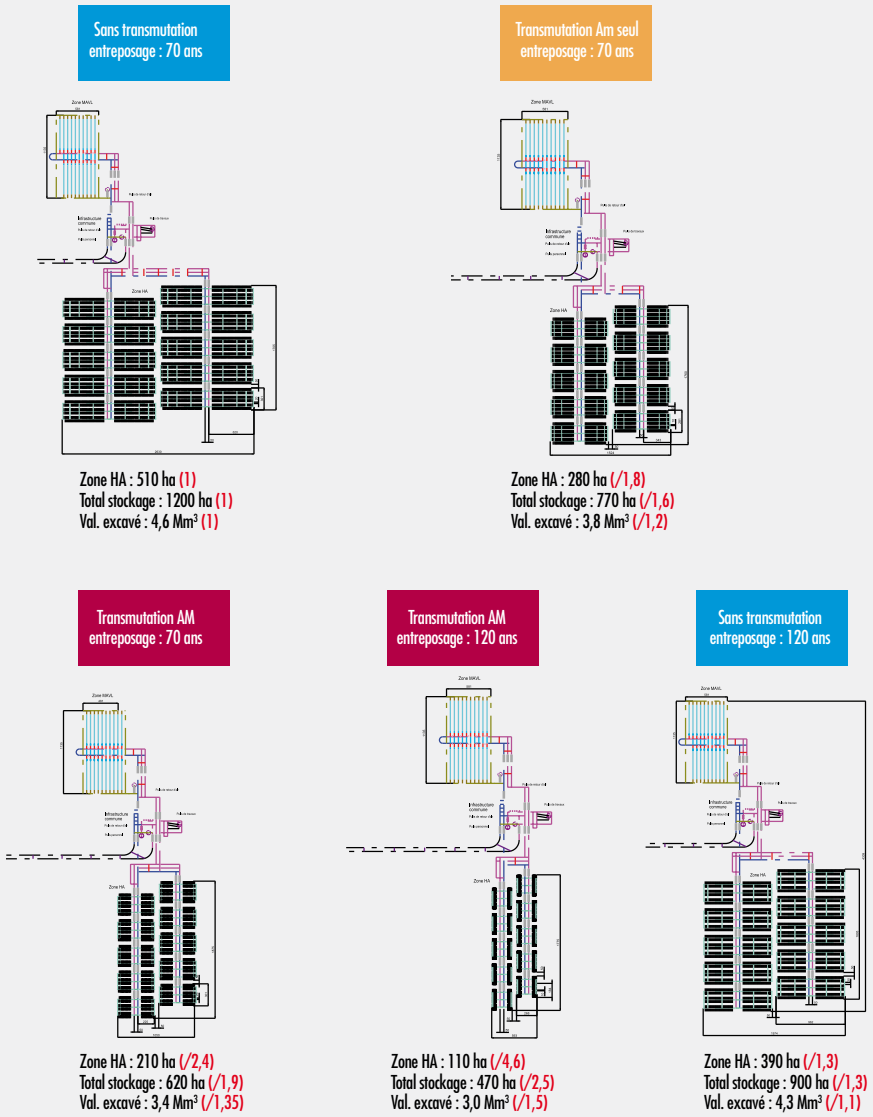
Comme illustré à la Figure 41, la transmutation de l'américium conduit à une décroissance thermique plus rapide des déchets HA et amène un gain notable sur l'emprise souterraine et le volume excavé des modules de stockage de ces déchets. Cependant, le gain est plus limité à l'échelle de la zone de stockage des déchets HA et encore plus à celle de l'ensemble du centre du stockage ; cela résulte du fractionnement du stockage en modules, des besoins en infrastructures d'accès et du volume des déchets MA-VL.

En comparaison du recyclage du Pu seul, la transmutation des actinides mineurs offre sur la totalité de la durée des scénarios (2040-2150) :

– une réduction d'un facteur 2 (Am seul) à 2,5 (tous les AM) de l'emprise de la zone de stockage des verres HA entreposés 70 ans,
– une réduction de 30 % (Am seul) à 40 % (tous les AM) du volume total excavé,
– une réduction d'un facteur 4,6 de l'emprise de la zone HA si la transmutation des actinides mineurs s'accompagne d'un allongement à 120 ans de la durée d'entreposage des colis (réduction de 50 % du volume total excavé).

À noter qu'en l'absence de transmutation, le seul allongement de la durée d'entreposage des colis ne diminue que d'environ

FIGURE 41 : COMPARAISON DES ARCHITECTURES SOUTERRAINES DU STOCKAGE POUR DIFFÉRENTS SCÉNARIOS DE L'ÉTUDE 2010 (STOCKAGE À L'ÉQUILIBRE - 50 ANNÉES DE PRODUCTION)



30% l'emprise de la zone HA. La présence d'américium 241 dans les colis, dont la longue période ralentit la décroissance du dégagement thermique, limite la densification du stockage.

La transmutation des actinides mineurs permet également de réduire la durée de la phase thermique, de 2 300 ans à moins de 200 ans (la phase thermique correspond à la période où le colis de verre est à une température supérieure à 50°C, pendant laquelle toute arrivée d'eau au niveau du verre doit être interdite).

Au vu de cette première étude, la réduction d'emprise souterraine permise par la transmutation des actinides mineurs ou par celle de l'américium seul, apparaissait réelle mais limitée et des améliorations semblaient encore accessibles. On a pensé qu'il serait intéressant d'examiner d'autres options de conception du stockage qui permettraient d'obtenir des résultats plus probants et une étude complémentaire a été confiée à l'Andra en 2012 pour examiner en particulier les axes suivants :

– la recherche d'options de conception permettant une densification supplémentaire des quartiers de stockage HA ;
– la recherche des conditions de densification du stockage des déchets MA-VL ;
– une analyse des bénéfices et détriments de la transmutation vis-à-vis des performances à long terme du stockage et de sa sûreté.

A la lumière des résultats de la première étude, les hypothèses ont été limitées aux cas suivants :

– une durée d'entreposage de décroissance des déchets HA de 120 ans avant mise en stockage ;

– un centre de stockage unique pour l'ensemble des déchets produits sur la durée totale des scénarios.

Pour favoriser la compacité de la zone de stockage HA, la longueur des alvéoles a été portée de 40 à 80 mètres ce qui diminue l'importance relative des parties non-utiles (tête d'alvéole, galerie). D'autre part, les études menées par l'Andra depuis 2009 ont permis d'optimiser l'agencement des modules de stockage.

Concernant les déchets MA-VL, différentes pistes visant à réduire l'emprise souterraine de la zone des déchets MA-VL ont été recherchées. Elles n'ont pas permis de dégager un gain d'emprise significatif. Au contraire même, en s'alignant sur les règles de limitation de masse des colis retenues dans le projet Cigéo, l'étude 2012 aboutit à une zone MA-VL environ 20 % plus étendue qu'elle ne l'était précédemment.

L'architecture générale du stockage, en particulier le positionnement relatif des zones de stockage et des liaisons, a été optimisée pour utiliser au mieux l'espace disponible. Les architectures présentées à la Figure 42 mettent en exergue les gains d'emprise possibles suivant les différentes options de transmutation. Ainsi, pour une durée d'entreposage préalable des déchets HA de 120 ans, la transmutation réduirait l'emprise d'ensemble des quartiers HA (dite zone HA) de 1 200 hectares à 160 hectares (pour la transmutation de l'américium seul) ou à 120 hectares (pour la transmutation de tous les actinides mineurs). L'emprise totale du stockage, tous déchets confondus, pourrait diminuer d'un facteur supérieur à 3 et le volume de roche excavé baisserait d'un facteur 2 environ.

Cette densification pouvant avoir des conséquences sur le fonctionnement du stockage, une analyse succincte a été menée pour comparer les trois architectures présentées sur la

FIGURE 42 : COMPARAISON DES ARCHITECTURES SOUTERRAINES DU STOCKAGE POUR DIFFÉRENTS SCÉNARIOS DE L'ÉTUDE 2012 (STOCKAGE UNIQUE POUR L'ENSEMBLE DES DÉCHETS PRODUITS SUR LA DURÉE DES SCÉNARIOS - 110 ANNÉES DE PRODUCTION)

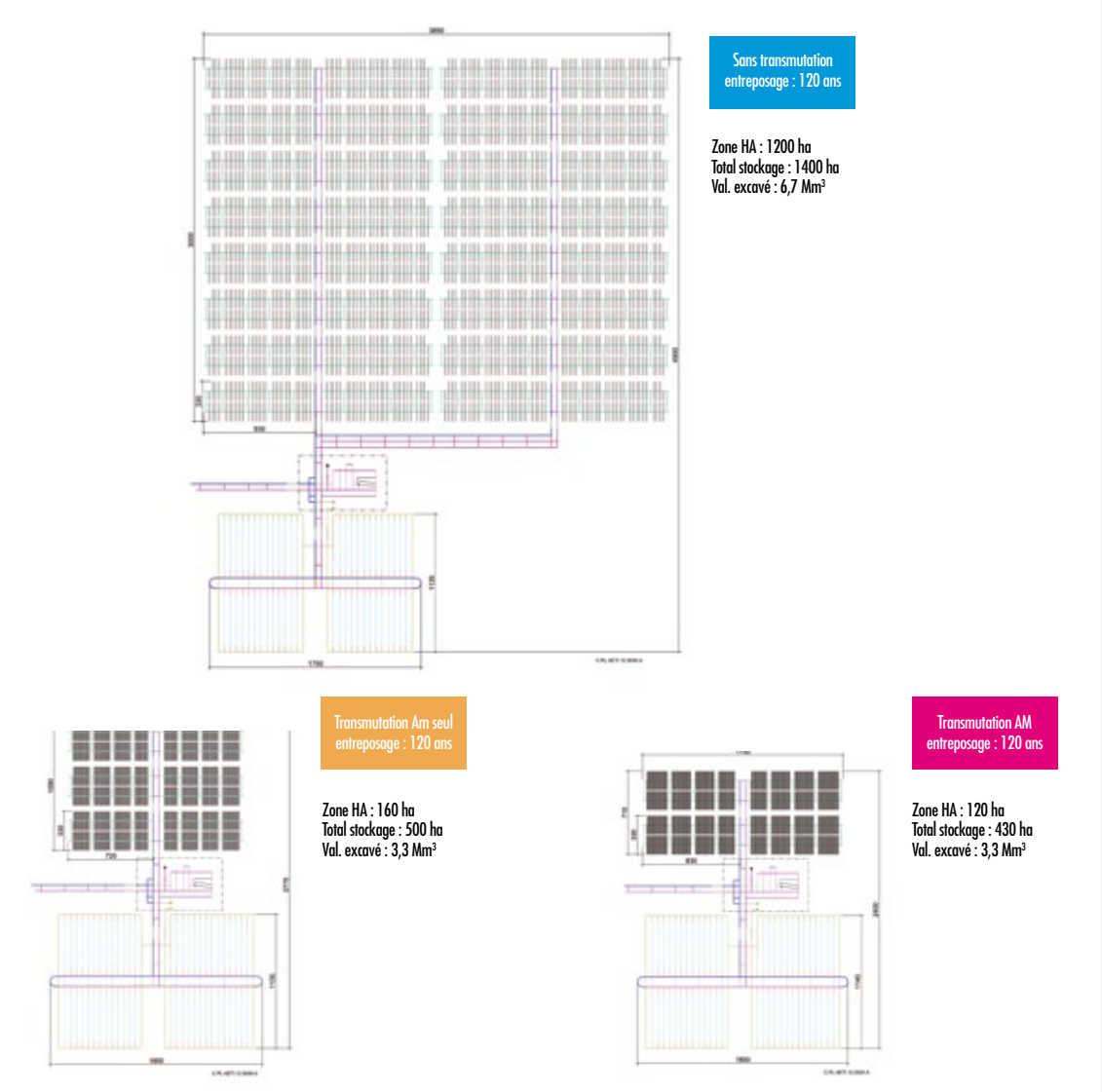


FIGURE 43 : CAPACITÉS DE TRAITEMENT POUR LE SCÉNARIO DE DÉPLOIEMENT DE RNR EN 2040 À PUISSANCE INSTALLÉE CONSTANTE

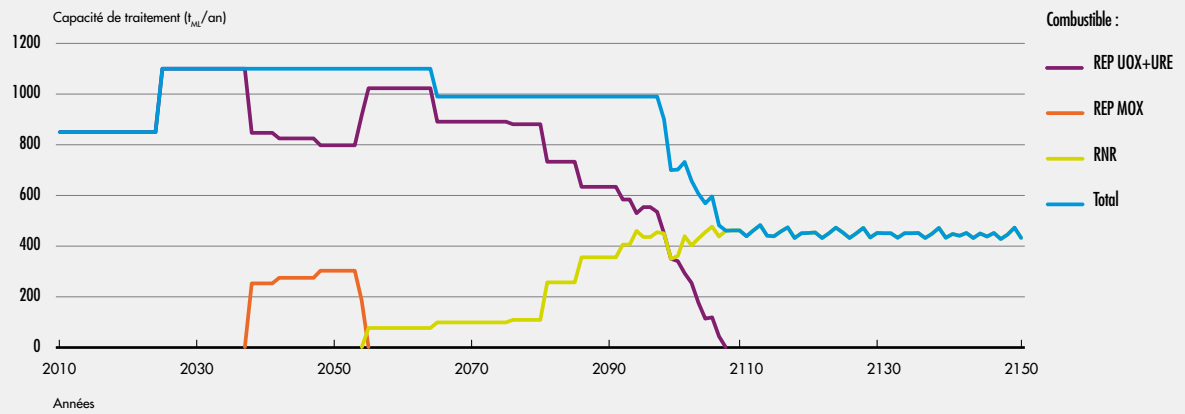


figure 42. Sur le plan thermique, la densification du stockage aurait pour effet d'augmenter d'un facteur 2 environ la densité d'énergie fournie au milieu géologique, ce qui conduirait à accroître l'échauffement de celui-ci au droit des quartiers de stockage HA ; les conséquences thermohydromécaniques (endommagement des argilites) seraient à examiner.

Concernant la production d'hydrogène par corrosion anoxique de l'acier constitutif des conteneurs de stockage et des chemisages d'alvéoles des déchets HA, la densification va entraîner une diminution du volume d'expansion offert par les galeries. On peut donc s'attendre à une modification du comportement du gaz (durée du pic de pression, migration du gaz…) dont les conséquences sont difficilement appréciables sans analyse plus approfondie.

Enfin, la densification va augmenter les concentrations des radionucléides dans le stockage et en champ proche. Dans les scénarios d'évolution normale, cette différence va disparaître en champ lointain du fait de la diffusion dans la formation argileuse et de la dilution dans les aquifères. Par contre, dans le scénario d'évolution altérée du « forage exploratoire[25] », la densification pourrait conduire à multiplier par 10 la fraction radiologique captée par le forage mais, même dans ces conditions, les doses resteraient largement inférieures à la limite de 0,25 mSv/an.

Ces différents éléments incitent à adopter une attitude prudente vis-à-vis d'une densification poussée du stockage HA et à ne pas considérer comme totalement acquise la possibilité de réduire d'un facteur 3 l'emprise souterraine d'un stockage en mettant en œuvre la transmutation des actinides mineurs ou du simple américium. Néanmoins, on peut aujourd'hui considérer que ce facteur 3 constitue la limite maximale raisonnable de ce que permettrait la transmutation.

En conclusion, pour les concepts aujourd'hui étudiés, la transmutation permet d'envisager une diminution d'un facteur 10 de l'emprise souterraine de la zone de stockage des déchets HA. Sur l'ensemble du stockage géologique, la réduction d'emprise pourrait atteindre un facteur 3 (dans les concepts actuels de stockage, compte tenu notamment de la zone MA-VL qui reste inchangée). Autrement dit, dans ce cas, pour une ressource de stockage donnée, la transmutation permettrait de prendre en charge les déchets d'une production électronucléaire 3 fois plus importante.

5.2.3. IMPACT SUR LES INSTALLATIONS DU CYCLE

Pour tous les scénarios supposant un début de déploiement des RNR en 2040, les capacités au traitement sont similaires et comportent les principales phases suivantes (Figure 43) :

– débutant peu avant 2040, l'intégralité du combustible REP-MOX est traitée en une quinzaine d'années en complément de combustibles REP-UOX pour produire le plutonium nécessaire au déploiement de la première vague de RNR. La capacité totale de traitement est de 1 100 t_{ML}/an (soit environ 2 200 assemblages REP par an) ;

– après 2110, seul le combustible RNR est traité. La capacité de traitement est de 450 t_{ML}/an (soit environ 2 800 assemblages RNR par an) ;

– la période intermédiaire est caractérisée par le traitement conjoint de combustibles REP-UOX et RNR. La capacité de traitement s'établit à 1 000-1 100 t_{ML} pour tendre vers 450 t_{ML}/an à la fin du traitement des combustibles REP.

Les flux de combustibles usés traités ont été lissés afin d'obtenir des capacités totales relativement constantes pendant des périodes de l'ordre de 40 ans, correspondant à des générations successives d'usines. De manière générale, il est important de préciser que les études engagées sur un tel horizon temporel ne peuvent intégrer de démarche d'optimisation (comme le temps de refroidissement des combustibles à traiter par exemple) et gardent avant tout un caractère illustratif.

Le nombre et la nature des assemblages porteurs d'actinides mineurs dépendent du mode de transmutation considéré. En mode homogène, les actinides mineurs sont dilués dans les assemblages du cœur de réacteurs à neutrons rapides (RNR)

25 – American Silver Eagles packaging.

TABLEAU 10 : PUISSANCE THERMIQUE ET ÉMISSION NEUTRONIQUE DES POUDRES À LA FABRICATION (À L'ÉQUILIBRE)

SCÉNARIOS	Pas de transmut.	Transmutation de tous les AM			Transmutation Am seul		
		homogène	hétérogène	ADS	homogène	hétérogène	
COMBUSTIBLE	RNR-cœur	RNR-cœur	CCAM 20 %	ADS-cœur	RNR-cœur	CPAm 2 %	CCAm 10 %
PUISSANCE THERMIQUE W/kg_{ML} (VAL. RELATIVE)	1,5 (1)	9 (5)	**56 (38)**	**160 (140)**	4 (2)	4,5 (2,5)	7 (6)
ÉMISSION NEUTRONIQUE (VAL. RELATIVE)	(1)	**(130)**	**(1700)**	**(3600)**	(1,5)	(1,9)	(3,5)

à hauteur de quelques pourcents massiques. La totalité du parc français est alors impliquée par la transmutation des actinides mineurs, ce qui représente plusieurs centaines de tonnes de combustibles (450 t_{ML}) par an. En mode hétérogène ou lorsqu'une strate de réacteurs sous-critiques (ADS) dédiée à la transmutation des actinides mineurs est déployée, les actinides mineurs sont concentrés dans un nombre réduit d'objets : couvertures situées en périphérie du cœur des RNR ou assemblages de cœur de réacteurs ADS. Dans ce cas, seulement quelques dizaines de tonnes sont concernées annuellement par la transmutation des actinides mineurs du parc : 30 à 70 t_{ML} de couvertures (250 à 600 assemblages/an) ou 25 t_{ML} de combustibles ADS (700 assemblages/an).

5.2.3.1. IMPACT SUR LA FABRICATION

Des procédés de métallurgie des poudres comparables à ceux employés sur l'usine de MELOX peuvent être envisagés pour la fabrication des combustibles. Ces procédés comportent des étapes successives de préparation de poudres, d'élaboration des pastilles par pressage et frittage, de constitution des aiguilles et de montage des assemblages. Néanmoins, la présence d'actinides mineurs nécessite des dispositifs renforcés de radioprotection (émission neutronique et rayonnement gamma). Par ailleurs, le dégagement de chaleur des matières radioactives implique de prendre des dispositions particulières pour maîtriser les températures lors de la fabrication des assemblages chargés en actinides mineurs. En revanche, la maîtrise du risque de criticité, assurée par les modes de contrôle habituels, ne pose pas de difficultés, l'américium et les mélanges d'actinides mineurs étant moins pénalisants que le plutonium. A noter que le combustible ADS qui se différencie par d'importantes teneurs en actinides et l'utilisation d'une matrice inerte en magnésie, est supposé être fabriqué selon un procédé identique à celui mis en œuvre dans les autres scénarios.

Le Tableau 10 compare puissance thermique et émission neutronique des poudres d'oxyde utilisées pour la fabrication des combustibles. Ces valeurs sont normalisées par rapport à celles du combustible RNR sans actinides mineurs, qui est lui-même peu différent du combustible pris en compte pour le dimensionnement des usines actuelles.

Le dégagement thermique des poudres d'actinides peut constituer un élément très contraignant car il conditionne l'ordre de grandeur des charges pouvant être manipulées : de plusieurs dizaines de kg dans l'existant industriel, la masse manipulable pourrait diminuer jusqu'à quelques kg (cas des CCAM) voire même quelques centaines de grammes (cas des combustibles ADS). On conçoit que dans ces conditions, le nombre d'équipements deviendrait très important pour répondre aux besoins de fabrication, tout comme le nombre de contrôles qui seraient associés.

On voit clairement que les scénarios avec transmutation de tous les actinides mineurs sont très handicapés par la présence du curium et notamment de son isotope ^{244}Cm. La fabrication des combustibles nécessitera à coup sûr de procéder en enceinte blindée avec des dispositifs téléopérés. Les scénarios ne transmutant que l'américium sont beaucoup moins contraignants pour les opérations de fabrication mais appelleront quand même des modifications notables du procédé et du blindage des installations.

5.2.3.2. IMPACT SUR LE TRAITEMENT

Le traitement des assemblages chargés en actinides mineurs est réalisé dans des installations conçues pour accepter les divers types de combustibles usés à recycler (UOX, MOX, RNR). Les opérations de traitement sont supposées être basées sur des procédés hydrométallurgiques comme c'est le cas dans les usines de La Hague, y compris pour les combustibles ADS. Mais pour ces derniers, la faisabilité de ces procédés n'est pas acquise et la pyrométallurgie reste une alternative. L'installation de traitement se décompose en ateliers dont les principaux sont destinés à dissocier la matière nucléaire des structures métalliques et à la mettre en solution, à séparer via des cycles d'extraction par solvants les éléments voulus, à convertir les éléments séparés en oxyde et à conditionner les déchets de structure et les produits de fission.

TABLEAU 11 : PUISSANCE THERMIQUE DES ASSEMBLAGES NEUFS ET USÉS (À L'ÉQUILIBRE VERS 2130)

SCÉNARIOS	Pas de transmut.	Transmutation de tous les AM			Transmutation Am seul	
		Homogène	Hétérogène	ADS	Homogène	Hétérogène
COMBUSTIBLE	RNR-cœur	RNR-cœur	CCAM 20 %	ADS-cœur	RNR-cœur	CCAm 10 %
ASSEMBLAGE NEUF (KW/ASS.)	0,3	1,6	**9,1**	**8,3**	0,7	1,4
ASSEMBLAGE USÉ (5 ANS) (KW/ASS.)	1,0	1,9	**11**	**7**	1,5	**5**

TABLEAU 12 : ÉMISSIONS NEUTRONIQUES MAXIMALES DES ASSEMBLAGES NEUFS ET USÉS

SCÉNARIOS	Pas de transmut.	Transmutation de tous les AM			Transmutation Am seul	
		Homogène	Hétérogène	ADS	Homogène	Hétérogène
COMBUSTIBLE	RNR-cœur	RNR-cœur	CCAM 20 %	ADS-cœur	RNR-cœur	CCAm 20 %
ASSEMBLAGE NEUF (NEUTRONS/S/ASS.)	$3,6\ 10^{7}$	$2,8\ 10^{9}$	**$3,2\ 10^{10}$**	**$1,6\ 10^{10}$**	$4,7\ 10^{7}$	$1,6\ 10^{8}$
ASSEMBLAGE USÉ (NEUTRONS/S/ASS.)	$0,8\ 10^{9}$	$2,3\ 10^{9}$	**$2,7\ 10^{10}$**	**$1,5\ 10^{10}$**	$3,4\ 10^{9}$	**$1,4\ 10^{10}$**

Les scénarios avec transmutation d'actinides mineurs impliquent évidemment la mise en œuvre d'un procédé de séparation des éléments concernés. Selon les scénarios, il pourra s'agir d'un procédé de séparation séquentielle (DIAMEX-SANEX) dans lequel les actinides sont récupérés de manière séparée, d'un procédé de séparation groupée (GANEX), extrayant ensemble le plutonium et les actinides mineurs, ou d'un procédé de séparation spécifique (EXam) permettant de récupérer sélectivement l'américium. Tous ces procédés sont encore au stade du développement : leur faisabilité a été démontrée à l'échelle du laboratoire mais leur mise en œuvre industrielle nécessitera encore un long processus de R&D.

Le recyclage du plutonium nécessitant déjà d'utiliser des équipements en géométrie sûre, la maîtrise du risque d'accidents de criticité lors du traitement des assemblages avec actinides mineurs ne devrait pas induire de difficultés particulières. Un renforcement des systèmes de refroidissement et des protections biologiques est à prévoir notamment à l'étape de conversion des actinides mineurs.

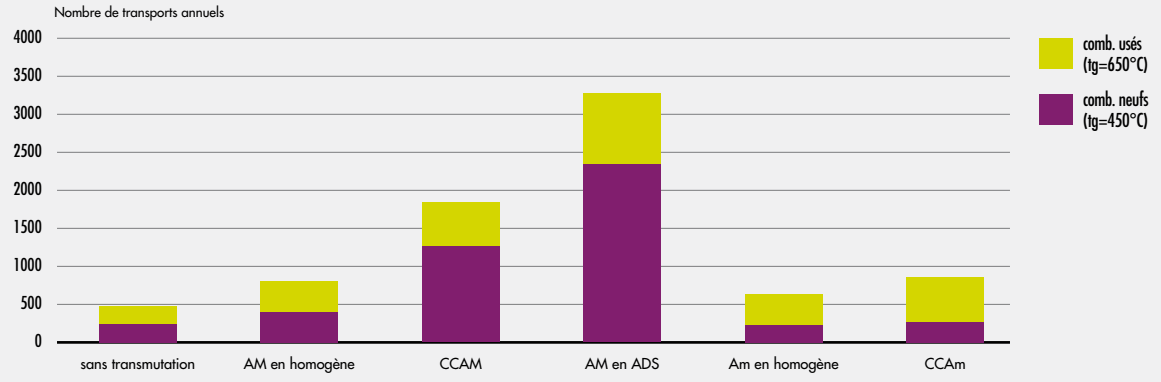
5.2.3.3. IMPACT SUR LES TRANSPORTS

Les combustibles avec actinides mineurs possèdent des caractéristiques émissives, qu'elles soient thermiques (Tableau 11) ou neutroniques (Tableau 12), qui peuvent être nettement plus importantes que celles des combustibles RNR standard et a fortiori que celles des combustibles REP (UOX et MOX) actuellement manipulés. Sans surprise, les assemblages les plus pénalisants sont ceux qui contiennent de fortes concentrations de curium (CCAM et combustibles d'ADS), qu'ils soient neufs ou usés. On notera qu'il en est de même pour les CCAm usées : ceci traduit le fait que la transmutation de l'américium génère des quantités importantes de curium.

Aussi, la problématique du transport de ces combustibles a constitué un sujet d'étude à part entière. Pour chaque combustible, un type d'emballage a été proposé sur la base de concepts actuels en tenant compte des contraintes thermiques et de radioprotection. Ce travail a permis d'estimer le nombre de transports annuels nécessaires à chacun des scénarios et de le comparer à celui d'un scénario sans transmutation (Figure 44).

Le transport d'objets contenant de grandes quantités d'actinides mineurs, de curium en particulier, (CCAM et combustibles ADS), représente un réel point dur. Avec les hypothèses retenues à ce stade, il n'est pas possible de transporter des assemblages entiers ce qui conduit à augmenter fortement le nombre de transports et à devoir procéder aux opérations de montage et de démontage des assemblages sur le site des réacteurs. Une telle gestion serait évidemment très pénalisante, techniquement et économiquement.

FIGURE 44 : NOMBRE DE TRANSPORTS ANNUELS REQUIS POUR LES DIFFÉRENTS SCÉNARIOS
(température de gaine limitée à 450 °C pour les assemblages neufs et 650°C pour les assemblages usés)



5.2.3.4. IMPACT SUR LE RÉACTEUR

L'impact de la transmutation des actinides sur la conception et l'exploitation des RNR a été présenté au chapitre 4.2. On abordera ici deux aspects particuliers que sont la manutention des assemblages usés et les conséquences sur la disponibilité du réacteur.

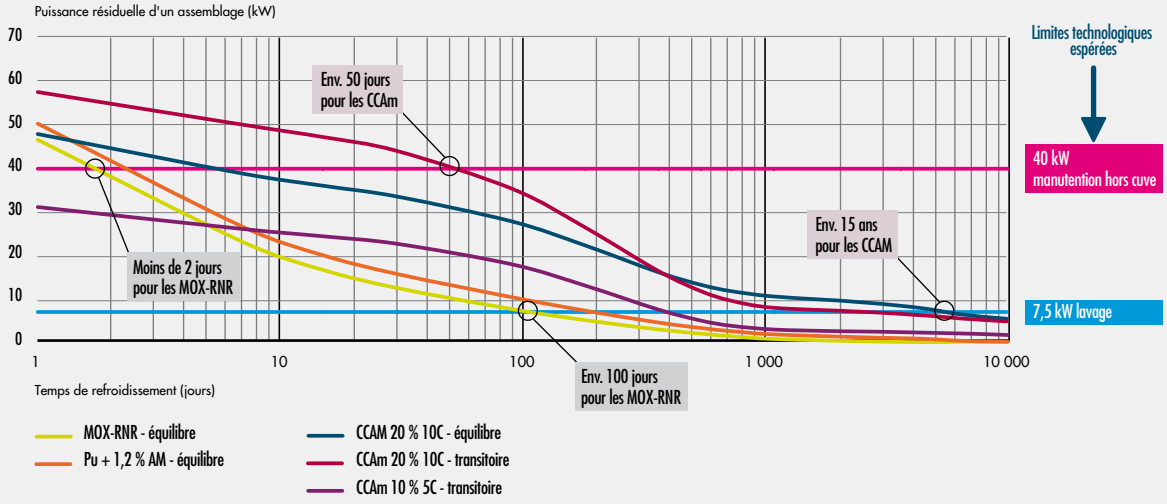
On rappelle que la manutention des assemblages usés est largement conditionnée par leur puissance résiduelle. Il existe aujourd'hui deux limites :

- pour le déchargement des assemblages hors de la cuve réacteur, les puissances maximales admissibles sont de 20 kW si l'opération se fait sous sodium. Des recherches portent sur les possibilités de porter cette dernière valeur à 40 kW ;
- pour le stockage sous eau des assemblages, il est nécessaire de les laver préalablement pour supprimer toute trace de sodium. La puissance maximale admissible pour le lavage est aujourd'hui de 2,5 kW. Des recherches ont pour objectif d'atteindre 7,5 kW.

L'utilisation de fortes teneurs d'actinides mineurs dans les couvertures ou dans les combustibles ADS va profondément modifier l'évolution dans le temps de la puissance résiduelle des assemblages irradiés. Contrairement à un combustible RNR standard ou à un combustible de transmutation homogène pour lesquels la puissance résiduelle décroît significativement en l'espace de quelques jours à quelques dizaines de jours, on observe une évolution beaucoup plus lente de cette puissance due pour l'essentiel à des produits de transmutation de l'américium [26].

26 – Cet effet est dû à une formation importante de ^{242}Cm (isotope d'une période radioactive de 163 jours essentiellement produit par capture neutronique sur l'^{241}Am).

FIGURE 45 : PUISSANCE RÉSIDUELLE DES ASSEMBLAGES IRRADIÉS



On voit clairement sur la Figure 45 l'impact de la mise en œuvre des couvertures chargées. Même en envisageant l'utilisation d'un transfert sous sodium, le déchargement des CCAm hors de la cuve réacteur ne pourrait avoir lieu avant une cinquantaine de jours. Un stockage interne à la cuve en périphérie du cœur apparaît donc comme une obligation.

Dans la même veine, il ne serait pas envisageable de laver les assemblages CCAM ou CCAm avant respectivement 15 et 7 années environ. Cela impose un stockage intermédiaire (hors cuve réacteur) sous sodium qui devra être dimensionné en conséquence. Il s'en suivra une augmentation du temps de refroidissement avant traitement de ces assemblages ce qui accroîtra significativement la quantité d'actinides mineurs en cycle par rapport aux courbes présentées au § 5.2.1, qui supposent un temps de refroidissement de 5 ans pour tous les combustibles.

Le dégagement de chaleur des couvertures chargées irradiées engendre donc de fortes contraintes pour leur manutention. C'est pourquoi plusieurs pistes d'optimisation ont été explorées pour contourner cette difficulté. Une des voies les plus intéressantes consiste à baisser la durée d'irradiation des couvertures de moitié (5 cycles au lieu de 10) avec pour résultat de réduire d'autant la puissance résiduelle[27]. Ainsi la puissance résiduelle des couvertures reste toujours inférieure à la limite des 40 kW donnant la possibilité de décharger sans délai ces assemblages hors de la cuve réacteur. De plus, le temps nécessaire pour atteindre la limite de 7,5 kW est abaissé à environ 400 jours ce qui diminue fortement le besoin d'un stockage intermédiaire de grande capacité.

Impact sur la disponibilité du réacteur

On peut penser que la manutention d'assemblages à forte teneur d'actinides mineurs aura un impact négatif sur la disponibilité du réacteur. Le seul élément qui soit aujourd'hui quantifiable est la perte d'exploitation liée au temps supplémentaire nécessaire à la gestion des assemblages de transmutation ou aux délais de refroidissements requis pour décharger les assemblages les plus chauds : elle se chiffre entre 0,3 et 2 % selon les concepts de transmutation.

et de ^{244}Cm (isotope d'une période radioactive de 6 600 jours résultant d'une capture neutronique sur l'^{243}Am).

27 – Il existe bien sûr des contreparties à cette diminution de la puissance résiduelle. La baisse de la durée d'irradiation entraîne un doublement de la fréquence de chargement des CCAm se traduisant par un doublement des besoins de fabrication, d'entreposage, ainsi qu'une augmentation de l'odre de 50 % de l'inventaire en cycle.

5.2.4. IMPACT SUR L'ÉCONOMIE

Chaque scénario définit un planning de déploiement des réacteurs producteurs d'électricité et des installations du cycle ainsi que le flux annuel de matières et déchets, permettant de réaliser des remontages économiques grâce à la méthode classique d'actualisation. Les remontages ont été effectués sur les scénarios sans transmutation (F4), avec transmutation en mode homogène (F2), en couvertures (F1) ou en ADS (F7).

Compte tenu des débats entourant actuellement l'économie de la filière nucléaire en France et dans le monde, on a choisi de ne pas donner de coûts de production en valeur absolue mais de se restreindre à des comparaisons de valeurs relatives. Celles-ci sont suffisantes pour l'exercice mené ici qui se limite à une inter-comparaison simple entre les scénarios.
La méthode d'actualisation permet de comparer des scénarios s'étalant sur des périodes de temps qui peuvent être importantes, en ramenant à une valeur présente les dépenses et recettes, passées ou futures. Un calcul actualisé à la date de mise en service d'un réacteur amplifie les dépenses réalisées en amont de la production (construction du réacteur, fabrication du combustible…) mais diminue le poids des dépenses effectuées après la production (aval du cycle du combustible, gestion des déchets…). Ceci correspond à une réalité économique. En amont, il faut d'abord investir et cela suppose de disposer d'actifs qui seront bloqués pendant un certain temps avant de porter leurs fruits. En aval, les dépenses se font après les recettes de la production et les actifs disponibles peuvent rapporter avant d'être utilisés.

Le choix d'un taux d'actualisation a été l'objet de discussions au sein du groupe chargé de cette étude. Il a finalement été convenu de retenir deux jeux d'hypothèses contrastés, permettant d'évaluer la sensibilité des résultats au choix de ce taux :

- dans un premier cas, représentatif d'une logique économique du « domaine privé », l'actualisation est faite avec un taux de

FIGURE 46 : DÉCOMPOSITION DU COÛT DE PRODUCTION RNR APRÈS 2120 SELON LE TAUX D'ACTUALISATION

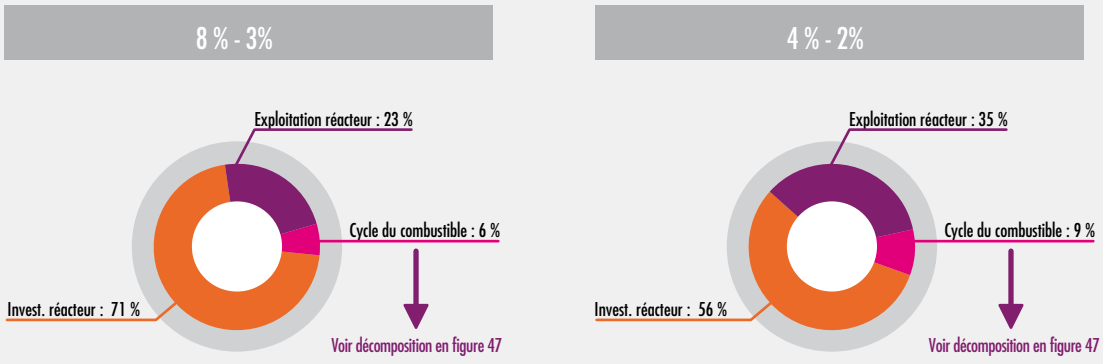
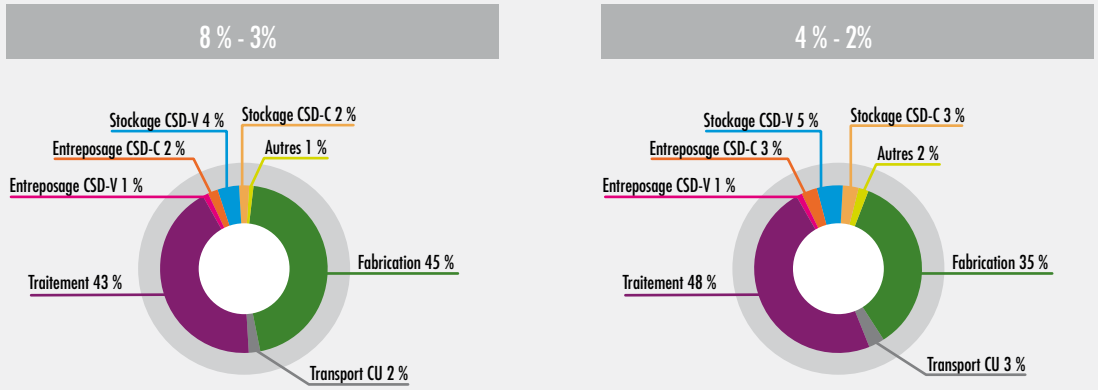


FIGURE 47 : DÉCOMPOSITION DE LA PART « CYCLE DU COMBUSTIBLE » DU COÛT DE PRODUCTION RNR APRÈS 2120 SELON LE TAUX D'ACTUALISATION



8 % sur les 30 premières années puis 3 % ensuite. Ceci est cohérent avec l'étude de la DGEC des coûts de référence de la production d'électricité.

- le second cas correspond à une logique économique « publique » ou « d'intérêt général », c'est-à-dire avec intervention de l'État qui entraînerait une diminution du risque engagé. Il suit les recommandations du Centre d'Analyse Stratégique (ex-Commissariat général du Plan). L'actualisation est faite avec un taux de 4 % sur 30 ans, puis celui-ci décroît à 2 %.

Les figures 46 et 47 ci-après illustrent sur un exemple de calcul, l'effet notable du taux d'actualisation sur la décomposition du coût de production.

On retiendra cependant plusieurs tendances communes aux deux hypothèses examinées :

- la part largement prépondérante du coût réacteur (investissement et exploitation) qui représente 91 à 94 % du coût de production ;
- par voie de conséquence, la faible contribution du coût du cycle du combustible (6 à 9 %) avec deux postes prédominants : fabrication et traitement des combustibles ;
- une très faible contribution du coût de stockage des déchets qui ne représente que 0,4 à 0,7 % du coût de production actualisé.

Dans une première approche (dénommée approche A), les calculs économiques ont été effectués au moyen d'une base de données de coûts unitaires pour les réacteurs et les opérations de cycle. Dans cette base, les coûts de service sont évalués par analogie avec les installations existantes en supposant une certaine optimisation économique. Une seconde approche (dite approche B) ne prend pas en compte certaines optimisations économiques de l'approche A au motif qu'elles pourraient ne pas aboutir à des solutions industrialisables, par exemple suite à une évolution de la réglementation. Elle retient par ailleurs des hypothèses beaucoup plus prudentes sur certains paramètres importants et mal cernés, tels que le coefficient de disponibilité des systèmes (Kd).

5.2.4.1. APPROCHE A

Le Tableau 13 représente les coûts moyens de production des différents scénarios calculés selon l'approche A. L'indice 100 a été affecté au coût moyen de production 2120-2150 (représentatif d'un parc à l'équilibre) du scénario F4 (sans trans-

TABLEAU 13 : COÛTS MOYENS DE PRODUCTION NORMALISÉS

SCÉNARIOS	Actualisation 8 % – 3 %			Actualisation 4 % – 2 %		
	Total	Réacteur	Cycle	Total	Réacteur	Cycle
SANS	**100**	94	6	**100**	91	9
HÉTÉROGÈNE (TOUS LES AM)	106	96	10	107	92	14
HÉTÉROGÈNE (Am SEUL)	104	95	9	105	92	13
HOMOGÈNE (TOUS LES AM)	108	95	12	109	92	17
HOMOGÈNE (Am SEUL)	105	95	10	106	92	13
EN ADS (TOUS LES AM)	126	116	10	124	110	14

mutation). La base 100 est bien entendue différente pour les deux taux d'actualisation.

Avec les hypothèses qui ont été retenues et sous réserve de leur validité, cette première approche indique que :

- le surcoût lié à la transmutation en RNR serait globalement de l'ordre de 4 à 9 % ; pour le cycle seul, les surcoûts pourraient atteindre 50-60 % ; en revanche, le surcoût sur le poste réacteur ne dépasserait pas 2 % ;
- les options de transmutation en mode homogène ou hétérogène ne se distingueraient guère du point de vue économique;
- seule la transmutation dans les ADS engendrerait un surcoût significatif de l'ordre de 25 % ; ce point n'est pas une surprise dans la mesure où ces installations sont onéreuses et qu'elles s'inscrivent en supplément du parc électrogène existant par ailleurs.

On constate également que le poids relatif des scénarios est très peu affecté par le choix du taux d'actualisation dû au fait que les chronologies de dépenses sont assez semblables dans les différents scénarios. Pour la suite de cette étude, on se limitera donc à la présentation des résultats au seul taux de 8 %-3 %.

Il est apparu important de compléter cette première approche par une analyse de sensibilité pour évaluer les paramètres les plus importants, et évaluer les conséquences des incertitudes sur certains postes (concernant le cycle notamment).

5.2.4.2. ÉTUDE DE SENSIBILITÉ

Sensibilité aux différents postes de coûts unitaires

La sensibilité du coût moyen aux différents postes figurant dans la base de données a été évaluée. A titre d'exemple, le Tableau 14 indique les coefficients de sensibilité pour le taux d'actualisation 8 %-3 % (ne figurent que les postes dont les coefficients de sensibilité sont supérieurs à 1 %).

Les postes les plus importants sont les coûts d'investissement et d'exploitation des RNR, et ensuite mais avec un ordre de grandeur inférieur, les coûts de traitement et de fabrication du combustible. Les conclusions sont les mêmes pour le taux d'actualisation 4 %-2 %.

Dans tous les cas, la sensibilité aux coûts de stockage est très faible. Ainsi, le coût du stockage souterrain et a fortiori les économies relatives qui pourraient être apportées par les différents modes de transmutation n'ont pas d'impact sur l'évaluation du coût moyen de production d'un scénario. L'importance du coût du stockage serait davantage à appréhender au regard d'autres critères économiques que la seule contribution au coût du kWh (tel que son coût global, qui impacte directement le montant des provisions à constituer).

Sensibilité au Kd du réacteur

Le coefficient de disponibilité (Kd) d'un RNR et la manière dont il peut être affecté par les différents modes de transmutation font partie des grandeurs aujourd'hui encore entachées d'incertitudes. En raison de la forte sensibilité au Kd du coût moyen de production (Tableau 15), ce paramètre demeure l'une des principales sources d'incertitude de cette évaluation économique.

Scénarios de transmutation

A noter que le cas ADS est un peu à part dans la mesure où dans ce scénario, le parc n'est pas constitué que de RNR mais qu'il comporte aussi des ADS dont le Kd est supposé constant. C'est pourquoi le coefficient de sensibilité ainsi calculé se compare difficilement avec celui obtenu pour les autres scénarios.

5.2.4.3. APPROCHE B

Pour certains scénarios, les calculs économiques ont été repris avec des valeurs plus pénalisantes, notamment sur les postes que l'étude de sensibilité a identifiés comme importants. Le choix de valeurs différentes (cf. Tableau 16) de celles retenues dans l'approche A relève de trois types de raisons :

– des divergences techniques conduisant à des évaluations différentes des coûts ;

TABLEAU 14 : COEFFICIENTS DE SENSIBILITÉ DU COÛT MOYEN DE PRODUCTION (TAUX D'ACTUALISATION 8 %-3 %)

		Scénarios de transmutation					
POSTE	Variation	sans	Hétérog. AM	Hétérog. Am seul	Homog. AM	Homog. Am seul	ADS AM
INVESTISSEMENT RNR	100 %	71 %	69 %	70 %	67 %	69 %	54 %
EXPLOITATION RNR	100 %	22 %	22 %	22 %	21 %	22 %	17 %
INVESTIS. ADS	100 %					17 %	13
EXPLOITATION ADS	100 %					2 %	16
FABRICATION COMB.	100 %	2,9 %	3,1 %	3,0%	7,8%	5,9%	3,0%
FAB. COUV. OU ADS	100 %		2,3 %	1,4 %			0,3 %
TRAITEMENT	100 %	2,7 %	2,9 %	3,1 %	3,1 %	2,7 %	2,2 %

TABLEAU 15 : COEFFICIENTS DE SENSIBILITÉ DU COÛT MOYEN DE PRODUCTION AU Kd DES RNR (TAUX D'ACTUALISATION 8 %-3 %)

	Scénarios de transmutation					
Variation relative du Kd	sans	Hétérog. AM	Hétérog. Am seul	Homog. AM	Homog. Am seul	ADS* AM
-1 %	0,93 %	0,90 %	0,91 %	0,88 %	0,90 %	0,71 %

(* le Kd des ADS est supposé inchangé)

– des philosophies différentes notamment sur les exigences futures en matière de sûreté et de radioprotection. Il est supposé que la progression de la technologie ne pourra faire face à un coût équivalent.

– une plus grande prudence sur certains aspects, à ce stade mal cernés, comme par exemple l'existence d'un futur marché international.

Par exemple, la hausse de l'ordre de 180 % pour la fabrication des combustibles RNR est associée pour partie au fait que l'usine soit dimensionnée au seul besoin national et à un surcoût lié à l'utilisation d'alliages avancés (ODS).

Scénarios de transmutation

Le Tableau 17 présente les surcoûts différentiels entre scénarios pour l'approche B pour le taux d'actualisation 8 %-3 % (des résultats analogues sont obtenus pour l'actualisation 4 %-2 % et n'ont pas été reportés ici.

Dans cette approche, le mode de transmutation homogène apparaît un peu moins pénalisant que le mode hétérogène dans la mesure où il impacterait moins la conception et la disponibilité du réacteur. Les résultats de l'approche B ne modifient pas sur le fond les conclusions qui pouvaient être tirées de l'approche A.

En conclusion, la transmutation des actinides mineurs ne semble entraîner qu'une augmentation limitée du coût moyen de production, y compris en tenant compte des incertitudes sur certains postes de coûts (pour le cycle notamment). Par ailleurs, les évaluations économiques ne permettent pas de différencier nettement les modes de transmutation, hormis celui utilisant les ADS comme brûleurs d'actinides qui conduit à un surcoût significatif.

TABLEAU 16 : VARIATIONS RELATIVES DES COÛTS UNITAIRES APPROCHE B VERSUS APPROCHE A (TAUX D'ACTUALISATION 8 %-3 %)

POSTE	Scénarios de transmutation		
	sans	Hétérogène Am seul	Homogène Am seul
INVESTISSEMENT RNR	+ 15 %	+ 19 %	+ 15 %
EXPLOITATION RNR	+ 9 %	+ 9 %	+ 9 %
COEFFICIENT DISPONIBILITÉ (Kd)	0 %	-2 %	0 %
FABRICATION COMB. RNR	+ 180 %	+ 180 %	+ 110 %
FABRICATION COUVERTURES		+ 53 %	
TRAITEMENT	+ 53 %	+ 55 %	+ 54 %

TABLEAU 17 : COÛTS MOYENS DE PRODUCTION – ÉVOLUTION ENTRE L'APPROCHE A ET L'APPROCHE B (TAUX D'ACTUALISATION 8 %-3 %)

Scénarios de transmutation		sans	Hétérogène Am seul	Homogène Am seul
APPROCHE A (en relatif)		**100**	**104**	**105**
Evolution A > B	Poste réacteur	+ 13	+ 18	+ 13
	Poste cycle	+ 7	+ 8	+ 8
APPROCHE B (en relatif)		120 **(100)**	131 **(109)**	126 **(105)**

5.2.5. AUTRES CRITÈRES

5.2.5.1. RISQUES INDUSTRIELS

Tous les scénarios présentés dans ce rapport font appel, à des degrés divers, à des procédés ou à des technologies qui ne sont pas mis en œuvre aujourd'hui ou même, dans certains cas, en sont encore à l'état de concepts.

La maturité des procédés et technologies à mettre en œuvre dans les différents scénarios est un paramètre important pour apprécier les risques techniques et économiques liés aux différentes options. Néanmoins, les risques seront plus limités si les options retenues présentent une flexibilité suffisante et si le déploiement des technologies nouvelles se fait progressivement. Par exemple, les procédés qui évoluent dans la continuité par ajout de fonctions offrent moins de risques que les procédés qui nécessitent des installations dédiées, généralement peu adaptables à des options différentes.

Il est clair que ces risques seront d'autant plus importants que les technologies utilisées seront moins matures. C'est évidemment le cas pour le scénario mettant en œuvre la transmutation des actinides mineurs dans les ADS. Bien que des avancées notables aient été faites sur la voie de la démonstration de faisabilité, les ADS sont des objets complexes, dont le développement nécessite la mise au point d'éléments de très haute technicité dont la faisabilité n'est pas encore assurée. Il va de soi que les coûts associés à ce scénario sont entachés d'une incertitude très importante.

L'ensemble des scénarios présentés ici suppose le déploiement de RNR de 4e génération à partir de 2040. La maturité technologique de ces réacteurs à cette date aura bénéficié du retour d'expérience d'une quinzaine d'années du démonstrateur technologique Astrid. Par ailleurs, l'expérience déjà accumulée sur ce type de réacteurs permet de mieux cerner déjà aujourd'hui les incertitudes en ce domaine qui s'exprimeront certainement en termes de coûts, de délais ou de cadence de déploiement.

La maturité technologique des opérations de cycle pour la transmutation des actinides mineurs n'est pas acquise et nécessite encore un long processus de R&D, particulièrement dans les scénarios de transmutation de tous les AM. Comme attendu, la présence des AM au niveau des étapes de fabrication et de traitement induiront des modifications de conception pour traiter les problèmes de radioprotection et de thermique. La transmutation du curium soulève la question des contraintes de dimensionnement qu'il impose sur l'ensemble des installations.

La progressivité et la flexibilité des options seront vraisemblablement des éléments clés pour leur déploiement industriel. Une mise en œuvre progressive de l'américium dans des couvertures offre sensiblement moins de risques industriels que, par exemple, l'extraction groupée du plutonium et des actinides mineurs avec un recyclage homogène dans la totalité des combustibles du parc électronucléaire. Un déploiement progressif des options au fur et à mesure qu'elles deviennent techniquement matures et économiquement acceptables, sera toujours industriellement moins risqué que la mise en œuvre brutale d'options technologiquement en rupture.

5.2.5.2. ASPECTS DOSIMÉTRIQUES

Parmi les questions formulées pour évaluer et comparer les scénarios de transmutation, se pose celle relative à l'influence de la transmutation sur l'exposition radiologique du public et des travailleurs.

Vis-à-vis du public, l'indicateur retenu dans le cadre des études de scénarios, concerne la dose individuelle maximale du groupe critique associée au site de stockage géologique des déchets. Vis-à-vis des travailleurs, en raison de la manipulation, dans les installations du cycle, de quantités importantes d'actinides mineurs imposées par les scénarios de transmutation, il s'agit d'estimer l'impact sur la dosimétrie collective et la dosimétrie individuelle des opérations les plus sensibles.

L'estimation du premier critère s'appuie sur les résultats publiés par l'Andra : le Dossier Argile 2005 a montré que la dose maximale admissible pour le groupe critique était conforme aux recommandations de la RFS III.2.f (0,25 mSv/an). Les seuls contributeurs aux doses radiologiques reçues aux exutoires du stockage sont les produits de fission ou d'activation à vie longue : ^{129}I, ^{36}Cl et ^{79}Se. Pour les actinides, l'Andra a mis en évidence que leur forte rétention chimique dans les argilites du Callovo-Oxfordien les confinait quasi-totalement dans le champ proche et que la quantité sortant de la formation hôte était négligeable.

Le second critère associé à la dosimétrie concerne celle des travailleurs. Les analyses techniques des installations, réalisées dans le cadre des études de scénarios de transmutation des actinides, sont très préliminaires. Elles ne conduisent pas à des estimations d'exposition aux rayonnements ionisants pour chacune des fonctions mises en œuvre dans les usines et dans les réacteurs et a fortiori pour l'ensemble du personnel.

Aussi, la démarche retenue, à ce stade, est qualitative et consiste à comparer le cycle actuel, pour lequel la dosimétrie des travailleurs est connue, au scénario de multirecyclage du plutonium en réacteurs à neutrons rapides dans un premier temps et aux scénarios de transmutation des actinides mineurs dans une seconde étape.

5.2.5.2.1. BILAN DOSIMÉTRIQUE DU CYCLE FRANÇAIS ACTUEL

Un bilan de la dosimétrie collective des travailleurs dans le cycle français actuel a été réalisé pour l'année 2009. Il s'appuie, pour l'essentiel sur des données publiées, par les différents opérateurs industriels, dans les rapports de sûreté nucléaire et de radioprotection rédigés au titre de la loi de transparence et de sécurité en matière nucléaire. Les informations utilisées concernent les salariés de chaque opérateur industriel ainsi que ceux des sociétés prestataires. La dose collective rapportée à l'énergie produite est d'environ 0,13 h.Sv/TWhe.

L'analyse des doses collectives reçues par les travailleurs montre que les contributions principales proviennent très majoritairement de l'exploitation des réacteurs (70 %) et de l'extraction minière (20 %). Les autres activités du cycle (conversion et enrichissement de l'uranium, traitement et fabrication des combustibles) interviennent de façon marginale dans le bilan radiologique.

5.2.5.2.2. ÉLÉMENTS DE DOSIMÉTRIE POUR UN SCÉNARIO DE MULTIRECYCLAGE DU PLUTONIUM EN RNR

Outre le remplacement des réacteurs à eau pressurisée par une nouvelle technologie, plusieurs fonctions présentes dans le cycle électronucléaire actuel disparaissent avec la mise en œuvre du cycle RNR :

- L'extraction minière de l'uranium ;
- Les opérations de conversion et d'enrichissement de l'uranium.

La suppression de ces fonctions est importante car elles représentent à elles seules plus de 70 % de la dosimétrie collective hors réacteur dans le cycle actuel. Par ailleurs, au vu de l'expérience acquise sur Phénix et surtout sur Superphénix, la dosimétrie des réacteurs à neutrons rapides semble plus faible que celle des réacteurs à eau. Il s'ensuit que les activités restantes du cycle du combustible (principalement la fabrication et le traitement des combustibles) auront un poids beaucoup plus important dans le bilan dosimétrique global.

5.2.5.2.3. ÉLÉMENTS DE DOSIMÉTRIE POUR LES SCÉNARIOS DE TRANSMUTATION DES ACTINIDES MINEURS

Chaque scénario de transmutation nécessite le déploiement de plusieurs installations pour fabriquer, traiter les combustibles usés et entreposer des objets de nature différente (combustibles usés, colis de déchets, matières séparées).

Les installations de fabrication et de traitement, tout comme les réacteurs, seront conçues de façon à satisfaire la réglementation en vigueur concernant l'exposition individuelle du public ou des travailleurs. En termes de doses collectives, des objectifs cibles tenant compte des marges de progrès seront vraisemblablement spécifiés dès la conception des installations.

De ce point de vue, le bilan dosimétrique du cycle devrait tendre vers des valeurs du même ordre de grandeur quelle que soit l'option de transmutation considérée. Par contre, l'effort de radioprotection sera plus marqué avec le recyclage du curium et avec la transmutation en mode hétérogène.

Pour les réacteurs, l'adaptation des protections concernera surtout la chaîne de manutention des assemblages neufs. Concernant les autres étapes du cycle, les opérations de conversion des actinides mineurs et de fabrication des assemblages chargés en actinides mineurs demanderont un renforcement des protections biologiques par rapport à une production de combustible mixte d'oxyde d'uranium et de plutonium.

Pour répondre à des objectifs de dose collective, les différentes phases de fonctionnement (production et maintenance) des installations composant les cycles de transmutation seront à optimiser. Pour cela la nécessaire adaptation des protections devra être accompagnée par la mise en œuvre de procédés et d'équipements réduisant la contamination, compatibles avec un emploi en chaîne blindée et aisément maintenables.

5.2.5.3. RÉSISTANCE À LA PROLIFÉRATION

L'incidence, sur la résistance vis-à-vis des risques de prolifération, de la mise en œuvre d'options de transmutation est une question délicate et complexe. Plusieurs aspects sont à considérer : l'impact sur l'attractivité des matières, sur leur accessibilité, mais également sur les contrôles associés au respect des garanties.

Sur ces divers aspects, des analyses sont menées (y compris dans un cadre international) ; il n'a à ce jour pas été fait état d'avantages ou de détriments déterminants, associés au recyclage d'actinides mineurs à une teneur modérée (de l'ordre du %) dans le combustible nourricier (transmutation homogène). On peut considérer que l'accès à la matière est rendu plus difficile par la présence d'éléments tels que par exemple le curium, mais que les contrôles peuvent en revanche s'avérer plus délicats à opérer dans ces conditions ; le bilan ne peut être correctement évalué que par des analyses approfondies, à mener sur des systèmes bien définis.

Un point particulier toutefois, sur lequel il semble que la mise en œuvre de la transmutation puisse apporter un avantage significatif : c'est le cas de la transmutation en couvertures, placées en périphérie du cœur. De telles couvertures radiales (oxyde d'uranium appauvri) peuvent être envisagées pour accroître le taux de régénération du réacteur ; leur irradiation conduit en effet à la production de plutonium, et en particulier de ^{239}Pu, par capture neutronique sur ^{238}U. La présence, au sein de telles couvertures, d'américium (et en particulier de ^{241}Am), conduirait lors de l'irradiation à la formation de quantités importantes de ^{238}Pu (voir chapitre 3.1). On aboutirait ainsi, tout au long du processus d'irradiation des couvertures, à l'apparition d'un plutonium dont la qualité isotopique serait moins « attractive », renforçant par là la résistance à la prolifération du dispositif.

5.3. LES SCÉNARIOS DITS « DE FIN DE VIE » (OU DE « PHASE-OUT »)

Comme déjà mentionné au chapitre 5.2.1, un parc de réacteurs à neutrons rapides de 60 GWe mobilise environ 950 tonnes de plutonium réparties à parts à peu près égales entre les réacteurs et les installations du cycle du combustible. Avec des réacteurs isogénérateurs, le parc RNR ne produit pas de plutonium et fonctionne sur la masse de plutonium avec laquelle il a été chargé au départ.

Par ailleurs, si des options de transmutation sont mises en œuvre, ce sont 60 à 160 tonnes d'actinides mineurs et environ 1 100 tonnes de plutonium qui seront présentes dans le cycle. Au total, il faudra gérer environ 1 200 tonnes d'actinides transuraniens (plutonium et actinides mineurs) [28] à l'arrêt du nucléaire.

28 – A ce stade de l'étude, il est judicieux de considérer le plutonium et les actinides mineurs comme un tout. A l'exception de la criticité et du contrôle de non-prolifération, leur gestion dans un stockage géologique pose des questions techniques de même nature.

On se souviendra que la capacité de transmutation d'un tel parc est de l'ordre de 2 tonnes/an. Aussi, le bénéfice de la transmutation, même mise en œuvre pendant quelques siècles, serait anéanti par l'envoi d'un tel inventaire d'actinides transuraniens au stockage géologique. La mise en œuvre de la transmutation ne gardera un sens que si elle est accompagnée d'une réduction notable des inventaires pour minimiser les quantités d'actinides qui seront mises *in fine* aux déchets.

Le souci d'envoyer le minimum de ces matières dans les déchets ultimes peut aussi exister en dehors de toute stratégie de transmutation. On sait par exemple que la présence d'importantes quantités de plutonium dans les déchets complexifie notablement leur gestion (déchets soumis aux contrôles des organisations internationales en matière de non-prolifération, important dégagement thermique qui nécessite de grandes emprises de stockage…). La réduction de ces contraintes peut faire partie des éléments d'optimisation d'une « fin de vie » du nucléaire.

Pour diminuer l'inventaire en plutonium, il faut utiliser les possibilités de fonctionnement des réacteurs électronucléaires d'en consommer nettement plus qu'ils en produisent. Avec un RNR, ces conditions peuvent s'obtenir en réduisant la fraction d'uranium-238 dans le cœur (pour diminuer la production) et en augmentant l'enrichissement en plutonium du combustible (pour augmenter la consommation). Un tel cœur possède un excès de réactivité qu'il faut corriger par « empoisonnement » (introduction d'absorbants neutroniques) ou par « dilution » (remplacement des aiguilles combustibles par des aiguilles en acier).

Le CEA a mené au milieu des années 1990 une étude pour mettre au point un cœur Capra (Consommation Accrue de Plutonium en Réacteur Avancé) fortement consommateur de plutonium, compatible avec le dessin et les performances de la chaudière EFR (European Fast Reactor). Ce concept utilisait des assemblages comportant des aiguilles fortement chargées en plutonium (45 %) mélangées à des aiguilles en acier et permettait de consommer de l'ordre de 70 kg/TWhe de plutonium. Ce cœur présentait néanmoins plusieurs points faibles comme :

- Une importante perte de réactivité liée à la consommation de plutonium ;
- Un faible temps de séjour du combustible dans le cœur pour ne pas avoir un taux de combustion excessif ;
- Une augmentation du coefficient de vidange sodium.

Pour permettre de réaliser cette étude de scénarios, l'ébauche d'un travail analogue à l'étude Capra a été menée pour décrire la transposition en une version « brûleur de Pu », du cœur d'un RNR de 4e génération (cœur SFR V2b). Ce cœur (qui sera dénommé SFR Capra dans la suite) possède un niveau de consommation de Pu (~45 kg/TWhe) sensiblement moindre que celui du cœur Capra dérivé de l'EFR. Ce cœur offre également la possibilité de transmuter les actinides mineurs au rythme de 3-3,5 kg/TWhe s'accompagnant d'une légère baisse de la consommation de plutonium. La consommation totale Pu+AM reste de l'ordre de 45 kg/TWhe.

Le cœur SFR Capra présente les mêmes points faibles que ceux énoncés plus haut, notamment une augmentation sensible du coefficient de vidange. Ce résultat est sans surprise puisque dans cette étude préliminaire, la réduction de l'effet de vidange n'a pas été prise en compte dans les contraintes de conception du cœur, et ne préjuge pas des possibilités d'amélioration sur ce point.

Au rythme de 45 kg/TWhe, il faudrait une cinquantaine d'années pour brûler totalement l'inventaire des 1 000 tonnes de plutonium. En réalité cela prendra davantage de temps car le nombre de réacteurs brûleurs du parc devra diminuer au fur et à mesure que l'inventaire de plutonium décroîtra, réduisant de ce fait la capacité de consommation du parc. L'inventaire de plutonium ne diminuera donc pas de façon linéaire mais selon une exponentielle décroissante.

FIGURE 48 : RECYCLAGE EN SFR-Capra DU PLUTONIUM SANS TRANSMUTATION DES ACTINIDES MINEURS

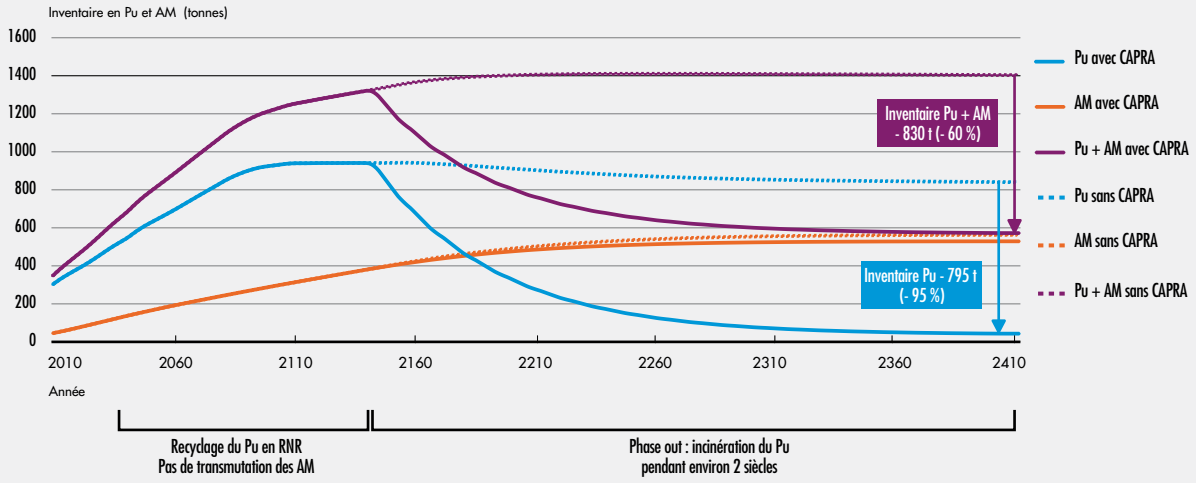
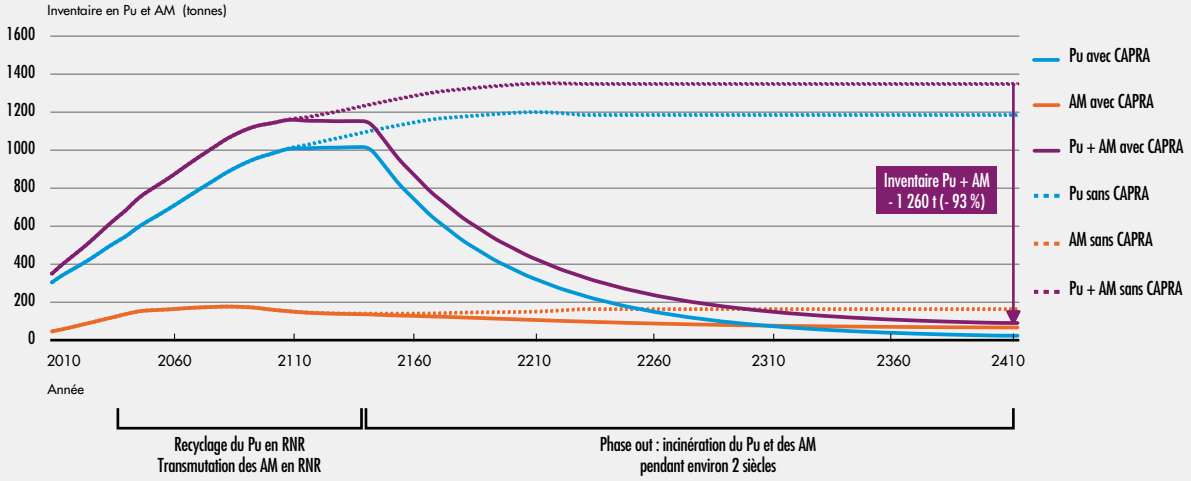


FIGURE 49 : RECYCLAGE EN SFR-Capra DU PLUTONIUM AVEC TRANSMUTATION DES ACTINIDES MINEURS



Par ailleurs, il se produira une dégradation progressive de la composition isotopique du plutonium (les isotopes les plus fissiles disparaissant préférentiellement) conduisant à augmenter continument l'enrichissement en plutonium du cœur. Ces évolutions seront pénalisantes tant pour le réacteur (sûreté du cœur) que pour le cycle du combustible (possibilité de traiter des combustibles très fortement chargés en Pu) sans que l'on sache bien en définir les limites aujourd'hui.

5.3.1. SCÉNARIOS DE PRINCIPE

Ainsi, afin d'estimer les performances maximales en termes de réduction d'inventaire, on a supposé dans un premier temps l'absence de toute contrainte pour recycler le plutonium et les actinides mineurs. Le premier scénario étudié considère le recyclage du seul plutonium sans transmutation des actinides mineurs.

Les résultats de ce scénario sont représentés sur la Figure 48 : on voit qu'il est théoriquement possible de réduire de 95 % l'inventaire de plutonium (courbe bleue) en mettant en œuvre le multirecyclage du plutonium en SFR-Capra sur une durée de l'ordre de 2 siècles. Mais dans le même temps l'inventaire d'actinides mineurs (courbe orange) continue de croître pour atteindre environ 600 tonnes à la fin du scénario. A noter que cet inventaire représente la totalité des actinides mineurs produits depuis l'origine puisque ce scénario suppose que leur transmutation n'a jamais été mise en œuvre. L'inventaire total d'actinides (Pu+AM), représenté par la courbe violette, ne peut être réduit au mieux que de 60 %. En absence de transmutation des AM et du strict point de vue des masses d'actinides envoyées en stockage géologique, il ne semble pas utile de pousser très loin l'incinération du plutonium.

Au contraire, si la transmutation des AM est mise en œuvre dès le déploiement des RNR et poursuivie jusqu'à la fin de vie du parc, on constate qu'il est théoriquement possible de diminuer de plus de 90 % l'inventaire (Pu+AM) en l'espace d'environ 2 siècles (Figure 49). Dans un tel scénario, la quantité totale d'actinides (Pu+AM) envoyée en stockage géologique ne dépasserait pas 100 tonnes et n'amputerait que peu le bénéfice de la transmutation.

5.3.2. SCÉNARIOS UTILISANT LE SEUL PARC EXISTANT

On rappelle que les résultats exposés ci-dessus supposent que les actinides peuvent être recyclés sans limite et sans contrainte et représentent de ce fait le maximum de ce qu'il serait possible d'obtenir avec des SFR-Capra. À l'autre extrémité, il est intéressant d'examiner l'hypothèse de ne construire aucun nouveau réacteur à partir du moment où la décision d'arrêt du nucléaire est prise et de ne tirer parti que des réacteurs existants pour réduire les inventaires d'actinides.

Dans ces scénarios, tous les RNR existants sont transformés en brûleurs et utilisés de la sorte jusqu'à la fin de leur durée de vie (60 ans). Les potentialités de réduction des inventaires dépendront de l'âge du parc au moment où cette transformation sera faite. En effet, plus le parc sera jeune à cet instant et plus le temps de fonctionnement des réacteurs en mode brûleur pourra être élevé. Pour illustrer l'influence de ce paramètre, on a considéré deux parcs d'âges différents : un parc plutôt âgé (âge moyen de 45 ans) et un parc plutôt jeune (âge moyen de 25 ans).

Dans le cas où la transmutation des actinides mineurs n'a jamais été mise en œuvre, la masse de plutonium résiduelle s'établit entre 300 et 600 tonnes (Tableau 18). Le plutonium étant alors destiné à un stockage géologique, il viendra s'ajouter aux actinides mineurs naturellement présents dans le stockage (environ 500 tonnes pour un arrêt initié par exemple au milieu du siècle prochain). Dans cet exemple, la masse totale d'actinides stockée *in fine* pourrait s'établir entre 800 et 1 100 tonnes. Plus l'arrêt sera tardif, plus cette masse sera élevée et plus le poids du plutonium résiduel sera faible dans l'inventaire total.

TABLEAU 18 : INVENTAIRES DE PLUTONIUM ET ACTINIDES MINEURS DANS LE CAS D'UN ARRÊT UTILISANT LE SEUL PARC EXISTANT

SCÉNARIOS	Scénario sans transmutation des AM		Scénario avec transmutation des AM	
	Inventaire Pu initial	Inventaire Pu final	Inventaire (Pu+AM) initial	Inventaire (Pu+AM) final
PARC « ÂGÉ » (ÂGE MOYEN 45 ANS)	950 t	600 t	1200 t	950 t
PARC « JEUNE » (ÂGE MOYEN 25 ANS)		300 t		600 t

Dans le cas où la transmutation des actinides mineurs est mise en œuvre, l'inventaire final d'actinides (Pu+AM) s'établit entre 600 et 950 tonnes. Contrairement au cas précédent, ces masses sont indépendantes de la date à laquelle l'arrêt est initié. Bien que ces masses soient un peu plus faibles que celles mentionnées ci-dessus, l'intérêt d'avoir mis en œuvre auparavant une stratégie de transmutation serait dans ces conditions assez faible[29].

5.3.3. CONCLUSION DES SCÉNARIOS DE FIN DE VIE

La mise en œuvre de RNR dotés de cœurs brûleurs d'actinides, à condition de trouver une solution à la dégradation de leurs coefficients de sûreté, semble une voie intéressante pour diminuer les quantités d'actinides résiduels envoyés en stockage géologique. D'après ces premières études, on estime qu'une diminution d'un facteur 10 de l'inventaire plutonium demandera au moins 150 ans et nécessitera plusieurs générations successives de réacteurs brûleurs. Dans un scénario plus pragmatique où l'on chercherait à tirer parti du parc RNR existant sans construire de nouveaux réacteurs, il semble déjà possible de diminuer d'un facteur allant jusqu'à 3 l'inventaire final de plutonium.

Dans le cas où la transmutation des actinides mineurs a été préalablement mise en œuvre, la quantité finale d'actinides (Pu+AM) destinée au stockage géologique devra être suffisamment faible pour ne pas amputer exagérément les bénéfices de la transmutation : ainsi, la quantité d'actinides restant après un siècle de « phase out » (~300 tonnes) est équivalente à la quantité d'actinides mineurs « évitée » par 150 années de transmutation. Ce constat confirme une fois encore que la transmutation ne peut prendre son sens que si elle est mise en œuvre pendant des durées importantes (typiquement plusieurs siècles) et que si elle s'accompagne d'une stratégie de « fin de vie », dont la durée peut aujourd'hui être estimée entre 1 et 2 siècles, afin de réduire suffisamment les inventaires finaux d'actinides envoyés en stockage géologique.

29 – La capacité de transmutation des AM du parc est de l'ordre de 2 t/an. L'inventaire final d'actinides qui serait alors mis en stockage géologique, « neutraliserait » le bénéfice de 300 à 500 années de mise en œuvre de la transmutation.

6. CONCLUSION 77
Annexe 1 : La transmutation des PFVL 79
Annexe 2 : Problématique du curium dans le cycle 81
Annexe 3 : Glossaire des principales molécules organiques utilisées dans les procédés de séparation 84
Références 85

6. CONCLUSION

L'étude de la séparation-transmutation des éléments à vie longue, en tant qu'option à explorer, est une exigence législative ouverte par la loi du 30 décembre 1991 et confirmée par celle de 2006 dans une dynamique de progrès sur la gestion des déchets radioactifs.

La transmutation ne supprime pas le besoin d'un stockage géologique qui représente la solution définitive pour gérer de manière durable les déchets radioactifs ultimes de haute et moyenne activité à vie longue dont il est impossible d'envisager la suppression totale. La transmutation doit ainsi être perçue comme une piste d' optimisation de la gestion de ces déchets.

Les actinides mineurs n'étant pas mobiles dans le concept de stockage dans l'argile retenu en France, ils ne contribuent pas aux doses radiologiques à l'exutoire. En revanche, le plutonium ayant été extrait, ils représentent la composante majoritaire de l'inventaire de radiotoxicité intrinsèque des déchets ultimes à moyen et long termes, ainsi que la source principale de leur puissance thermique dans les premiers siècles de leur désactivation progressive. Les actinides mineurs peuvent donc, après le plutonium, être considérés comme la cible d'une stratégie de transmutation des éléments à vie longue, même si leur manipulation lors de leur cycle de transmutation pose de difficiles problèmes de radioprotection et de thermique. Il convient de rappeler que la transmutation des produits de fission à vie longue n'est pas techniquement possible.

La transmutation des actinides mineurs ne peut avoir de sens qu'en accompagnement d'une stratégie de recyclage du plutonium. Pour transmuter les actinides mineurs, il faut en effet disposer préalablement d'une technologie capable d'utiliser de manière pérenne l'actinide majeur qu'est le plutonium. Les réacteurs à neutrons rapides (RNR) sont capables de répondre à ces deux objectifs.

Ainsi, la mise en œuvre de la transmutation ne peut être envisagée que dans le cadre d'un parc nucléaire futur comportant des réacteurs adaptés à la transmutation et des installations du cycle capables d'assurer la séparation et le recyclage des radionucléides d'intérêt. Cette stratégie ne s'applique donc pas aux colis de verre du parc électronucléaire actuel (déchets déjà produits et déchets engagés). Ces déchets ultimes sont destinés au stockage géologique.

La faisabilité de la séparation des actinides mineurs est démontrée à l'échelle du laboratoire sur des solutions réelles et en conditions représentatives du milieu et des équipements utilisés. On dispose de solutions éprouvées pour chacune des voies étudiées :

- Séparation de l'américium et du curium (procédé DIAMEX-SANEX) ;
- Séparation groupée des actinides (Pu+AM) (procédé GANEX) ;
- Séparation du seul américium (procédé EXAm).

Le cœur de ces divers procédés est validé. Il s'agit d'en poursuivre la consolidation pour approcher les conditions industrielles en termes de mise en œuvre, de robustesse et de complétude.

Quel que soit le dispositif de transmutation considéré (RNR critique ou ADS), la transmutation des actinides mineurs est un processus complexe et lent et l'obtention de performances élevées nécessite plusieurs passes en réacteur et, en conséquence, un multirecyclage des éléments considérés.

La transmutation en mode hétérogène consistant à placer les actinides mineurs (AM) dans des « couvertures » disposées dans les zones périphériques du cœur est aujourd'hui l'option privilégiée pour mener les études de transmutation. Néanmoins, le comportement sous irradiation de couvertures contenant une quantité significative d'actinides mineurs est encore insuffisamment connu. Des essais d'irradiation sont en cours pour conforter la faisabilité de cette option.

Pour répondre à la demande de la loi du 28 juin 2006 de disposer d'une évaluation des perspectives industrielles des filières de transmutation, différents scénarios de gestion des matières ont été considérés afin de mettre en lumière les apports et les détriments des différentes voies de transmutation envisagées. Il s'est agi à ce stade d'évaluer des options et non de chercher à décrire une future réalité industrielle.

Les principaux enseignements de cette évaluation sont résumés ci-après :

Impact sur les inventaires

La transmutation de tous les AM permet une stabilisation dans la durée de leur inventaire total. Dès lors, la production d'électricité ne s'accompagne d'aucune production supplémentaire d'AM.

Le recyclage et la transmutation des AM permettent de limiter considérablement la quantité d'actinides présente dans les déchets produits dans ces conditions puisque de facto, à l'exception de pertes minimes, les AM n'y sont plus envoyés. L'inventaire d'actinides présent dans les déchets est alors essentiellement gouverné par le « talon » initial qui dépendra de la date de mise en œuvre de la transmutation.

Le pendant immédiat de la mise en œuvre de la transmutation des AM est une augmentation de leur inventaire en cycle (réacteurs et installations du cycle du combustible) : 60 à 160 tonnes selon les scénarios retenus (à comparer à ~1 000 tonnes de plutonium dans le cycle RNR). Ceci se traduit par une complexité accrue, notamment au plan de la radioprotection et de la sûreté, des installations du cycle.

Impact sur les déchets
La transmutation de tous les AM permet intrinsèquement une réduction de la radiotoxicité des déchets d'un facteur 20 à 100 selon l'horizon considéré.

La transmutation du seul Am limite cette réduction à un facteur 2.

La transmutation ne modifie pas l'impact radiologique du stockage car les actinides sont confinés quasi totalement dans le champ proche et ne contribuent pas aux doses reçues aux exutoires du stockage (en scénario d'évolution normale ou altérée).

La transmutation permet une réduction de la charge thermique des déchets autorisant une plus grande compacité du stockage. La réduction d'emprise de la zone de stockage des déchets HA (verres) peut atteindre un facteur 10 par rapport à un scénario sans transmutation. Compte tenu de la place occupée par les infrastructures d'accès et par la zone de stockage MA-VL, le gain est plus réduit à l'échelle de l'ensemble du centre de stockage : la transmutation pourrait permettre diminuer d'un facteur 3 l'emprise souterraine d'un stockage géologique ou, pour une ressource de stockage donnée, de prendre en charge les déchets d'une production électronucléaire jusqu'à 3 fois plus importante

Impact sur les installations du cycle
La transmutation pose des problèmes manifestes de radioprotection et de thermique (essentiellement à cause du curium) dans les opérations de fabrication, de transport et de traitement des combustibles.

Le transport d'objets contenant de grandes quantités d'AM, curium en particulier (couvertures chargées en AM, combustibles pour ADS), représente un réel point dur que l'on ne sait pas résoudre aujourd'hui sans démontage des assemblages. Une telle gestion serait très pénalisante techniquement et économiquement.

Ces difficultés conduisent à se questionner fortement sur l'intérêt de transmuter le curium en regard du peu d'avantages que cela apporterait.

Impact sur la sécurité d'approvisionnement
La transmutation des AM dans le cycle complexifie l'ensemble des installations et leur exploitation. Dans l'option homogène, les conséquences de défaillances pourraient toucher toute la production électronucléaire et donc mettre en risque la sécurité d'approvisionnement.

Impact sur l'économie
Les études économiques fondées sur le coût moyen de production de l'électricité ne permettent pas de différencier nettement les modes de transmutation, hormis celui utilisant les ADS comme brûleurs d'actinides. En effet, les surcoûts liés à la transmutation se situeraient entre 4 et 9 % pour tous les scénarios utilisant les RNR et environ 25% pour le scénario utilisant les ADS.

Les incertitudes les plus élevées touchent aux opérations du cycle du combustible. Néanmoins, dans l'hypothèse d'un parc de 60 GWe, le faible poids (~10 %) de ces opérations dans le coût moyen de production affaiblit l'impact de ces incertitudes.

En partie en raison de l'actualisation qui diminue le poids des dépenses à long terme, le coût du stockage souterrain et a fortiori les économies relatives qui pourraient être apportées par la transmutation n'ont pas d'impact sur l'évaluation du coût moyen de production.

La transmutation en ADS
La voie des ADS représente une option techniquement très complexe (réacteurs, combustibles…) nécessitant la mise au point d'éléments de très haute technicité avec un retour d'expérience pour le moment totalement inexistant.

Les ADS présentent des capacités de transmutation séduisantes sur le papier mais qui ne peuvent être mises à profit à cause de la trop faible puissance des concepts actuels. Il faudrait 18 ADS de 385 MWth (modèle industriel du projet européen Eurotrans) pour obtenir la même capacité de transmutation qu'un parc de 40 RNR de 1 500 MWe.

Comme indiqué plus haut, le surcoût de la transmutation en ADS apparaît particulièrement élevé (+30 %).

Le bilan avantages/inconvénients est donc aujourd'hui difficilement en faveur des ADS. Les capacités de transmutation, des ADS ne pourront être exploitées efficacement qu'avec des machines de forte puissance qui permettront également de faire baisser le surcoût de cette option. Pour le CNRS, l'étude de conception d'ADS de forte puissance est donc un axe de recherche prioritaire.

Transmutation du curium
Parce que le curium présente à la fois une forte radioactivité, une émission neutronique importante et une puissance thermique élevée, sa manipulation est particulièrement délicate. La mise en œuvre de la transmutation du curium s'accompagnerait d'importantes difficultés techniques particulièrement au stade de la fabrication des combustibles et de leur transport.

A contrario, la transmutation du curium apporterait peu d'avantages significatifs pour la gestion des déchets. Seule la recherche d'une diminution significative de la radiotoxicité des déchets à toute échelle de temps requerrait de transmuter aussi le curium (cf. Annexe 2 : Problématique du curium dans le cycle).

Ces différents constats laissent penser que les inconvénients de la transmutation du curium dépasseraient largement ses avantages.

Transmutation et fin de vie du nucléaire
A l'arrêt du nucléaire, il est indispensable de réduire notablement les inventaires finaux d'actinides (plutonium et AM) présents dans les réacteurs et installations du cycle pour minimiser les quantités envoyées aux déchets. Faute de quoi, le bénéfice de la transmutation pourrait être fortement amputé voire anéanti.

La transmutation ne pourra ainsi prendre son sens que si elle est mise en œuvre pendant des durées importantes (typiquement plusieurs siècles) et que si elle s'accompagne d'une stratégie de « fin de vie », dont la durée peut aujourd'hui être estimée entre 1 et 2 siècles, afin de réduire suffisamment les inventaires finaux d'actinides envoyés en stockage géologique.

ANNEXE 1 : LA TRANSMUTATION DES PFVL

Les recherches sur la séparation / transmutation des produits de fission ou d'activation à vie longue (PFVL) ont été menées dans le cadre de la loi du 30 décembre 1991. Au début des années 90, les diverses modélisations du stockage géologique[30] mettaient en évidence qu'avant les actinides mineurs, les premiers éléments radioactifs à rejoindre la biosphère étaient les produits de fission, notamment l'iode, le césium et le technétium. Ces trois éléments présentaient en effet à la fois un isotope à vie très longue[31] de radiotoxicité significative en raison de son abondance, et des propriétés (notamment une grande solubilité dans l'eau) les rendant potentiellement plus mobiles que les autres éléments.

Bien que l'impact potentiel calculé de ces éléments sur la biosphère était très en dessous de la limite réglementaire de dose, ces produits de fission ont néanmoins été considérés dans une stratégie de séparation / transmutation.

Séparation des PFVL

La séparation de ces éléments pouvait s'effectuer par une adaptation du procédé PUREX (cas de l'iode ou du technétium) ou nécessitait la mise au point d'un procédé spécifique (césium).

Le procédé de traitement actuel est en effet capable de séparer l'iode avec un très bon rendement : ceci est d'ailleurs déjà pratiqué dans les usines de La Hague puisque la très grande majorité de l'iode n'accompagne pas le flux général des produits de fission dirigé vers les déchets vitrifiés. L'iode (renfermant essentiellement l'isotope à vie longue ^{129}I) est isolé et rejeté en mer dans les effluents liquides, sans conséquence mesurable pour la santé publique ou l'environnement en raison de la dilution isotopique dans l'iode naturel présent en quantité significative dans l'eau de mer.

La séparation poussée du technétium doit être envisagée sous deux angles différents par le fait que cet élément se partage entre une forme soluble et une forme insoluble. Seule la fraction soluble (50 % à 85 % selon la nature du combustible traité est récupérable ; la récupération du complément (15 % à 50 %) n'est pas réalisable avec les technologies actuellement mises en œuvre dans les usines de traitement.

Pour le césium, un procédé de séparation basé sur l'emploi de molécules extractantes hautement spécifiques (calixarènes[32]) a été développé et sa faisabilité scientifique a été démontrée au niveau du laboratoire.

Transmutation des PFVL

N'étant pas fissiles comme le sont les actinides, les produits de fission ne peuvent être transmutés que par capture neutronique. Celle-ci est fortement consommatrice de neutrons et ne peut s'envisager que dans des situations où il existe un net excès de neutrons. C'est pourquoi les RNR sont mieux adaptés à cette exigence.

Le technétium représente le cas le plus favorable. La cible de transmutation peut être constituée simplement de technétium métallique pur et les expériences d'irradiation qui ont été menées ont montré que le gonflement restait modéré sans changement microstructural significatif du métal. Néanmoins, les rendements de transmutation restent faibles, même dans des conditions neutroniques optimisées. Pour atteindre une réduction significative des inventaires (par exemple un facteur 10), il faudrait recycler l'élément plusieurs fois sur des durées séculaires.

À l'opposé du technétium, la transmutation de l'iode s'est révélée pratiquement irréalisable de par l'impossibilité de trouver un composé qui soit suffisamment stable thermiquement pour permettre son introduction dans un réacteur.

La transmutation du césium pose un autre type de problème car celui-ci est constitué principalement de deux isotopes : ^{135}Cs à vie longue (environ 15 % en masse) et ^{133}Cs, isotope inactif et non radiotoxique. Seule la transmutation du ^{135}Cs est utile. Néanmoins sous irradiation, le ^{133}Cs se transforme en grande partie en ^{135}Cs et recrée une quantité supérieure à celle détruite par transmutation. Une séparation isotopique en amont de la transmutation serait donc nécessaire mais une telle opération serait très lourde à mettre en œuvre. La transmutation du césium n'est donc pas envisageable de façon réaliste.

Discussion

Seule la séparation-transmutation du technétium apparaît faisable mais avec des rendements faibles. Les calculs d'évaluation des performances des stockages menés dans les années 90 ont montré que le technétium, d'abord considéré

30 – En particulier les exercices menés dans un cadre européen (PAGIS (1985) puis ultérieurement EVEREST (1997) et SPA (2000).

31 – Respectivement ^{129}I (période 16 millions d'années), ^{135}Cs (période 2,3 millions d'années) et ^{99}Tc (période 0,2 million d'années)

32 – Les calixarènes sont des macrocycles formés de groupements phénoliques. Le greffage d'éthers couronne sur ces structures permet d'apporter une très grande sélectivité vis-à-vis de l'extraction du césium.

TABLEAU A1 : FAISABILITÉ DE LA SÉPARATION ET DE LA TRANSMUTATION DES PFVL

PFVL	séparation	transmutation
Iode	aisée	pratiquement impossible
Technétium	aisée (partie soluble) très difficile (partie insoluble)	faisable
Césium	difficile mais faisable	non réaliste sans séparation isotopique préalable

sous sa forme oxydée pertechnétate, se présentait en condition de stockage profond sous une forme réduite très peu soluble et donc peu mobile. Ce constat a considérablement amoindri l'intérêt de mettre en œuvre sa transmutation.

Le schéma de transmutation du césium apparaît très complexe et peu réaliste. De plus, les études menées à partir des années 90 qui ont mis en évidence une faible mobilité de cet élément dans l'argile liée notamment à des phénomènes de sorption, ont retiré tout intérêt à poursuivre les recherches dans ce domaine.

Pour l'iode, l'absence de composé stable sous irradiation est considérée comme rédhibitoire pour envisager sa transmutation. Cela étant, les évaluations menées par l'Andra sur la base d'une estimation enveloppe des quantités d'iode supposées présentes dans les colis de verre, conduisent à des doses radiologiques à l'exutoire très faibles en valeur absolue et bien en-deçà des valeurs réglementaires.

Il en est de même pour le chlore 36, qui est également un contributeur relatif important à la dose à l'exutoire calculée par l'Andra. Ce radionucléide est un produit d'activation à vie longue formé à partir de traces de chlore naturel présent dans la matrice combustible et dans les matériaux de structure des assemblages. Le chlore 36 est donc présent sous une forme extrêmement diluée dans différents types de colis (HA et MAVL) et sa récupération pour le transmuter serait quasiment impossible. La recherche de voies permettant de diminuer les quantités de chlore 36 formées (en réduisant les traces de chlore naturel présentes dans les matériaux à irradier) serait certainement une solution plus efficace que la transmutation pour réduire l'impact radiologique de ce radionucléide.

L'ensemble de ce constat a conduit le CEA à proposer en 2006 l'arrêt des recherches sur la transmutation des produits de fission à vie longue et à focaliser le programme sur la transmutation des actinides mineurs.

ANNEXE 2 : PROBLÉMATIQUE DU CURIUM DANS LE CYCLE

Le curium formé dans les combustibles irradiés comporte essentiellement 5 isotopes dont les masses vont de 242 à 246. Seuls les isotopes supérieurs sont des radionucléides à vie longue, mais tous comportent dans leur schéma de décroissance un radionucléide à vie longue, voire très longue.

Tous les isotopes du curium considérés ici sont des émetteurs alpha. Du fait de leur courte période radioactive, le ^{242}Cm (163 j) et dans une moindre mesure le ^{244}Cm (18,1 a) présentent une forte radioactivité et une puissance thermique élevée. Par ailleurs, les isotopes pairs subissent des fissions spontanées et sont des émetteurs de neutrons importants. Toutes ces caractéristiques rendent la manipulation du curium particulièrement délicate.

Les différents isotopes du curium sont produits par captures neutroniques successives à partir de l'américium, lui-même formé à partir du plutonium. De ce fait, la production de curium sera d'autant plus importante que la quantité de ses précurseurs sera plus élevée: ce sera particulièrement le cas pour les combustibles au plutonium (MOX) ou pour les combustibles fortement chargés en américium (CCAm).

La séparation du curium en accompagnement de l'américium ne présente aucune difficulté particulière car les deux éléments possèdent des propriétés chimiques peu différentes.

Parmi les concepts actuellement envisagés, seule la récupération sélective de l'américium (procédé EXAm) requiert de séparer l'Am du Cm. Cette opération ne pose cependant pas de problèmes fondamentaux si ce n'est qu'elle nécessite des étages de séparation en nombre suffisant.

A l'instar de celle des autres actinides mineurs, la transmutation du curium est un processus lent – notamment en regard de sa décroissance naturelle – et complexe – parce qu'elle génère des isotopes supérieurs dont certains (^{252}Cf…) peuvent s'avérer extrêmement gênants en raison de leur émission neutronique particulièrement élevée.

Au-delà de ces aspects généraux, il convient de s'interroger sur les apports et les détriments de la transmutation du curium. Ceux-ci sont exprimés en différentiel par rapport à la transmutation du seul américium. On rappelle que cette dernière génère des quantités supplémentaires de curium qui amplifient a priori les motivations pour transmuter cet élément.

1 – La transmutation du curium permet de diminuer son inventaire dans les déchets mais cette diminution est peu significative par rapport à l'inventaire des autres actinides présents (tableau A2-1). A l'inverse, l'inventaire du curium dans le cycle augmente, tout en demeurant faible par rapport à celui des autres actinides mineurs et encore plus par rapport à celui du plutonium (tableau A2-2).

TABLEAU A2-1 : EFFET DE LA TRANSMUTATION DU CURIUM SUR LES INVENTAIRES D'ACTINIDES DANS LES DÉCHETS À L'ÉQUILIBRE

Transmutation Cm	Transmutation Am	Inventaire Cm	Inventaire autres AM	Inventaire Pu
oui	oui	0,2 t	63 t	8 t
non	oui	13 t	138 t	29 t
	non	5 t	380 t	20 t

TABLEAU A2-2 : EFFET DE LA TRANSMUTATION DU CURIUM SUR LES INVENTAIRES D'ACTINIDES DANS LE CYCLE À L'ÉQUILIBRE

Transmutation Cm	Transmutation Am	Inventaire Cm	Inventaire autres AM	Inventaire Pu
oui	oui	15 t	93 t	1200 t
non	oui	5 t	82 t	1200 t
	non	2 t	16 t	950 t

2 – En termes de radiotoxicité des déchets produits, on sait que le curium formé lors de la transmutation de l'américium en limite les bénéfices attendus à certaines périodes de temps. On constate que la transmutation du curium permet de diminuer la radiotoxicité d'un facteur 10 sur l'intervalle 1 000-10 000 ans (figure A2-1).

3 – Le curium contribuant à la puissance thermique émise par les colis de déchets, on peut s'attendre à ce que sa transmutation soit bénéfique pour réduire cette puissance et permettre de densifier le stockage. Si cela s'avère vrai pour des colis entreposés 70 ans avant stockage, ce bénéfice s'estompe fortement après un entreposage de 120 ans dans la mesure où la composante thermique du curium s'est alors pratiquement éteinte naturellement.

4 – La transmutation du curium diminue d'un facteur 15 la dose de désintégrations alpha reçue par le verre en situation de stockage. Néanmoins, cela n'aura aucune conséquence sur le nombre de colis produits puisque cette dose est déjà sensiblement inférieure à la limite actuellement retenue (cf. tableau A2-3).

5 – La transmutation du curium apporte de très fortes contraintes en particulier pour les opérations de fabrication des combustibles (tableau A2-4) et pour les transports (tableau A2-5). L'émission neutronique du curium nécessite des dispositifs renforcés de radioprotection et son dégagement de chaleur implique de prendre des dispositions particulières pour maîtriser les températures.

Ces différents constats laissent penser que les inconvénients de la transmutation du curium dépassent largement ses avantages.

FIGURE A2-1 : EFFET DE LA TRANSMUTATION DU CURIUM SUR L'INVENTAIRE DE RADIOTOXICITÉ DES DÉCHETS

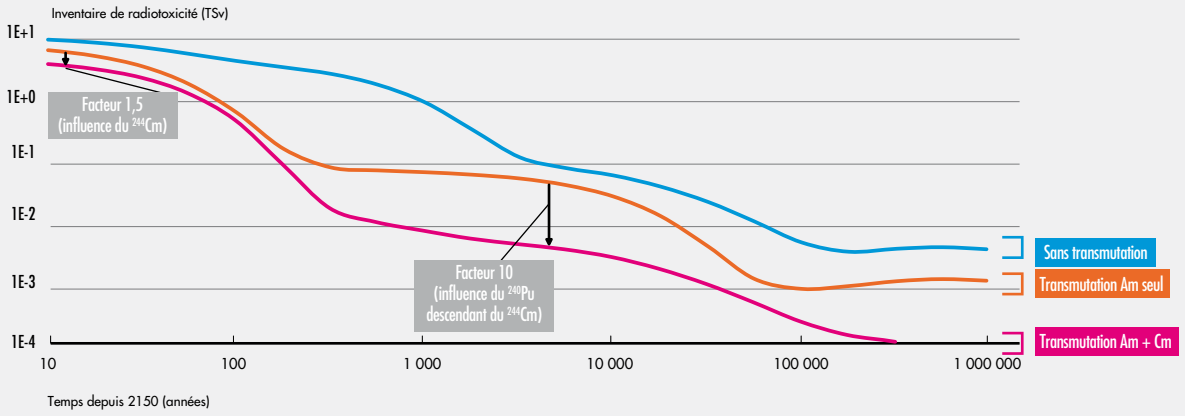


TABLEAU A2-3 : EFFET DE LA TRANSMUTATION DU CURIUM SUR L'EMPRISE DES COLIS DE VERRE

	Entreposage : 70 ans		Entreposage : 120 ans	
	Puissance	Emprise	Puissance	Emprise
TRANSMUTATION Am SEUL	325 W/colis	46 m²/colis	91 W/colis	10 m²/colis
TRANSMUTATION Am + Cm	235 W/colis	34 m²/colis	74 W/colis	9 m²/colis

-25% -10%

FIGURE A2-2 : EFFET DE LA TRANSMUTATION DU CURIUM SUR LA DOSE DE DÉSINTÉGRATIONS ALPHA REÇUE PAR LE VERRE EN 10 000 ANS

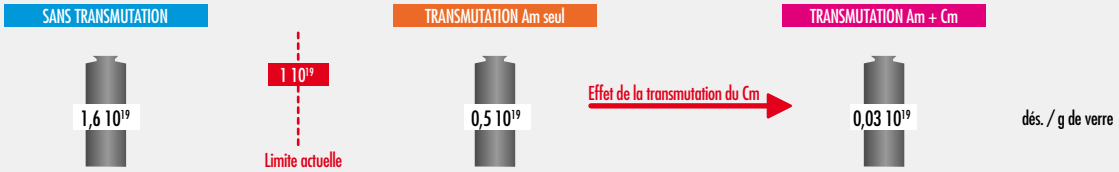


TABLEAU A2-4 : EFFET DE LA TRANSMUTATION DU CURIUM SUR LA PUISSANCE THERMIQUE ET L'ÉMISSION NEUTRONIQUE À LA FABRICATION

Scénarios	Pas de transmutation	Transmutation homogène		Transmutation hétérogène	
		Am seul	Am + Cm	Am seul	Am + Cm
Puissance thermique (val. relative)	1	2	5	6	**38**
Emission neutronique (val. relative)	1	1,5	**130**	3,5	**1700**

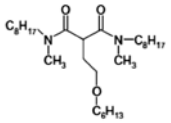
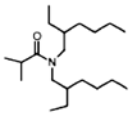
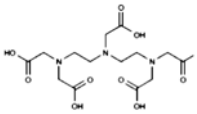
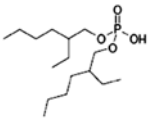
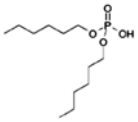
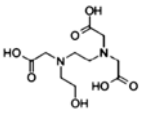
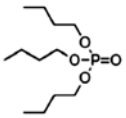
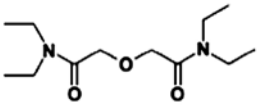
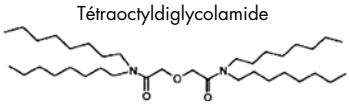
Effet de la transmutation du Cm — Effet de la transmutation du Cm

TABLEAU A2-5 : EFFET DE LA TRANSMUTATION DU CURIUM SUR LA PUISSANCE THERMIQUE DES ASSEMBLAGES À TRANSPORTER

Scénarios	Pas de transmutation	Transmutation homogène		Transmutation hétérogène	
		Am seul	Am + Cm	Am seul	Am + Cm
assemblage neuf (kW/ass.)	0,3	0,7	1,6	1,4	**9,1**
assemblage usé (kW/ass.)	1,0	1,5	1,9	5	**11**

Effet de la transmutation du Cm — Effet de la transmutation du Cm

ANNEXE 3 : GLOSSAIRE DES PRINCIPALES MOLÉCULES ORGANIQUES UTILISÉES DANS LES PROCÉDÉS DE SÉPARATION

ACRONYME	NOM & FORMULE	FONCTION	PROCÉDÉ
DMDOHEMA	DiMéthylDiOctylHexylEthoxyMalonAmide 	extractant diamide	DIAMEX SANEX GANEX 2 EXAm
DEHIBA	N,N-di(2-éthyl)hexyl)-isobutyramide 	extractant monoamide	GANEX 1
DTPA	Acide diéthylènetriaminepentaacétique 	complexant azoté aqueux sélectif des actinides	SANEX/TODGA
HDEHP	Acide bis(2-éthylhexyl)phosphorique 	extractant acide	SANEX-PALADIN GANEX 2 EXAm
HDHP	Acide di-hexylphosphorique 	extractant acide	SANEX/séparation extractants
HEDTA	Acide N-hydroxyéthyléthylène diaminetriacétique 	complexant azoté aqueux sélectif des actinides	SANEX GANEX 2 EXam
TBP	Phosphate de tri n-butyle 	extractant U, Pu, (Np)	PUREX COEX
TEDGA	N,N,N',N'-tetraéthyl-diglycolamide 	complexant aqueux fort (Ln, Y, Zr, Fe…)	SANEX/sép. extr GANEX 2 EXAm
TODGA	Tétraoctyldiglycolamide 	extractant diamide	SANEX/TODGA

DOCUMENTS THÉMATIQUES DE SYNTHÈSE

DTS-01 Faisabilité technique de la séparation poussée - Rapport final
C. Rostaing
Rapport technique DEN/DRCP/RT 2006/DR 01

DTS-02 Dossier 2012 : Faisabilité scientifique du procédé GANEX de séparation groupée des actinides
Résultats des études et essais dans ATALANTE (loi du 28 juin 2006)
Collectif
Rapport technique RT DRCP 2009/01

DTS-03 Faisabilité du procédé EXAm de séparation de l'américium seul - Résultats des études et essais menés dans ATALANTE
Collectif
Rapport technique DEN/DRCP/RT 2011/03

DTS-04 Dossier 2012 : Rapport de synthèse sur la faisabilité de la séparation des actinides mineurs (loi du 28 juin 2006)
C. Rostaing
Rapport technique DEN/DRCP/RT 2010/03

DTS-05 Dossier 2012 : Synthèse, endurance et régénération des extractants pour la régénération des actinides mineurs (loi du 28 juin 2006)
C. Rostaing et col.
Rapport technique DEN/DRCP/RT 2012/DR 02

DTS-06 Dossier 2012 : La gestion des effluents aqueux des opérations de séparation (loi du 28 juin 2006)
P. Pochon et col.
Rapport technique DEN/DRCP/RT 2012/DR 03

DTS-07 Les technologies pour la mise en œuvre des procédés de séparation
J. Duhamet et col.
Rapport technique DEN/DTEC/RT 2012/DR 01 Ind. 1

DTS-08 Dossier 2012 : Modèles pour la simulation des procédés de séparation des actinides mineurs (loi du 28 juin 2006)
Ch. Sorel et col.
Rapport technique DEN/DRCP/RT 2012 DR 6

DTS-09 Dossier 2012 : Le pilotage des procédés de séparation (loi du 28 juin 2006)
V. Vanel et col.
Rapport technique DEN/DRCP/RT 2012 DR 5/A

DTS-10 Dossier 2012 : les procédés pyrochimiques pour la séparation des actinides - Acquis et perspectives (loi du 28 juin 2006)
H. Boussier et col.
Rapport technique DEN/DRCP/RT 2012/D0 3

DTS-11 La faisabilité scientifique de la transmutation des déchets à vie longue
A. Zaetta et col.
Rapport technique DEN/CAD/DER/SPRC/RT 2012/SPRC/04-178 Ind. 1

DTS-12 Physico-chimie des combustibles pour la transmutation
JP. Ottaviani et col.
Note technique DEN/CAD/DEC/SPUA/LMPC DR 12-003

DTS-13 Transmutation en mode homogène : bilan et perspectives
N. Chauvin
Note technique DEN/CAD/DEC/SESC NT 12-003

DTS-14A Analyse et évaluation thermomécanique de l'irradiation BORA-BORA PuO_2-MgO - Taux de combustion élevé
S. Bejaoui
Note technique DEN/CAD/DEC/SESC/LC2I NT 08-001 Ind. 1

DTS-14B Examens post-irradiatoires réalisés sur les échantillons MATINA 1A : actualisation du bilan 2007
F. Delage
Note technique DEN/CAD/DEC/SESC/LC2I NT 09-025 Ind. 1

DTS-14C Expérience ECRIX-H : synthèse des examens et simulations post-irradiation
S. Bejaoui et col.
Note technique DEN/CAD/DEC/SESC/LC2I NT 10-002 Ind. 1

DTS-15 Dossier 2012 - Transmutation en couvertures fertiles : Expériences MARIOS et DIAMINO
S. Bejaoui & col.
Note technique DEN/CAD/DEC/SESC/LC2I NT 12-017

DTS-16 La transmutation dans le proto ASTRID
JP. Grouiller
Document technique DEN/CAD/DER/CPA AST1 AST NT 0075 Ind. 1

DTS-17 Transmutation des actinides mineurs en réacteur ADS : état d'avancement des développements combustibles
F. Delage
Note technique DEN/CAD/DEC/SESC/LC2I NT 12-009

DTS-18 Dossier 2012 : de la solution à l'oxyde - bilan des études de co-conversion de l'uranium et des actinides mineurs en oxydes mixtes (loi du 28 juin 2006)
S. Picart et col.
Rapport technique DEN/DRCP/RT 2012/DR 1

DTS-19 Dossier 2012 - Bilan des études de fabrication des combustibles chargés en actinides mineurs (loi du 28 juin 2006)
T. Delahaye et col.
Note technique DEN/MAR/DTEC/2012/02

DTS-20 Potentiel d'incinération des réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur et validation expérimentale du concept
J.L. Biarrotte, A. Billebaud, S. David, A. Guertin, A. Mueller, N. Thiollière Rapport CNRS

DTS-21 Evaluation technico-économique des options de transmutation
Collectif
Rapport technique DEN/CAD/DER/DIR/RT 2012-1

Conception et réalisation : **avant**garde

Crédits photos : Andra, CEA, CNRS, National Nuclear Data Center

Direction de l'énergie nucléaire
Centre de Saclay
91191 Gif-sur-Yvette cedex
www.cea.fr