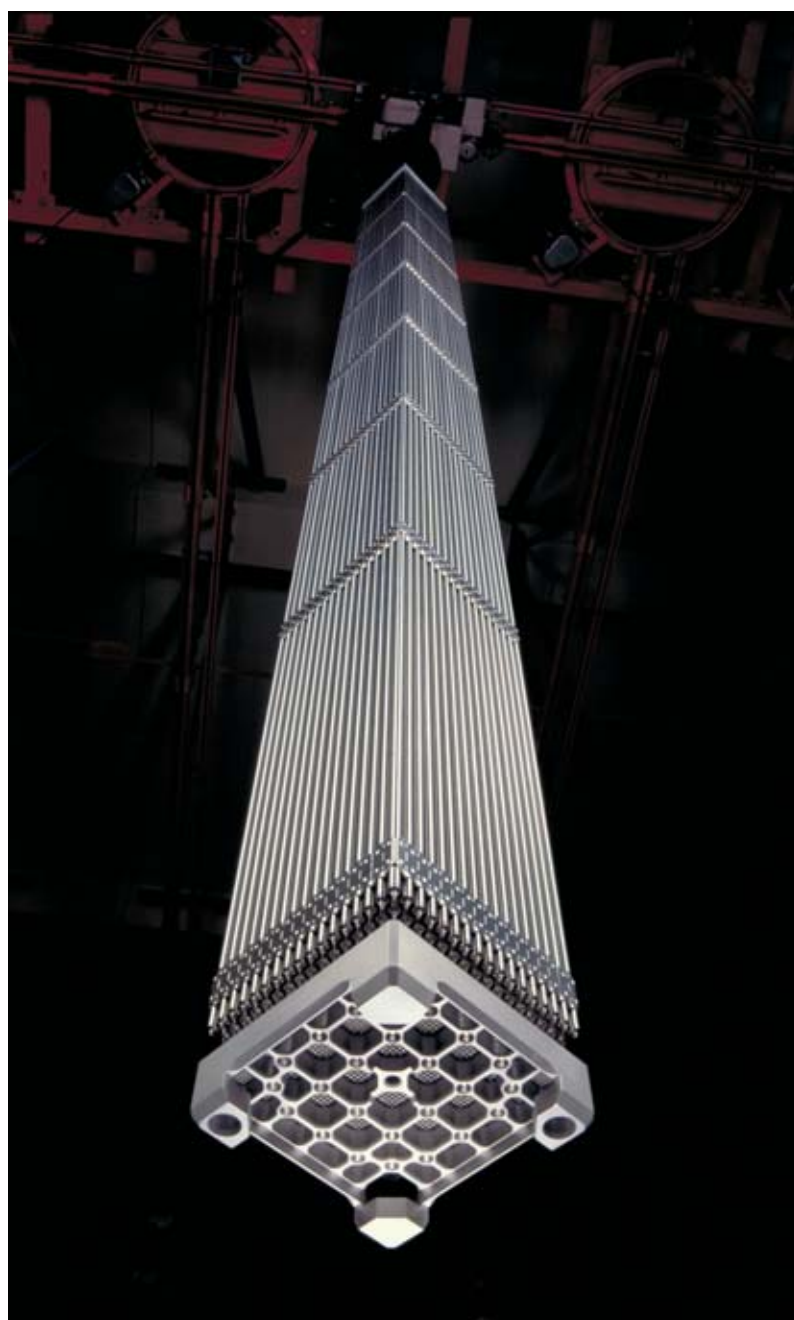


Le traitement des combustibles usés tel qu'il est conduit en France vise à optimiser tant la séparation des matières valorisables que la gestion des déchets ultimes. Le procédé actuel de traitement des combustibles usés, qui a bénéficié de plus de 50 ans d'études et de développements industriels dans plusieurs pays, permet d'extraire, pour les recycler, l'uranium et le plutonium avec des taux de récupération et de purification très élevés.

Le traitement du combustible usé : une filière bien maîtrisée



Areva/Laurence Godart

L'irradiation en réacteur d'un assemblage combustible va former, par réactions nucléaires, une grande variété de **radionucléides** au sein du combustible et dans les éléments métalliques structurant l'assemblage.

Le **combustible** nucléaire dit *usé*, déchargé régulièrement des **réacteurs électronucléaires**, constitue pour l'essentiel le "terme source" des **déchets nucléaires** de haute **activité** et à **vie longue** (**HA-VL**). Le combustible initial – de l'**uranium** (U) le plus souvent – a connu des transformations profondes suite aux réactions nucléaires de **fission** et de **capture** dont il a été le siège lors de son séjour de quelques années dans le réacteur, et c'est un ensemble très "pluriel" qui en est retiré : uranium résiduel certes majoritaire, mais aussi **plutonium** (Pu) et autres **transuraniens**, **produits de fission** (PF) et **produits d'activation** (PA)... (encadré B, *Les déchets du cycle électronucléaire*, p. 20).

Quelle stratégie adopter pour les combustibles usés ?

Les divers constituants du combustible nucléaire usé présentent des propriétés physiques ou chimiques très différenciées. Cependant, deux grandes caractéristiques gouvernent les diverses options de gestion du combustible usé. D'une part, il s'agit pour l'essentiel de noyaux **radioactifs**, avec un très large éventail de **périodes radioactives** (de très courte à très longue). Ils présentent donc un danger potentiel. D'autre part, certains de ces noyaux sont **fissiles**, comme la majeure partie des **isotopes** du Pu, ou **fertiles**, comme la plu-



Areva/Claude Pauquet

Environ 1 200 tonnes de combustibles usés sont déchargées annuellement des **58 réacteurs à eau sous pression (REP)** du parc électronucléaire français, qui produit plus de 400 TWh/an. Ici, la centrale de Civaux (Vienne) qui comporte deux tranches de 1 450 MWe.

le neptunium (Np), l'américium (Am) et le curium (Cm), dénommés **actinides mineurs (AM)** en raison de leur abondance moindre que celle de l'U et du Pu, qualifiés d'**actinides majeurs**.

Les **phénomènes d'activation** de noyaux d'éléments non radioactifs concernent surtout les matériaux de structure, c'est-à-dire les matériaux des tubes, grilles, plaques et embouts qui assurent la cohésion mécanique du combustible nucléaire. Ils conduisent notamment, pour ce qui est du combustible, à la formation de **carbone 14** (^{14}C), de période 5 730 ans, en quantités toutefois très limitées, largement inférieures au gramme par tonne d'uranium initial (g/tUi) dans les conditions usuelles.

Ce sont les **produits issus de la fission** de l'uranium 235 initial mais aussi de celle du Pu formé (isotopes 239 et 241), appelés **produits de fission (PF)**, qui constituent la source essentielle de la radioactivité du combustible usé peu après son déchargement. Plus de 300 **radionucléides**, dont les deux tiers auront toutefois disparu par décroissance radioactive dans les quelques années qui suivent l'irradiation, sont dénombrés. Ces radionucléides sont répartis selon une quarantaine d'éléments de la classification périodique, du germanium (^{32}Ge) au dysprosium (^{66}Dy), avec la présence de **tritium issu de la fission** en trois fragments de ^{235}U (fission ternaire). Ils sont donc caractérisés par



Après déchargement, les combustibles usés sont entreposés dans des piscines de refroidissement pour que leur radioactivité diminue de façon significative. Ici, piscine d'entreposage de l'usine de traitement des combustibles usés d'Areva à La Hague.

famille	UOX 33 GWj/tUi (E ^{235}U : 3,5 %)	UOX 45 GWj/tUi (E ^{235}U : 3,7 %)	UOX 60 GWj/tUi (E ^{235}U : 4,5 %)	MOX 45 GWj/tmli (Ei Pu: 8,65 %)
	quantité (kg/tUi)	quantité (kg/tUi)	quantité (kg/tUi)	quantité (kg/tmli)
gaz rares (Kr, Xe)	5,6	7,7	10,3	7
alcalins (Cs, Rb)	3	4	5,2	4,5
alcalino-terreux (Sr, Ba)	2,4	3,3	4,5	2,6
Y et lanthanides	10,2	13,8	18,3	12,4
zirconium	3,6	4,8	6,3	3,3
chalcogènes (Se, Te)	0,5	0,7	1	0,8
molybdène	3,3	4,5	6	4,1
halogènes (I, Br)	0,2	0,3	0,4	0,4
technétium	0,8	1,1	1,4	1,1
Ru, Rh, Pd	3,9	5,7	7,7	8,3
divers : Ag, Cd, Sn, Sb...	0,1	0,2	0,3	0,6

Tableau 2. Répartition selon la famille chimique des produits de fission de combustibles usés UOX et MOX après trois ans de refroidissement, pour divers taux d'enrichissement et de combustion.

une grande diversité : diversité des propriétés radioactives, avec des nucléides très radioactifs à durée de vie très courte et, à l'opposé, d'autres dont la période radioactive se mesure en millions d'années, et diversité des propriétés chimiques, telle qu'elle apparaît lorsqu'est analysée, pour les combustibles de "référence" des REP du parc français, la répartition des PF générés selon les familles de la classification périodique (tableau 2). Ces PF ainsi que les actinides produits sont, pour la plupart, présents sous la forme d'oxydes inclus dans l'oxyde d'uranium initial, encore très majoritaire. Parmi les exceptions notables, il convient de citer l'iode (I), présent sous la forme d'**iodure de césium**, les gaz rares, tels le krypton (Kr) et le xénon (Xe), ou certains **métaux nobles**, comme le ruthénium (Ru), le rhodium (Rh) et le palladium (Pd), susceptibles de créer des inclusions métalliques au sein de la matrice oxyde.

Le Pu est aujourd'hui **recyclé** sous forme de combustible MOX dans une partie du parc (une vingtaine de réacteurs à présent). L'U résiduel peut être pour sa part **ré-enrichi** (et recyclé en lieu et place de l'uranium minier). L'intensité de ce recyclage dépend du cours de l'uranium naturel, dont la hausse récente devrait conduire à augmenter le taux actuel (de l'ordre du tiers est recyclé en ce moment).

Ce recyclage de l'U et du Pu est à la base de la stratégie de **traitement** aujourd'hui appliquée en France à la majeure partie des combustibles usés (actuellement, les deux

tiers). Pour les quelque 500 kg d'U initialement contenu dans chaque élément combustible et après la séparation de 475 kg d'U résiduel et d'environ 5 kg de Pu, ces **déchets "ultimes"** représentent moins de 20 kg de PF et moins de 500 grammes d'AM. Cette voie de gestion des déchets (ou **cycle fermé**), qui consiste à traiter aujourd'hui les combustibles usés pour séparer matières encore valorisables et déchets ultimes, se distingue des stratégies dans lesquelles le combustible usé est gardé en l'état, que ce soit dans une logique d'attente (choix différé de mode de gestion à long terme) ou dans une logique dite du **cycle ouvert**, où les combustibles usés sont considérés comme des déchets et sont destinés à être **conditionnés** tels quels dans des **conteneurs** et **stockés** en l'état.

Dans le cycle électronucléaire tel qu'il est pratiqué en France, les déchets se répartissent en deux, en fonction de leur origine. Les déchets directement issus du combustible usé sont subdivisés en **actinides mineurs et produits de fission** d'une part, et **déchets de structure**, renfermant les **coques** (tronçons de gaines métalliques ayant contenu le combustible des REP) et les **embouts** (pièces qui constituent les extrémités des assemblages combustibles de ces mêmes REP), d'autre part. Le procédé de traitement des combustibles usés, mis en œuvre pour extraire l'U et le Pu, génère des **déchets technologiques** (déchets d'exploitation comme les pièces de rechange, les gants de protection...) et des **effluents liquides**.

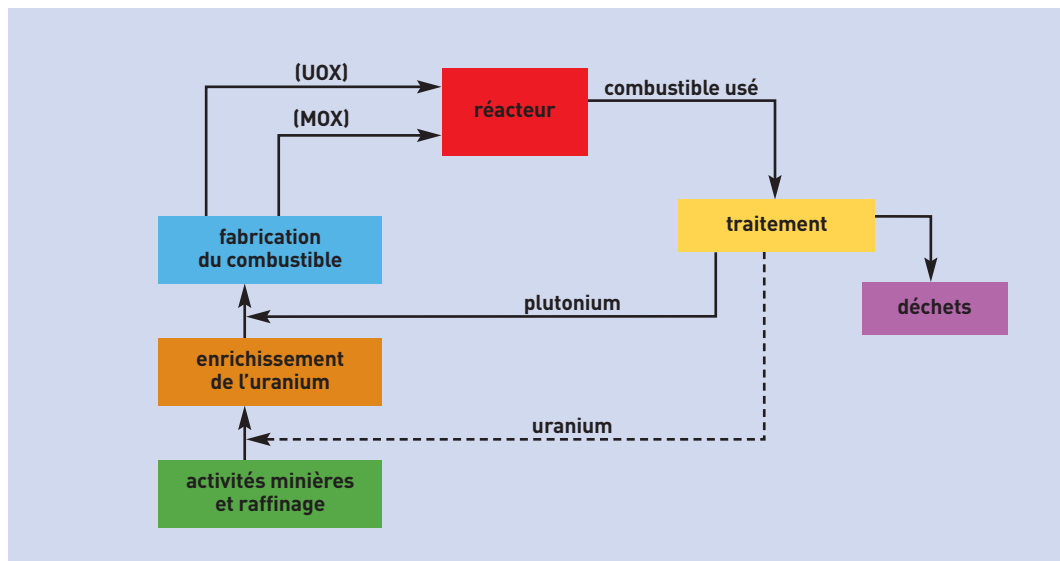
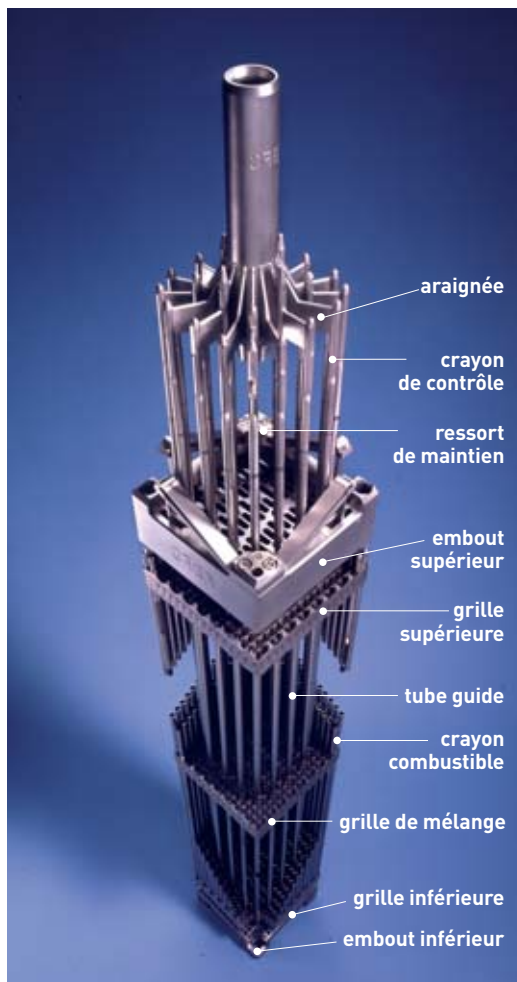


Figure 1. Schéma de principe du traitement-recyclage. Le traitement des combustibles UOX usés permet de récupérer l'uranium et le plutonium pour les recycler, le premier sous forme de combustible UOX après ré-enrichissement, le second sous forme de combustible MOX.

part des isotopes de l'U résiduel. Ils offrent ainsi un intéressant potentiel énergétique, encore valorisable dans les réacteurs nucléaires.

Cette dualité – ressource et nuisance potentielles – du combustible usé donne sens à une stratégie de **conditionnement** et **recyclage**, qui vise à gérer de façon différenciée *les déchets*, en les conditionnant sous des formes durables, et *les éléments valorisables* (majoritaires), en les séparant et en les recyclant. Le recyclage des combustibles nucléaires usés, tel qu'il est aujourd'hui mis

en œuvre en France, procède d'une telle stratégie (figure 1). L'extraction et le recyclage du Pu, sous la forme de combustible MOX, et de l'U dit de **traitement** sont aujourd'hui une réalité industrielle. Les PF et autres transuraniens sont, pour l'essentiel, concentrés et conditionnés sous la forme de blocs de verre dont il est établi qu'ils peuvent constituer un **confinement** efficace pour de très longues durées. Un tel schéma peut être considéré comme l'application au domaine nucléaire du concept plus général de préservation des ressources naturelles et de limitation de l'impact à l'environnement par un recyclage systématique. Il n'est toutefois pas appliqué par tous les pays qui disposent d'un parc électronucléaire. Certains, tels les États-Unis ou la Suède, envisagent plutôt le **stockage** en l'état du combustible usé, au regard de diverses considérations d'ordre économique, technique, politique... Le Japon est, comme la France, résolument engagé dans la voie du recyclage. D'autres pays comme la Chine souhaitent s'y engager. Nombreux enfin, tels l'Espagne ou Taiwan, **entreposent** pour l'instant leurs combustibles usés dans l'attente du choix d'une stratégie pour le long terme. Cependant, une analyse des enjeux à plus long terme montre clairement que les options nucléaires durables sont nucléaires avec recyclage, comme en témoignent les travaux du **Forum International Generation IV** qui s'intéresse aux systèmes nucléaires envisageables au tournant du siècle.



Un assemblage de combustible nucléaire. Long d'environ 4 m pour une section de 9,5 mm, chacun des 264 crayons, maintenus entre eux par des grilles pour composer un assemblage, est constitué d'une gaine de 580 µm d'épaisseur en Zircaloy® (alliage à base de zirconium métal) dans laquelle sont empilées 265 pastilles de combustible.

CEA

Quel est le procédé actuel de traitement des combustibles usés ?

Le procédé mis en œuvre pour traiter les combustibles nucléaires usés est actuellement, de façon quasi-exclusive, le procédé **Purex**. Basé sur l'extraction sélective de l'U et du Pu par un composé organique, le phosphate tributylrique (TBP), il est à présent fort d'un demi-siècle d'études et de développements, puisque le concept a été établi au cours des années 40 aux États-Unis. Il a, dès la décennie suivante, supplanté les diverses voies explorées pour la récupération du Pu dans des matières irradiées et débouché sur des applications industrielles aux États-Unis (Savannah River, 1954), au Royaume-Uni (Windscale, 1964) et en France (Marcoule, usine **UPI**, 1958). Il

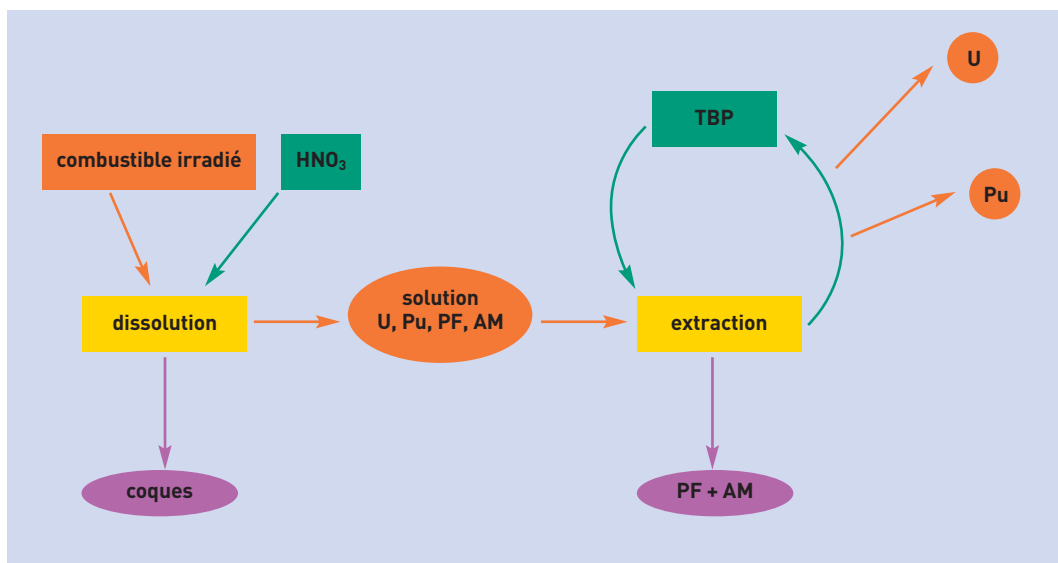


Figure 2. Principe du procédé Purex. Après dissolution dans de l'acide nitrique (HNO₃) du combustible irradié, l'uranium et le plutonium sont extraits sélectivement de la solution à l'aide du TBP.

est mis en œuvre par **Areva** à La Hague (usine d'une capacité nominale apte à servir les réacteurs produisant plus de 400 TWh/an), par la compagnie BNFL au Royaume-Uni (usine THORP – *Thermal Oxide Reprocessing Plant* – implantée sur le site de Sellafield) et dans une unité analogue en cours de démarrage à Rokkasho-Mura au Japon.



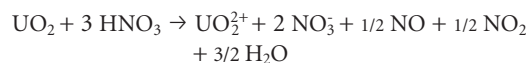
Batterie de mélangeurs-décanteurs, constituée de 12 éléments placés en série, utilisée de 1982 à 1994 pour la séparation des flux d'uranium et de plutonium lors du traitement des combustibles usés.

Le procédé consiste dans une première phase à *mettre en solution* l'ensemble des éléments qui constituent le combustible usé, puis à *extraire sélectivement l'U et le Pu* de cette solution en mettant à profit l'affinité sélective du TBP envers ces éléments (figure 2). Ces opérations, rendues complexes par la diversité des espèces présentes, mais aussi par les conditions particulières de leur mise en œuvre et la rigueur des contraintes à considérer, permettent d'obtenir des taux de séparation très élevés. L'U et le Pu sont récupérés à mieux de 99,8% et ne présentent *in fine* qu'une contamination résiduelle très faible (facteurs d'épuration de l'ordre de 10⁷) en vue de leur recyclage. Les produits d'activation (PA), **actinides mineurs (AM)** et produits de fission (PF), qui constituent le déchet, peuvent alors être conditionnés comme tels avec des procédés adaptés.

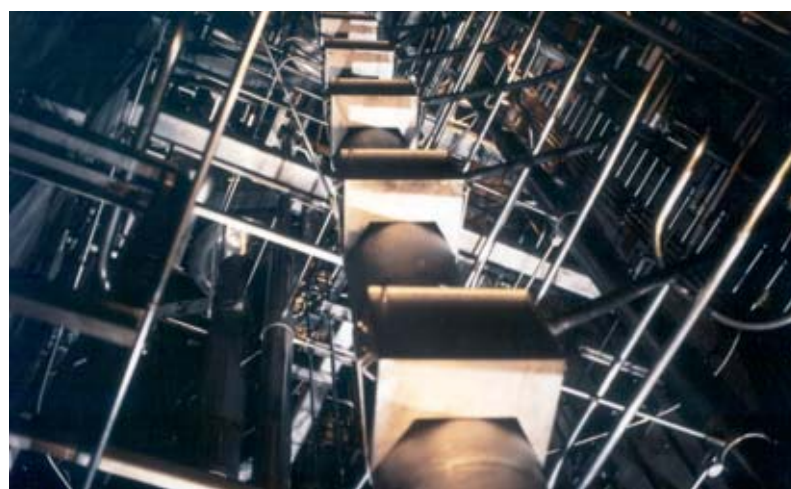
Quelles sont les principales opérations élémentaires ?

Les opérations de traitement sont menées à l'issue d'une phase d'entreposage, aujourd'hui de l'ordre de quelques années en moyenne. Cette étape permet une décroissance significative de la radioactivité du combustible usé et donc aussi une réduction de la puissance thermique dégagée. Ainsi, trois années après le déchargement, les niveaux résiduels de puissance et d'activité s'élèvent, pour une tonne d'uranium initial, respectivement à quelques kW et à environ 10¹³ Bq.

Les opérations "de tête" consistent, après le démantèlement des **assemblages** combustibles, à effectuer successivement le cisailage et la dissolution du combustible usé, puis le traitement des gaz issus de ces étapes. Les crayons, qui contiennent les pastilles d'**uranium enrichi**, sont découpés en tronçons de quelques centimètres de longueur au moyen de cisailles, pour une "mise à nu" du combustible. Celui-ci est ensuite dissous dans une solution aqueuse d'acide nitrique (HNO₃) concentré. L'U et le Pu sont ainsi mis en solution sous forme de nitrates selon les réactions principales suivantes :



Colonne pulsée mise en œuvre dans le procédé Purex à l'usine **UP3** d'Areva à La Hague pour l'extraction de l'uranium et du plutonium.



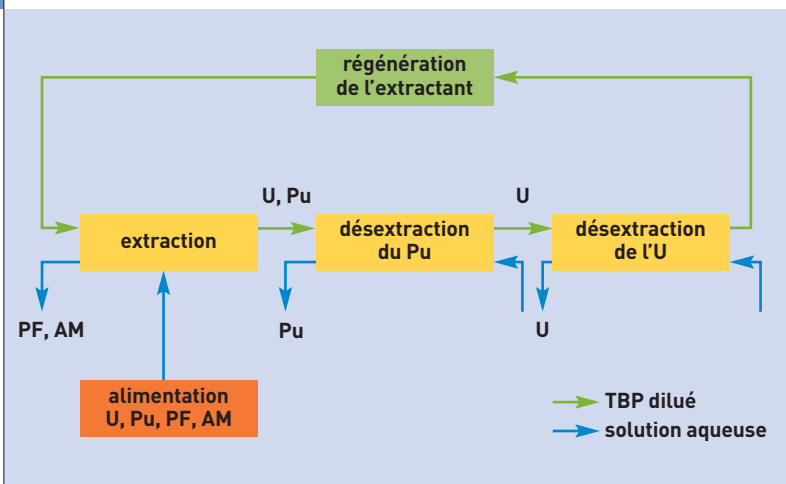


Figure 3. Schéma de principe d'un cycle d'extraction dans le procédé Purex. Les cycles successifs d'extraction et de désextraction permettent, à l'aide du TBP, de récupérer et de purifier l'uranium et le plutonium.

Cette dissolution ne concerne pas les éléments de gainage du combustible et autres pièces de structures (les **coques** et les **embouts**) qui, en raison de leur composition (acier inoxydable, Zircaloy®...), restent en l'état lors de cette opération. Une fraction de certains éléments (platinoïdes, technétium) est par ailleurs réfractaire à la mise en solution, conduisant à la présence dans la solution de dissolution de composés solides (particules **submicroniques** pour la plupart). Ceux-ci seront généralement séparés par des techniques classiques de décantation (gravitaire ou centrifuge) ou de filtration, et le résidu obtenu est, en masse, de l'ordre de quelques pour-mille. Le cisailage puis l'attaque acide du combustible libèrent des PF gazeux : krypton (Kr), xénon (Xe), mais aussi iode⁽¹⁾ (I) formé et **désorbé** suite à la dissolution de l'**iodure de césium**, ou CO₂ avec la présence de **carbone 14**. Ces opérations génèrent également des oxydes d'azote (NO et NO₂), des **aérosols** radioactifs et de la vapeur d'eau

(1) Il est important de noter que les seuls isotopes d'iode à considérer dans les opérations de traitement sont les isotopes 127 (stable) et 129 (de période très longue). L'isotope 131, très radioactif, formé durant l'irradiation et présent en quantités significatives dans le combustible en réacteur, a rapidement disparu au cours de la période d'entreposage, en raison de sa courte période (huit jours).

tritiée. Ce flux gazeux fait l'objet d'un lavage pour arrêter les particules entraînées, permettre la recombinaison des oxydes d'azote en acide nitrique et le reflux du **tritium** (³H). L'iode est piégé sous forme d'iodure dans une solution **basique** ou sur des **sorbants** solides. Quant aux gaz rares, seul le ⁸⁵Kr est radioactif. Le ¹³³Xe, autre **nucléide** très abondant, est un isotope stable.

Le procédé Purex permet, par l'affinité sélective de la molécule de TBP, l'extraction de l'U et du Pu, respectivement **hexavalent** et **tétravalent**, mais sans extraire pour l'essentiel les AM et PF **trivalents**. L'extraction pour les premiers est réversible dans la mesure où il suffit de modifier certaines conditions chimiques pour obtenir soit l'extraction, soit la désextraction (opération inverse) de l'U ou du Pu. Par exemple, la diminution de la teneur en nitrates du milieu ou pour le Pu sa **réduction** à l'**état d'oxydation** + III, qui présente très peu d'affinité pour le TBP, permet d'inverser le phénomène, et par là de ramener en solution aqueuse les espèces préalablement extraites. Le procédé Purex met donc en œuvre des cycles successifs d'extraction et de désextraction de l'U et du Pu (figure 3) pour aboutir à la récupération quantitative et à la purification de ces éléments.

Outre la diversité des espèces impliquées, un autre élément de complexité est la présence tout au long des opérations d'un niveau de radioactivité significatif, voire pour certaines très important. La radiosensibilité de certaines espèces, et en particulier celle de l'extractant, même modérée, doit être prise en compte. Des opérations de séparation complémentaires sont notamment mises en œuvre pour isoler les sous-produits générés et permettre le recyclage des réactifs utilisés. Ce recyclage est, étant donné la stricte nécessité de limiter les déchets secondaires, une des conditions de la viabilité industrielle du procédé.

Que fait-on des matières recyclées et des déchets ?

Le procédé Purex permet donc, par une succession d'opérations mécaniques puis chimiques, d'aboutir aux séparations visées. À la fin du traitement, deux types de produits sont obtenus (figure 4).

Après extraction de l'uranium et du plutonium, les déchets constitués de l'ensemble des actinides mineurs et de la quasi-totalité des produits de fission sont conditionnés par intégration dans une matrice vitreuse. Ici, hall d'entreposage de l'atelier de vitrification R7 de l'usine de traitement des combustibles usés UP2-800 d'Areva à La Hague.



Areva/Philippe Lesage

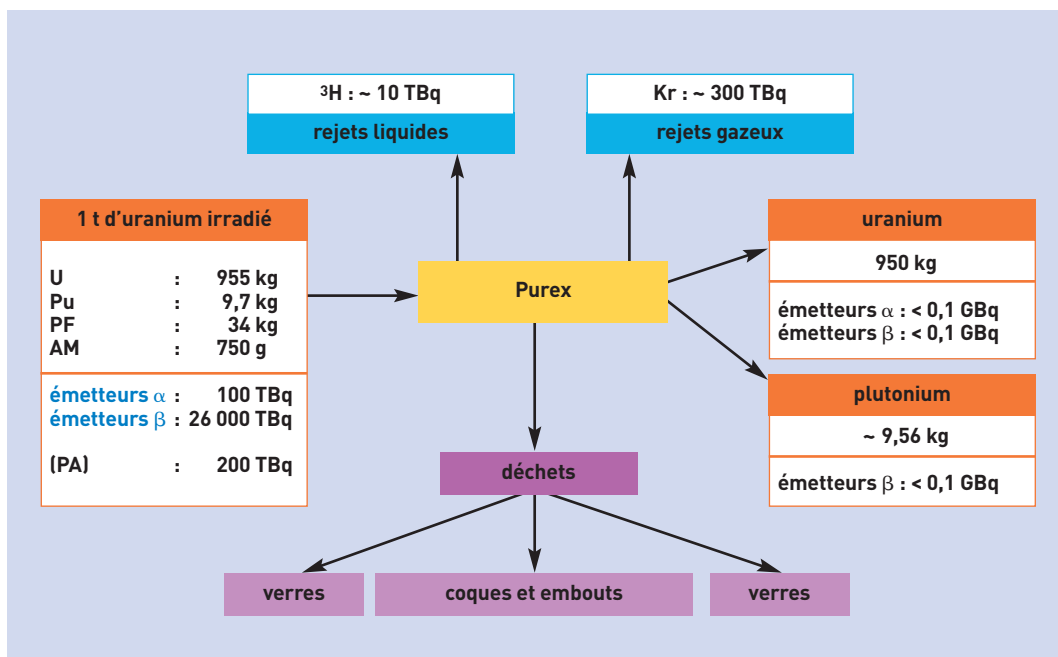


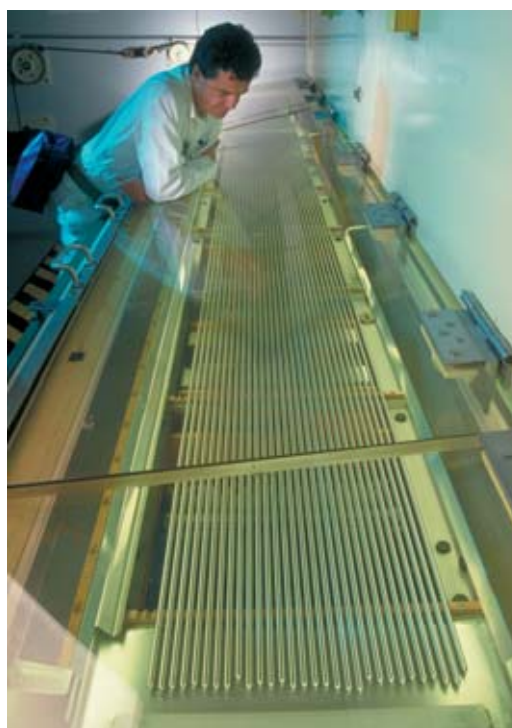
Figure 4. Flux générés lors de la mise en œuvre du procédé Purex (résultats d'exploitation des usines Areva à La Hague).

Les *matières recyclables*, U et Pu, pour lesquelles le degré de pureté est très élevé étant donné la sélectivité très importante du TBP envers les éléments à séparer, seront mises sous une forme adaptée aux spécifications de recyclage (dioxyde de plutonium PuO_2 par exemple, pour la fabrication du combustible MOX).

Les *déchets*, issus des combustibles usés, se présentent sous deux formes. L'ensemble des AM et la quasi-totalité des PF initialement présents dans le combustible usé sont groupés dans une même solution, suite à la réunion des divers flux provenant des cycles successifs d'extraction. À l'heure actuelle, la technique pour cette solution consiste généralement à procéder à une opération de concentration puis à chercher à élaborer un conditionnement particulièrement stable. Dans les trois pays (France, Royaume-Uni et Japon) qui utilisent le procédé Purex à l'échelle industrielle, le procédé de vitrification est mis en œuvre. Les *déchets de structure* renferment l'essentiel des PA formés au cours de l'irradiation et représentent moins de 1 % de la radioactivité du combustible irradié quelques années après déchargement. À côté de ces trois principaux produits, il convient d'ajouter des *déchets technologiques*, peu abondants, associés à la mise en œuvre du procédé. Ces déchets sont conditionnés de façon adaptée et durable par les usines de traitement de La Hague (voir *Des solutions industrielles pour les déchets de haute et moyenne activité à vie longue*, p. 36).

La technique du traitement des combustibles usés est maintenant très bien maîtrisée. Le procédé Purex est la référence industrielle mondiale et procure des performances remarquables, notamment en termes de taux de récupération des matières recyclables et de volume, de qualité de confinement et de radiotoxicité à long terme des *déchets ultimes*. Le recyclage de l'U et du Pu peut permettre d'économiser jusqu'à 30 % de l'uranium initial, avec la technologie actuelle de réacteurs.

L'un des objectifs des recherches menées dans le cadre de la loi du 30 décembre 1991 (voir l'encadré 2 de *Les*



Areva/Philippe Lesage

Crayons MOX. Le plutonium issu du traitement de combustibles UOX usés du parc EDF est recyclé sous forme de combustibles MOX à l'échelle industrielle dans vingt réacteurs du parc.

recherches pour la gestion des déchets radioactifs : un processus de progrès continu, p. 4) est, après les efforts – fructueux – pour la réduction des volumes de déchets issus de ces opérations, d'étudier les voies d'une réduction de leur toxicité à long terme.

> **Bernard Boullis**

Direction de l'énergie nucléaire
CEA Centre de Valrhô-Marcoule

> **Jean-Guy Devezeaux de Lavergne**

Business Unit Traitement
Areva

A Que sont les déchets radioactifs ?

Selon la définition de l'**Agence internationale de l'énergie atomique (AIEA)**, est considérée comme **déchet radioactif** "toute matière pour laquelle aucune utilisation n'est prévue et qui contient des **radio-nucléides** en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles dans des matériaux propres à une utilisation sans contrôle". La loi française introduit pour sa part une distinction, valable pour les déchets nucléaires comme pour les autres, entre déchet et **déchet ultime**. Dans son article L541-1, le Code de l'environnement indique que "est considéré comme un déchet tout résidu d'un processus de production, de transformation ou d'utilisation, toute substance, matériau, produit ou plus généralement tout bien meuble abandonné ou que son détenteur destine à l'abandon" et précise qu'est ultime "un déchet résultant ou non du traitement d'un déchet, qui n'est plus susceptible d'être traité dans les conditions techniques et économiques du moment, notamment par extraction de la part valorisable ou par réduction de son caractère polluant ou dangereux".

Sur le plan international, les experts de l'AIEA et de l'**Agence pour l'énergie nucléaire** de l'OCDE (**AEN**), comme ceux de la **Commission européenne**, constatent que les déchets à vie longue produits dans les pays dotés d'un programme électronucléaire sont aujourd'hui entreposés de façon sûre, tout en reconnaissant le besoin d'une solution définitive de gestion à long terme de ces déchets. À leurs yeux, l'évacuation dans des formations géologiques profondes semble, pour le moment, être le moyen le plus sûr de stocker de manière définitive ce type de déchets.

De quoi sont-ils constitués ? Quels volumes représentent-ils aujourd'hui ?

Les déchets radioactifs sont classés en différentes catégories, suivant leur niveau de radioactivité et la **période** radioactive des radionucléides qu'ils contiennent. Ils sont dits **à vie longue** lorsque leur période dépasse trente ans, **à vie courte** dans le cas contraire. La classification française comporte les catégories suivantes :

– les déchets de **très faible activité (TFA)** ; ils contiennent une quantité très faible de radionucléides, de l'ordre de 10 à 100 Bq/g (**becquerels** par gramme) qui empêche de les considérer comme des déchets conventionnels ;

– les déchets de **faible et moyenne activité à vie courte (FAMA-VC)** ; le niveau de radioactivité de ces déchets se situe en général entre quelques centaines et un million de Bq/g, dont moins de dix mille Bq/g de radionucléides à vie longue. Leur radioactivité devient comparable à la radioactivité naturelle en moins de trois cents ans. Leur production est de l'ordre de 15 000 m³ par an en France ;

– les déchets de **faible activité à vie longue (FA-VL)** ; cette catégorie est constituée des déchets "radifères" provenant de l'extraction de **terres rares** dans des minerais radioactifs et des déchets "graphites" provenant de la première génération de réacteurs ;

– les déchets de **moyenne activité à vie longue (MA-VL)**, très divers, que ce soit par leur origine ou par leur nature, dont le stock global représentait en France 45 000 m³ fin 2004. Principalement issus des structures de **combustibles usés (coques et embouts)** ou de l'exploitation et de la maintenance des installations, ils comprennent notamment des déchets conditionnés lors des opérations de traitement du combustible usé (depuis 2002, les déchets de ce type sont compactés et représentent environ 200 m³ par an), des **déchets technologiques** provenant de l'exploitation ou de la maintenance courante des usines de production ou de traitement du combustible, des réacteurs nucléaires ou encore des centres de recherche (environ 230 m³ par an) ainsi que des boues de traitement d'effluents (moins de 100 m³ par an). La plus grande partie de ces déchets dégagent peu de chaleur mais certains d'entre eux sont susceptibles de relâcher des gaz ;

– les déchets de **haute activité (HA)**, qui contiennent les **produits de fission** et les **actinides mineurs** séparés lors du traitement des combustibles usés (encadré B, p. 20) et incorporés à chaud dans une **matrice** vitreuse. Environ 120 m³ de "verre nucléaire" sont ainsi coulés chaque année. Ces déchets contiennent l'essentiel de la radioactivité (plus de 95 %) et sont, par conséquent, le siège d'un fort dégagement de chaleur qui demeure significatif à l'échelle de plusieurs siècles.

Globalement, les déchets radioactifs conditionnés en France représentent moins de 1 kg par an et par habitant. Ce kilogramme est composé à plus de 90 % de déchets FAMA-VC ne contenant que 5 % de la radioactivité totale ; 9 % de déchets MA-VL, moins de 1 % de déchets HA et pratiquement pas de déchets FA-VL.

Que seront ces déchets demain ?

Depuis 1991, l'**Andra** réalise annuellement un inventaire géographique des déchets présents sur le territoire français. En 2001, les pouvoirs publics lui ont demandé d'approfondir cet "Inventaire national" dans le triple objectif de caractérisation des stocks existants (état de leur conditionnement, traçabilité des traitements), de prospective sur leur production jusqu'en 2020 et d'information du public (voir *Un inventaire qui se projette dans l'avenir*, p. 14). L'Andra a publié cet inventaire national de référence à la fin de l'année 2004. Pour les besoins des recherches correspondant aux orientations définies dans la loi du 30 décembre 1991 (voir *Les recherches pour la gestion des déchets radioactifs : un processus de progrès continu*, p. 4), l'Andra, en collaboration avec les producteurs de déchets, a établi un Modèle d'inventaire de dimensionnement (MID) destiné à estimer les volumes de colis de déchets à prendre en compte dans la conduite des recherches sur l'axe 2 (**stockage**). Ce modèle, qui comporte des prévisions sur la production totale des déchets radioactifs émanant du parc actuel de réacteurs pendant toute leur durée de vie, vise à regrouper les déchets en familles homogènes en termes de caractéristiques et à formuler les hypothèses les plus vraisemblables concernant les modes de conditionnement afin d'en déduire les volumes à prendre en considération pour les études. Enfin, il s'attache à donner une compatibilité devant englober les déchets de manière aussi large que possible. Le MID (qui ne doit pas être confondu avec l'inventaire national qui doit faire foi de manière détaillée des quantités réelles de déchets français) permet ainsi de réduire la variété des familles de colis à un nombre restreint d'objets représentatifs et d'identifier les marges nécessaires pour rendre la conception et l'évaluation de sûreté du stockage aussi robustes que possible vis-à-vis des évolutions potentielles des données.

Pour assurer la cohérence entre les études menées au titre de l'axe 2 et celles menées au titre de l'axe 3 (**conditionnement et entreposage de longue durée**), le CEA a adopté le MID comme donnée d'entrée. Le MID regroupe les colis de déchets par colis-types et calcule le nombre et le volume des colis de déchets HA et MA-VL selon plusieurs scénarios qui considèrent tous que les centrales nucléaires actuelles sont exploitées durant quarante ans et que leur production est stabilisée à 400 TWh par an.

Le tableau 1 donne les nombres et volumes

colis types du MID	symboles	producteurs	catégories	nombre	volume (m ³)
colis de déchets vitrifiés	CO à C2	Cogema	HA	42470	7410
colis de déchets métalliques activés	B1	EDF	MA-VL	2560	470
colis de boues bitumées	B2	CEA, Cogema	MA-VL	105010	36060
colis de déchets technologiques cimentés	B3	CEA, Cogema	MA-VL	32940	27260
colis de coques et embouts cimentés	B4	Cogema	MA-VL	1520	2730
colis de déchets de structure et technologiques compactés	B5	Cogema	MA-VL	39900	7300
colis de déchets de structure et technologiques mis en vrac en conteneur	B6	Cogema	MA-VL	10810	4580
total B				192740	78400
total général				235210	85810

Tableau 1. Quantités (nombre et volume) de colis de déchets prévues en France pour quarante ans de fonctionnement des réacteurs du parc actuel selon le Modèle d'inventaire de dimensionnement (MID) de l'Andra.

de chaque colis-type pour le scénario qui suppose la continuité de la stratégie actuelle en termes de **traitement** de combustibles usés : traitement des 79 200 **assemblages** de combustible **UOX** et entreposage des 5400 assemblages **MOX** déchargés par le parc REP actuel exploité durant quarante ans.

Sous quelles formes se présentent-ils ?

Cinq types de colis génériques (retrouvés dans le MID) sont considérés :

- les **colis de déchets cimentés**, colis de déchets MA-VL qui font appel à des matériaux à base de liant hydraulique comme matrice de conditionnement ou comme matériau de blocage, ou encore comme constituant de conteneur ;
- les **colis de boues bitumées** : colis de déchets de type FA et MA-VL dans lesquels le bitume est utilisé comme matrice de confinement pour les résidus issus du traitement de divers effluents liquides (traitement du combustible, centre de recherche, etc.) de faible et moyenne activité ;
- les **colis standard de déchets compactés (CSD-C)** : colis de type MA-VL issus du

conditionnement par compactage des déchets de structure provenant des assemblages combustibles et des déchets technologiques issus des ateliers de La Hague ;

- les **colis standard de déchets vitrifiés (CSD-V)** : colis de type HA résultant essentiellement de la **vitrification** des solutions très actives issues du traitement des combustibles usés ;

- les **colis de combustibles usés** : colis constitués des assemblages de combustibles nucléaires après leur sortie des réacteurs, et qui ne sont pas considérés en France comme des déchets.

Les seuls colis de déchets à vie longue générés significativement par la production actuelle d'électricité (encadré B) sont les colis de déchets vitrifiés et les colis standard de déchets compactés, les autres colis ayant pour leur plus grande part déjà été produits et contenant une faible part de la radioactivité totale.

Que fait-on actuellement des déchets ? Qu'en fera-t-on à long terme ?

L'objectif de la gestion à long terme des déchets radioactifs est de protéger l'homme

et son environnement contre les effets des matières les constituant et notamment contre les risques radiologiques. Il faut donc éviter toute émission ou dissémination de matières radioactives en isolant durablement les déchets de l'environnement. Cette gestion obéit aux principes suivants : produire le moins possible de déchets ; réduire autant que possible leur dangerosité ; prendre en compte les spécificités de chaque catégorie de déchets et choisir des dispositions qui minimisent les charges (de surveillance, de maintenance) pour les générations futures. Comme pour l'ensemble des activités nucléaires soumises au contrôle de l'**Autorité de sûreté nucléaire**, des règles fondamentales de sûreté (RFS) ont été édictées pour la gestion des déchets radioactifs : tri, réduction de volume, pouvoir de confinement des colis, mode d'élaboration, concentration en radionucléides. La RFS III-2-f, notamment, définit les conditions à remplir pour la conception et la démonstration de sûreté d'un stockage souterrain, et constitue donc un guide de base pour les études sur le stockage. Des solutions industrielles (voir *Des solutions industrielles pour tous les déchets de faible activité*, p.32) existent aujourd'hui pour près de 85 % (en volume) des déchets, les déchets TFA et les déchets FMA-VC. Une solution pour les déchets FA-VL est en cours d'étude par l'Andra à la demande des producteurs de déchets. Les déchets MA-VL et HA, qui contiennent des radionucléides de période radioactive très longue (parfois supérieure à plusieurs centaines de milliers d'années), sont aujourd'hui conservés dans des installations d'entreposage placées sous le contrôle de l'Autorité de sûreté nucléaire. C'est leur devenir à long terme, au-delà de cette période d'entreposage, qui est l'objet de la loi du 30 décembre 1991 (tableau 2). Pour l'ensemble de ces déchets, l'Autorité de sûreté nucléaire rédige un Plan national de gestion des déchets radioactifs afin de définir pour chacun d'entre eux une filière de gestion.

	vie courte période < 30 ans pour les principaux éléments	vie longue période > 30 ans
très faible activité (TFA)	stockage dédié de Morvilliers (ouvert depuis 2003) Capacité : 650 000 m ³	
faible activité (FA)	centre de l'Aube (ouvert depuis 1992) capacité : 1 million de m ³	stockage dédié à l'étude pour les déchets radifères (volume : 100 000 m ³) et graphites (volume : 14 000 m ³)
moyenne activité (MA)		volume estimé MID ⁽¹⁾ : 78 000 m ³
haute activité (HA)	volume estimé MID ⁽¹⁾ : 7 400 m ³	

Tableau 2. Modes de gestion à long terme actuellement pratiqués ou envisagés en France selon les catégories de déchets radioactifs. La zone orangée indique celles concernées par les recherches couvertes par la loi du 30 décembre 1991.

(1) Selon le Modèle d'inventaire de dimensionnement (MID).

B Les déchets du cycle électronucléaire

L'essentiel des **déchets radioactifs** de haute **activité (HA)** provient, en France, de l'irradiation dans les réacteurs électronucléaires de **combustibles** constitués de pastilles d'oxyde d'**uranium enrichi UOX** ou aussi, pour partie, d'oxyde mixte d'**uranium** et de **plutonium MOX**. De l'ordre de 1 200 tonnes de **combustibles usés** sont déchargées annuellement du parc des **58 réacteurs à eau sous pression (REP)** d'**EDF**, qui fournit plus de 400 **TWh** par an, soit plus des trois quarts de la consommation électrique nationale.

La composition du combustible a évolué au cours de l'irradiation en réacteur. Peu après son déchargement, le combustible est constitué en moyenne⁽¹⁾ d'environ 95 % d'uranium résiduel, 1 % de plutonium et autres **transuraniens**, à hauteur de 0,1 %, et 4 % de produits issus de la **fission**. Ces derniers présentent une radioactivité très importante, au sens où elle nécessite des précautions de gestion mobilisant des moyens industriels puissants, de l'ordre de 10^{17} **Bq** par tonne d'uranium initial (tUi), figure 1.

L'**uranium** contenu dans le combustible usé présente une composition évidemment différente de celle du combustible initial. Plus l'irradiation aura été importante, plus la consommation de noyaux **fissiles** aura été forte, et plus l'**uranium** aura donc été **appauvri en isotope 235** (^{235}U) fissile. Les conditions d'irradiation généralement mises en œuvre dans les réacteurs du parc français, avec un temps de

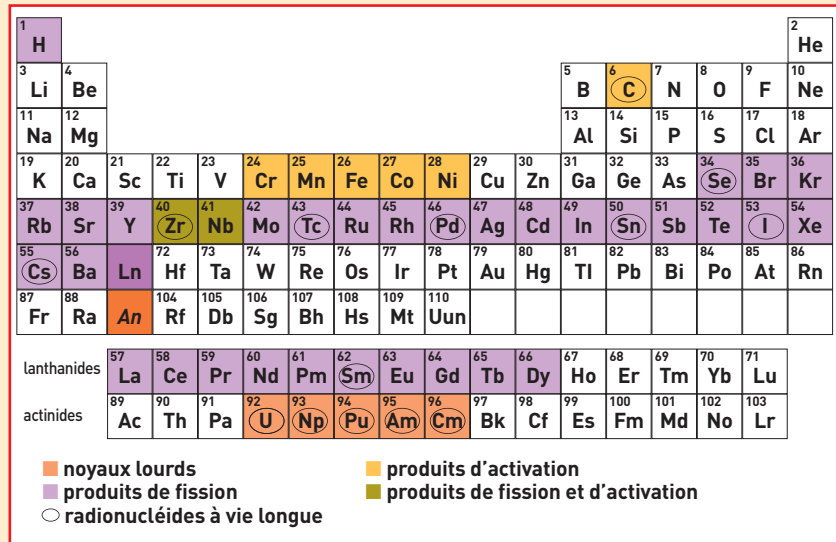


Figure 1. Principaux éléments présents dans le combustible nucléaire usé.

séjour moyen du combustible en réacteur de l'ordre de quatre années pour un **taux de combustion** proche de **50 GWj/t**, conduisent à ramener la teneur finale en ^{235}U à une valeur assez proche de celle de l'**uranium naturel** (moins de 1 %), ce qui induit que son potentiel énergétique est très voisin de celui de ce dernier. En effet, même si cet uranium reste légèrement plus riche en isotope fissile que l'uranium naturel, pour lequel la teneur en ^{235}U est de 0,7 %, il faut également mentionner la présence, en quantités plus faibles mais significatives, d'autres isotopes pénalisants au plan

neutronique ou radiologique (^{232}U , ^{236}U) absents du combustible initial (tableau 1). Le **plutonium** présent dans le combustible usé provient des processus de **captures neutroniques** et de **désintégrations** successives. Une partie du Pu disparaît par fission : ainsi, de l'ordre du tiers de l'énergie produite provient du "recyclage *in situ*" de cet élément. Ces phénomènes donnent également lieu à la formation de **noyaux lourds** présentant eux-mêmes, ou par l'intermédiaire de leurs produits de filiation, une **période radioactive** longue. Ce sont les éléments de la famille des **actinides**, et parmi eux essentiellement le plutonium (^{238}Pu à ^{242}Pu , les isotopes impairs formés ayant pour partie eux aussi subi des fissions durant l'irradiation), mais également

(1) Il convient de considérer ces valeurs comme indicatives. Elles permettent de situer les ordres de grandeur pour les combustibles à oxyde d'uranium enrichi issus de la principale filière nucléaire française actuelle, mais dépendent de divers paramètres tels que la composition du combustible initial et les conditions d'irradiation, notamment sa durée.

élément	isotope	période (années)	UOX 33 GWj/tUi (E ^{235}U : 3,5 %)		UOX 45 GWj/tUi (E ^{235}U : 3,7 %)		UOX 60 GWj/tUi (E ^{235}U : 4,5 %)		MOX 45 GWj/tmli (Ei Pu: 8,65 %)	
			teneur isotopique (%)	quantité (g/tUi)	teneur isotopique (%)	quantité (g/tUi)	teneur isotopique (%)	quantité (g/tUi)	teneur isotopique (%)	quantité (g/tmli)
U	234	246 000	0,02	222	0,02	206	0,02	229	0,02	112
	235	$7,04 \cdot 10^8$	1,05	10 300	0,74	6 870	0,62	5 870	0,13	1 070
	236	$2,34 \cdot 10^7$	0,43	4 224	0,54	4 950	0,66	6 240	0,05	255
	238	$4,47 \cdot 10^9$	98,4	941 000	98,7	929 000	98,7	911 000	99,8	886 000
Pu	238	87,7	1,8	166	2,9	334	4,5	590	3,9	2 390
	239	24 100	58,3	5 680	52,1	5 900	48,9	6 360	37,7	23 100
	240	6 560	22,7	2 214	24,3	2 760	24,5	3 180	32	19 600
	241	14,4	12,2	1 187	12,9	1 460	12,6	1 640	14,5	8 920
	242	$3,75 \cdot 10^5$	5,0	490	7,8	884	9,5	1 230	11,9	7 300

Tableau 1. Inventaire en actinides majeurs de combustibles usés UOX et MOX après trois ans de refroidissement, pour divers taux d'enrichissement et de combustion. Le taux de combustion et la quantité sont exprimés par tonne d'uranium initial (tUi) pour les UOX et par tonne de métal lourd initial (tmli) pour le MOX.

le neptunium (Np), l'américium (Am) et le curium (Cm), dénommés **actinides mineurs (AM)** en raison de leur abondance moindre que celle de l'U et du Pu, qualifiés d'**actinides majeurs**.

Les **phénomènes d'activation** de noyaux d'éléments non radioactifs concernent surtout les matériaux de structure, c'est-à-dire les matériaux des tubes, grilles, plaques et embouts qui assurent la cohésion mécanique du combustible nucléaire. Ils conduisent notamment, pour ce qui est du combustible, à la formation de **carbone 14** (^{14}C), de période 5 730 ans, en quantités toutefois très limitées, largement inférieures au gramme par tonne d'uranium initial (g/tUi) dans les conditions usuelles.

Ce sont les **produits issus de la fission** de l'uranium 235 initial mais aussi de celle du Pu formé (isotopes 239 et 241), appelés **produits de fission (PF)**, qui constituent la source essentielle de la radioactivité du combustible utilisé peu après son déchargement. Plus de 300 **radionucléides**, dont les deux tiers auront toutefois disparu par décroissance radioactive dans les quelques années qui suivent l'irradiation, sont dénombrés. Ces radionucléides sont répartis selon une quarantaine d'éléments de la classification périodique, du germanium (^{32}Ge) au dysprosium (^{64}Dy), avec la présence de **tritium issu de la fission** en trois fragments de ^{235}U (fission ternaire). Ils sont donc caractérisés par



Après déchargement, les combustibles usés sont entreposés dans des piscines de refroidissement pour que leur radioactivité diminue de façon significative. Ici, piscine d'entreposage de l'usine de traitement des combustibles usés d'Areva à La Hague.

famille	UOX 33 GWj/tUi (E ^{235}U : 3,5 %)	UOX 45 GWj/tUi (E ^{235}U : 3,7 %)	UOX 60 GWj/tUi (E ^{235}U : 4,5 %)	MOX 45 GWj/tmli (Ei Pu : 8,65 %)
	quantité (kg/tUi)	quantité (kg/tUi)	quantité (kg/tUi)	quantité (kg/tmli)
gaz rares (Kr, Xe)	5,6	7,7	10,3	7
alcalins (Cs, Rb)	3	4	5,2	4,5
alcalino-terreux (Sr, Ba)	2,4	3,3	4,5	2,6
Y et lanthanides	10,2	13,8	18,3	12,4
zirconium	3,6	4,8	6,3	3,3
chalcogènes (Se, Te)	0,5	0,7	1	0,8
molybdène	3,3	4,5	6	4,1
halogènes (I, Br)	0,2	0,3	0,4	0,4
technétium	0,8	1,1	1,4	1,1
Ru, Rh, Pd	3,9	5,7	7,7	8,3
divers : Ag, Cd, Sn, Sb...	0,1	0,2	0,3	0,6

Tableau 2. Répartition selon la famille chimique des produits de fission de combustibles usés UOX et MOX après trois ans de refroidissement, pour divers taux d'enrichissement et de combustion.

une grande diversité : diversité des propriétés radioactives, avec des nucléides très radioactifs à durée de vie très courte et, à l'opposé, d'autres dont la période radioactive se mesure en millions d'années, et diversité des propriétés chimiques, telle qu'elle apparaît lorsqu'est analysée, pour les combustibles de "référence" des REP du parc français, la répartition des PF générés selon les familles de la classification périodique (tableau 2). Ces PF ainsi que les actinides produits sont, pour la plupart, présents sous la forme d'oxydes inclus dans l'oxyde d'uranium initial, encore très majoritaire. Parmi les exceptions notables, il convient de citer l'iode (I), présent sous la forme d'**iodure de césium**, les gaz rares, tels le krypton (Kr) et le xénon (Xe), ou certains **métaux nobles**, comme le ruthénium (Ru), le rhodium (Rh) et le palladium (Pd), susceptibles de créer des inclusions métalliques au sein de la matrice oxyde.

Le Pu est aujourd'hui **recyclé** sous forme de combustible MOX dans une partie du parc (une vingtaine de réacteurs à présent). L'U résiduel peut être pour sa part ré-**enrichi** (et recyclé en lieu et place de l'uranium minier). L'intensité de ce recyclage dépend du cours de l'uranium naturel, dont la hausse récente devrait conduire à augmenter le taux actuel (de l'ordre du tiers est recyclé en ce moment).

Ce recyclage de l'U et du Pu est à la base de la stratégie de **traitement** aujourd'hui appliquée en France à la majeure partie des combustibles usés (actuellement, les deux

tiers). Pour les quelque 500 kg d'U initialement contenu dans chaque élément combustible et après la séparation de 475 kg d'U résiduel et d'environ 5 kg de Pu, ces **déchets "ultimes"** représentent moins de 20 kg de PF et moins de 500 grammes d'AM. Cette voie de gestion des déchets (ou **cycle fermé**), qui consiste à traiter aujourd'hui les combustibles usés pour séparer matières encore valorisables et déchets ultimes, se distingue des stratégies dans lesquelles le combustible usé est gardé en l'état, que ce soit dans une logique d'attente (choix différé de mode de gestion à long terme) ou dans une logique dite du **cycle ouvert**, où les combustibles usés sont considérés comme des déchets et sont destinés à être **conditionnés** tels quels dans des **conteneurs et stockés** en l'état.

Dans le cycle électronucléaire tel qu'il est pratiqué en France, les déchets se répartissent en deux, en fonction de leur origine. Les déchets directement issus du combustible usé sont subdivisés en **actinides mineurs et produits de fission** d'une part, et **déchets de structure**, renfermant les **coques** (tranches de gaines métalliques ayant contenu le combustible des REP) et les **embouts** (pièces qui constituent les extrémités des assemblages combustibles de ces mêmes REP), d'autre part. Le procédé de traitement des combustibles usés, mis en œuvre pour extraire l'U et le Pu, génère des **déchets technologiques** (déchets d'exploitation comme les pièces de rechange, les gants de protection...) et des **effluents liquides**.

C Qu'y a-t-il entre le déchet et l'environnement ?

Les **déchets radioactifs** solides ou liquides bruts font l'objet, après caractérisation (détermination de leur composition chimique, radiologique et de leurs propriétés physico-chimiques) d'un **conditionnement**, terme qui recouvre l'ensemble des opérations consistant à mettre ces déchets (ou des **assemblages combustibles usés**) sous une forme convenant à leur transport, leur **entreposage** et leur **stockage** (voir l'encadré D, p. 50). L'objectif est de mettre les déchets radioactifs sous une forme solide physiquement et chimiquement stable et d'assurer le **confinement** efficace et durable des **radionucléides** qu'ils contiennent.

Pour cela, deux opérations complémentaires sont mises en œuvre. En règle générale, un matériau immobilise, soit par enrobage ou incorporation homogène (déchets liquides, déchets pulvérulents, boues), soit par blocage (déchets solides) des déchets au sein d'une **matrice** dont la nature et les performances dépendent du type de déchets (ciment pour les boues, les concentrats d'évaporation et les cendres d'incinération, bitume pour l'**enrobage** de boues et de concentrats d'évaporation résultant du traitement des effluents liquides ou matrice vitreuse liant intimement les nucléides au réseau vitreux pour les solutions de **produits de fission** et d'**ac-**



A. Gomin/CEA

Coupe d'un puits d'entreposage expérimental d'un conteneur de combustible usé (le bas de l'assemblage est visible en haut à droite) dans la galerie Galatée du Cecer (Centre d'expertise sur le conditionnement et l'entreposage des matières radioactives) au centre CEA de Marcoule, mettant en évidence la juxtaposition d'enveloppes.

tinides mineurs). Cette matrice contribue à la fonction de confinement. Les déchets ainsi conditionnés sont placés dans un **conteneur** étanche (cylindrique ou parallélépipédique) formé d'une ou plusieurs enveloppes. L'ensemble est appelé **colis**. Il est également possible que les déchets soient compactés et bloqués mécaniquement dans une **enveloppe**, l'ensemble constituant le colis.

Dans l'état où ils sont issus de la produc-

tion industrielle, ils sont qualifiés de **colis primaires**, le conteneur primaire étant l'enveloppe, en ciment ou métallique, dans laquelle les déchets conditionnés sont finalement placés afin de permettre leur manutention. Le conteneur peut jouer le rôle de première **barrière** de confinement, la répartition des fonctions entre la matrice et le conteneur est déterminée selon la nature des déchets. C'est ainsi que l'ensemble formé par le regroupement, dans

C (suite)

un conteneur, de plusieurs colis primaires **MA-VL**, peut assurer le confinement de la radioactivité de ce type de déchets. Si une phase d'**entreposage de longue durée** s'avère nécessaire, au-delà de la phase d'entreposage industriel chez les producteurs, les colis primaires de déchets doivent pouvoir être éventuellement repris : il faut donc disposer d'un conteneur primaire durable dans de telles conditions pour tous les types de déchets.

Dans ce cas et pour les assemblages de combustibles usés dont on pourrait un jour décider qu'ils soient destinés à un tel entreposage de longue durée, voire au stockage, il n'est pas possible de démontrer, sur des durées séculaires, l'intégrité des gaines contenant le combustible et qui constituent la première barrière de confinement en phase d'utilisation en réacteur. Leur mise en **étui** individuel et étanche est donc envisagée, cet étui en acier inoxydable étant compatible avec les différentes étapes de gestion ultérieures imaginables : traitement, nouvel entreposage ou stockage. Le placement en conteneur étanche de ces étuis assure une deuxième barrière de confinement, comme c'est le cas pour les colis de déchets de **haute activité**.

En conditions de stockage ou d'entreposage, les colis de déchets seront soumis à diverses agressions internes et exter-

nes. Tout d'abord, la décroissance **radioactive** des radionucléides se poursuit dans le colis (phénomène d'**auto-irradiation**). L'émission des rayonnements s'accompagne d'une production de chaleur. Par exemple, dans les verres de confinement des déchets de haute activité, les principales sources d'irradiation résultent des **désintégrations alpha** issues des actinides mineurs, des **désintégrations bêta** provenant des produits de fission et des transitions gamma. Les désintégrations alpha caractérisées par la création d'un **noyau de recul** et l'émission d'une particule qui, en fin de parcours, génère un atome d'hélium, provoquent la majorité des déplacements atomiques. En particulier, les noyaux de recul, qui déposent une énergie importante sur une distance courte, conduisent à des déplacements atomiques en cascade, rompant ainsi un grand nombre de liaisons chimiques. C'est donc la principale cause de dommage potentiel à long terme. Les matrices doivent alors être stables thermiquement et résistantes aux dégâts d'irradiation.

Les colis de déchets stockés seront également soumis à l'action de l'eau (**lixiviation**). Les enveloppes des conteneurs peuvent présenter une certaine résistance aux phénomènes de corrosion (les **surconteneurs** des verres peuvent ainsi retarder

de quelque 4 000 ans l'arrivée de l'eau) et les matrices de confinement faire preuve d'une durabilité chimique élevée.

Entre les conteneurs et la barrière ultime que constitue, dans une installation de stockage profond de déchets radioactifs, le milieu géologique lui-même, peuvent de plus être interposées, outre un éventuel surconteneur, d'autres barrières dites **barrières ouvragées** pour le remplissage et le scellement. Inutiles dans les formations argileuses pour le remplissage, elles seraient capables dans d'autres milieux (granite) de ralentir encore tout flux de radionucléides vers la **géosphère**, malgré une dégradation des barrières précédentes.



Démonstrateurs technologiques de colis MA-VL pour boues bitumées.

D De l'entreposage au stockage

La raison d'être de l'**entreposage** et du **stockage** des déchets nucléaires est d'assurer leur confinement à long terme de la **radioactivité**, c'est-à-dire de maintenir les **radionucléides** à l'intérieur d'un espace déterminé, à l'écart de l'homme et de l'environnement, aussi longtemps que nécessaire, de telle sorte que l'éventuel retour dans la **biosphère** d'infimes quantités de radionucléides ne puisse avoir d'impact sanitaire ou environnemental inacceptable. Selon les termes de la Convention commune sur la sûreté de la gestion du **combustible** usé et sur la sûreté de la gestion des déchets radioactifs signée le 5 septembre 1997, l'entreposage "s'entend de la détention de combustible usé ou de déchets radioactifs dans une installation qui en assure le confinement, dans l'intention de les récupérer". Il est donc, par définition, temporaire, représentant une solution d'attente, même si celle-ci peut être de très longue durée (quelques dizaines à quelques centaines d'années), alors qu'un stockage peut être définitif.

Pratiqué depuis les débuts du nucléaire, l'entreposage industriel met les combustibles usés en attente de traitement et les déchets conditionnés de **haute activité (HA)** ou de **moyenne activité à vie longue (MA-VL)** en condition sûre, en

attente d'un mode de gestion à long terme de ces déchets. La reprise des colis entreposés est prévue à l'issue d'une période de durée limitée (années ou dizaines d'années).



Concept étudié par le CEA de conteneur commun pour l'entreposage de longue durée et le stockage de déchets de moyenne activité à vie longue.

L'**entreposage de longue durée (ELD)** se conçoit notamment dans le cas d'une mise en œuvre différée dans le temps du stockage ou des réacteurs devant effectuer le **recyclage/transmutation** ou simplement pour tirer profit de la

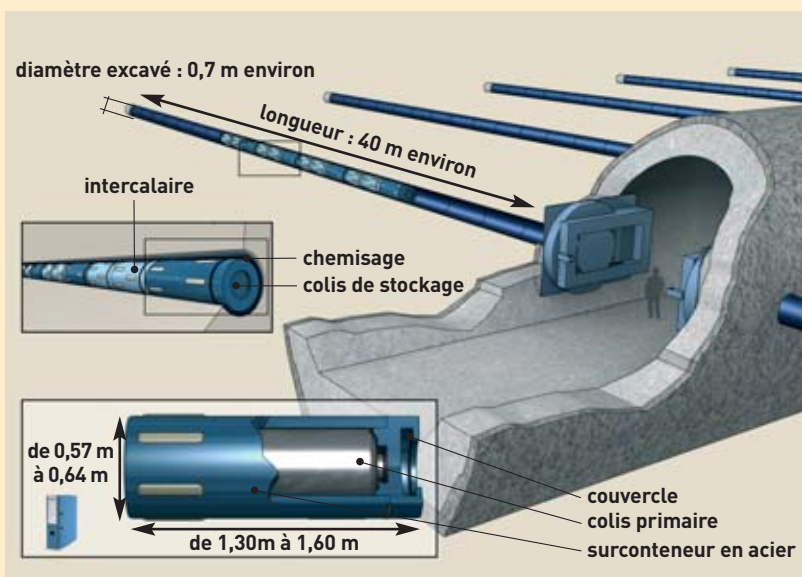
décroissance naturelle de la radioactivité (et donc de l'émission de chaleur des déchets de haute activité) avant une mise en **stockage géologique**. La longue durée s'entend sur des durées pouvant aller

jusqu'à trois cents ans. L'entrepôt de longue durée peut se trouver en **surface** ou en **subsurface**.

Dans le premier cas, il sera, par exemple, protégé par une structure en béton renforcée. Dans le second, il sera situé à une profondeur de quelques dizaines de mètres, protégé par un milieu naturel (par exemple, situé à flanc de colline) et sa roche d'accueil. Quelle que soit la stratégie de gestion choisie, il sera nécessaire de protéger la biosphère des déchets résiduels ultimes. La nature des radioéléments que ces derniers contiennent nécessite une solution capable d'assurer leur confinement durant plusieurs dizaines de milliers d'années pour les déchets à vie longue, voire plus. À ces échelles de temps, la stabilité sociétale est une incertitude majeure à prendre en compte. C'est pourquoi le stockage en couches

géologiques profondes (typiquement 500 m) constitue une solution de référence, dans la mesure où elle permet intrinsèquement la mise en œuvre d'une solution technique plus passive, s'accommodant sans risque accru d'un manque de surveillance et permettant ainsi de palier une éventuelle perte de mémoire de la société. Le milieu géologique d'un tel stockage constitue donc une barrière supplémentaire tout à fait essentielle qui n'existe pas dans le cas de l'entreposage.

Un stockage peut être conçu pour être **réversible** sur une certaine période. Le concept de réversibilité exige de garantir la possibilité, pour diverses raisons, d'accéder aux **colis**, voire de les retirer de l'installation, et ce, pendant un certain temps ou de choisir la fermeture définitive de l'installation de stockage. La réversibilité peut se concevoir comme une suite d'étapes successives présentant des "niveaux de réversibilité" décroissants. Schématiquement, chaque étape consiste à effectuer une opération technique supplémentaire vers la fermeture finale qui rendra la reprise des colis plus difficile qu'à l'étape précédente, en fonction de critères bien définis.



Concept de stockage, conçu par l'Andra, de colis standard de déchets vitrifiés dans des galeries horizontales illustrant en particulier les différentes enveloppes des colis et certaines caractéristiques liées à la réversibilité éventuelle du stockage.

E Qu'est-ce que la transmutation ?

La **transmutation** est la transformation d'un noyau en un autre par une réaction nucléaire induite par des particules avec lesquelles on le bombarde. Appliquée au traitement des déchets nucléaires, elle consiste à utiliser ce type de réactions pour transformer des **isotopes radioactifs à vie longue** en isotopes à vie nettement plus courte ou même stables, en vue de réduire l'**inventaire radiotoxique** à long terme. Il est en théorie possible d'utiliser comme projectiles des **photons**, des **protons** ou des **neutrons**. Dans le premier cas, il s'agit d'obtenir par *Bremsstrahlung*⁽¹⁾ des photons qui peuvent donner lieu à des réactions $[\gamma, xn]$ en bombardant une cible avec un faisceau d'électrons fournis par un accélérateur. Sous l'effet du rayonnement gamma incident, x neutrons sont éjectés du noyau. Appliquées à des corps trop riches en neutrons et de ce fait instables comme certains **produits de fission** (strontium 90, césium 137...), ces réactions aboutissent en général à des corps stables. Mais compte tenu de leur rendement très faible et du très haut niveau de courant d'électrons nécessaire, cette voie est jugée non viable. Dans la deuxième formule, l'interaction proton-noyau induit une réaction complexe, appelée **spallation**, qui conduit à la fragmentation du noyau et à la libération d'un certain nombre de particules dont des

neutrons de haute énergie. La transmutation par interaction *directe* des protons n'est pas économiquement rentable, car elle nécessite pour surmonter la barrière coulombienne⁽²⁾ des protons de très haute énergie (1 à 2 **GeV**) dont l'énergie de production est supérieure à celle récupérée lors du processus qui a conduit à la génération du déchet. En revanche, la transmutation *indirecte*, en utilisant les neutrons de haute énergie (produits au nombre d'une trentaine environ, suivant la nature de la cible et l'énergie du proton incident) permet d'améliorer très sensiblement les performances. C'est cette voie qui est à la base des concepts des **réacteurs dits hybrides** couplant un cœur **sous-critique** et un accélérateur de protons de haute intensité (encadré F, *Qu'est-ce qu'un ADS ?*, p. 103). Troisième particule utilisable, donc, le neutron. De par l'absence de charge électrique, c'est de loin la particule qui satisfait au mieux les critères recherchés. Il est "naturellement" disponible en grande quantité dans les réacteurs nucléaires où il est utilisé pour générer des réactions de **fission** et produire ainsi de l'énergie et où d'ailleurs il induit en permanence des transmutations, la plupart non recherchées (figure). La meilleure voie de **recyclage** des déchets serait donc de les réinjecter dans l'installation qui peu ou prou les a créés...

Lorsqu'un neutron entre en collision avec un noyau, il peut rebondir sur le noyau ou bien pénétrer dans celui-ci. Dans ce second cas, le noyau, en absorbant le neutron, acquiert un excès d'énergie qu'il va libérer de différentes manières :

- en éjectant des particules (un neutron par exemple) et en émettant éventuellement un rayonnement ;
- en émettant seulement un rayonnement ; on parle dans ce cas de **réaction de capture** puisque le neutron reste captif du noyau ;
- en se scindant en deux noyaux de taille plus ou moins égale et en émettant simultanément deux à trois neutrons ; on parle ici de **réaction de fission** durant laquelle une importante quantité d'énergie est délivrée.

La transmutation d'un **radionucléide** peut se réaliser soit par capture d'un neutron, soit par fission. Les **actinides mineurs**, noyaux de grande taille (**noyaux lourds**), peuvent subir à la fois des réactions de fission et de capture. Par fission, ils sont transformés en radionucléides majoritairement à vie courte, voire en noyaux stables. Les noyaux provenant d'une fission (appelés produits de fission), de plus petite taille, ne sont sujets qu'aux réactions de capture et subissent, en moyenne, quatre décroissances radioactives, de **période** n'excédant pas généralement quelques années, avant de devenir stables. Par capture, ils sont transformés en d'autres radionucléides, souvent à vie longue, qui se transforment eux-mêmes par **désintégration** naturelle, mais aussi par capture et fission.

(1) En allemand : rayonnement de freinage. Rayonnement photonique de haute énergie généré par des particules (électrons) accélérées (ou décélérées) qui décrivent une trajectoire circulaire en émettant tangentiellement des photons de freinage dont les plus énergétiques sont préférentiellement émis dans l'axe du faisceau d'électrons.

(2) Force de répulsion qui s'oppose au rapprochement de charges électriques de même signe.

E (suite)

La probabilité qu'un neutron a de provoquer une réaction de capture ou de fission est évaluée à partir respectivement de la **section efficace** de capture et de la section efficace de fission. Les sections efficaces sont fonction de la nature du noyau (elle varie énormément d'un noyau à l'autre et, plus encore, d'un isotope à l'autre pour un même noyau) et de l'énergie du neutron.

Pour un neutron d'énergie inférieure à 1 eV (domaine des **neutrons lents** ou **thermiques**), la section efficace de capture est

prédominante ; la capture est environ cent fois plus probable que la fission. C'est également le cas pour une énergie allant de 1 eV à 1 MeV (domaine des **neutrons épithermiques** où captures ou fissions se produisent à des niveaux précis d'énergies). Au-delà de 1 MeV (domaine des neutrons rapides), les fissions deviennent plus probables que les captures.

Deux filières de réacteurs sont possibles selon le domaine d'énergie des neutrons dans lequel la majorité des réactions de fission se produit : les réacteurs à neutrons

thermiques et les réacteurs à **neutrons rapides**. La filière des réacteurs à neutrons thermiques est celle qui équipe la France avec près de soixante réacteurs à eau sous pression. Dans un réacteur à neutrons thermiques, les neutrons produits par fission sont ralentis (modérés) par des chocs contre des noyaux légers constitutifs de matériaux appelés **modérateurs**. Grâce au modérateur (eau ordinaire pour les réacteurs à eau sous pression), la vitesse des neutrons diminue jusqu'à atteindre quelques kilomètres par seconde, valeur pour laquelle les neutrons se trouvent en équilibre thermique avec le milieu. Les sections efficaces de fission de ^{235}U et ^{239}Pu induites par des neutrons thermiques étant très élevées, une concentration de quelques pour cent de ces noyaux **fissiles** est suffisante pour entretenir la cascade de fissions. Le flux d'un réacteur à neutrons thermiques est de l'ordre de 10^{18} neutrons par mètre carré et par seconde.

Dans un réacteur à neutrons rapides, tel que Phénix, les neutrons issus des fissions produisent directement, sans être ralentis, de nouvelles fissions. Il n'y a pas de modérateur dans ce cas. Comme dans ce domaine d'énergie les sections efficaces sont faibles, il faut utiliser un combustible riche en radionucléides fissiles (jusqu'à 20% d'**uranium 235** ou de **plutonium 239**) pour que le **facteur de multiplication** soit égal à 1. Le flux d'un réacteur à neutrons rapides est dix fois plus élevé (de l'ordre de 10^{19} neutrons par mètre carré et par seconde) que celui d'un réacteur à neutrons thermiques.

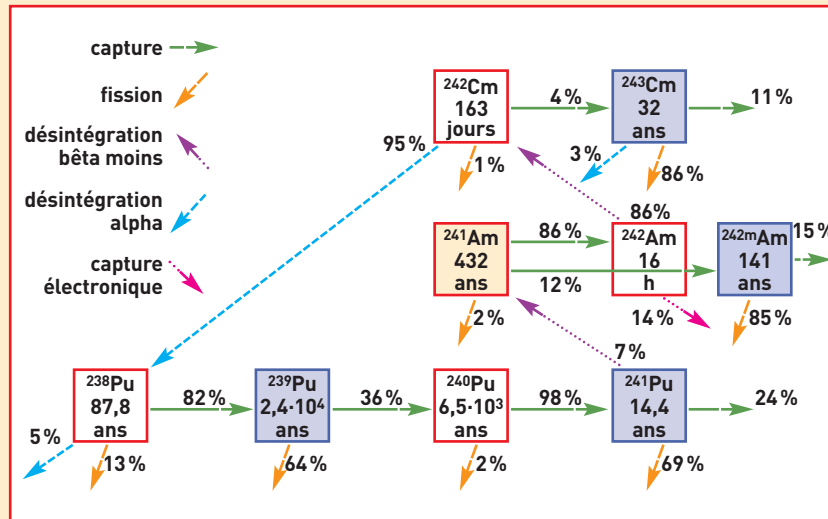


Figure.

Représentation simplifiée de la chaîne d'évolution de l'américium 241 dans un réacteur à neutrons thermiques (en bleu, les radionucléides qui disparaissent par fission). Par capture, ^{241}Am se transforme en ^{242m}Am qui disparaît majoritairement par fission, et en ^{242}Am qui décroît (période de 16 heures) principalement par désintégration bêta en ^{242}Cm . ^{242}Cm se transforme par désintégration alpha en ^{238}Pu et par capture en ^{243}Cm qui, lui-même, disparaît majoritairement par fission. ^{238}Pu se transforme par capture en ^{239}Pu qui disparaît majoritairement par fission.

F Qu'est-ce qu'un ADS ?

Un **ADS** (de l'anglais Accelerator Driven System) est un **système hybride** constitué par un réacteur nucléaire fonctionnant en mode **sous-critique**, c'est-à-dire incapable à lui seul d'entretenir une **réaction en chaîne** de **fission**, "pilote" par une source externe capable de fournir le complément de **neutrons** nécessaire⁽¹⁾.

Dans le cœur d'un réacteur nucléaire, en effet, est libérée l'énergie de fission des **noyaux lourds** comme ceux de l'**uranium 235** ou du **plutonium 239**. L'uranium 235 produit en fissionnant en moyenne 2,5 neutrons qui pourront à leur tour provoquer une nouvelle fission s'ils heurtent un noyau d'uranium 235. Il est donc

concevable qu'une fois la première fission amorcée, une réaction en chaîne puisse se développer et conduise, par une succession de fissions, à un accroissement de la population de neutrons. Mais parmi les neutrons produits par la première fission, certains sont capturés et ne donnent pas naissance à de nouvelles fissions. Le nombre de fissions générées à partir d'une fission initiale est caractérisé par le **facteur de multiplication effectif k_{eff}** , égal au rapport des neutrons de fission produits sur les neutrons disparus. De la valeur de ce coefficient dépend le devenir de la population de neutrons : si k_{eff} est nettement plus grand que 1, cette population augmente très rapidement ; si k_{eff} est très légèrement supérieur à 1, la multiplication des neutrons s'enclenche mais reste sous contrôle ; c'est cet état qui est recherché lors du démar-

rage d'un réacteur ; si k_{eff} est égal à 1, la population reste stable ; c'est la situation d'un réacteur en fonctionnement normal et si k_{eff} est plus petit que 1, la population de neutrons décline et s'éteint sauf si, et c'est le cas dans un système hybride, une

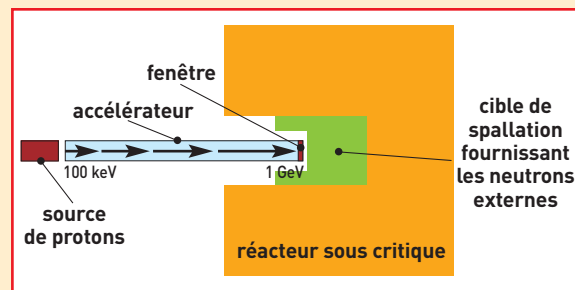


Schéma de principe d'un ADS.

source extérieure apporte des neutrons. À partir du facteur de multiplication effectif, la **réactivité** d'un réacteur est définie par le rapport $(k_{\text{eff}} - 1) / k_{\text{eff}}$. La condition de stabilité s'exprime alors par une réactivité nulle. Pour stabiliser la population de neutrons, on joue sur la proportion de matériaux à forte section de **capture de neutrons** (matériaux absorbants) au sein du réacteur.

Dans un ADS, la **source** de neutrons supplémentaires est alimentée par des **protons** créés à une énergie d'environ 100 **keV**, puis injectés dans un **accélérateur** (linéaire ou cyclotron) qui les amène à une énergie de l'ordre du **GeV** et les conduit vers une **cible** de métal lourd (plomb, plomb-bismuth, tungstène ou tantale). Irradiée par le faisceau de protons, cette cible génère, par des réactions de **spallation**, un flux intense de neutrons d'énergie élevée (entre 1 et 20 **MeV**), un seul proton incident pouvant générer jusqu'à 30 neutrons. Ces derniers

vont ensuite interagir avec le combustible du **milieu multiplicateur** de neutrons sous-critique et produire d'autres neutrons (neutrons de fission) (figure).

La plupart des projets de systèmes hybrides ont pour cœur (généralement annulaire) des milieux à **neutrons rapides**, ces derniers permettant d'obtenir les bilans neutroniques les plus favorables à la **transmutation**, opération qui permet de "brûler" des déchets mais peut également servir à produire de nouveaux noyaux **fissiles**. Un tel système peut également être utilisé pour la production d'énergie, même si une partie de celle-ci doit être réservée à l'alimentation de l'accélérateur de protons, part d'autant plus importante que le système est plus sous-critique. Il est, par principe, à l'abri de la plupart des accidents de réactivité, son facteur de multiplication étant inférieur à 1, contrairement à un réacteur fonctionnant en mode critique : la réaction en chaîne s'arrêterait si elle n'était entretenue par cet apport de neutrons externes.

Composant important d'un réacteur hybride, la **fenêtre**, positionnée en bout de la ligne de faisceau, isole l'accélérateur de la cible et permet de le maintenir sous vide. Traversée par le faisceau de protons, c'est une pièce sensible du système : sa durée de vie dépend de contraintes thermiques, mécaniques et de la corrosion. Il existe toutefois des projets d'ADS sans fenêtre. Dans ce cas, ce sont les contraintes de confinement et d'extraction des produits radioactifs de spallation qui doivent être pris en compte.

■ Voir à ce sujet *Clefs CEA n°37*, p. 14.

Les caractéristiques de la plus grande part des **déchets radioactifs** générés en France résultent de celles du parc national de production électronucléaire et des unités de traitement des **combustibles** usés, construites en application du principe consistant à traiter ces combustibles pour séparer matières énergétiques encore valorisables (**uranium** et **plutonium**) et déchets (**produits de fission** et **actinides mineurs**) non recyclables dans l'état actuel de la technique.

Cinquante-huit **réacteurs à eau sous pression (REP)** à **uranium enrichi** ont été mis en service par EDF entre 1977 (à Fessenheim) et 1999 (à Civaux), constituant une deuxième génération de réacteurs succédant à la première, essentiellement composée de huit réacteurs **UNGG (uranium naturel** graphite gaz) tous arrêtés et, pour les plus anciens, en cours de déconstruction. Une vingtaine de ces réacteurs REP assurent le recyclage industriel du plutonium inclus dans des combustibles **MOX**, fournis depuis 1995 par l'usine **Melox** de Marcoule (Gard).

EDF envisage de remplacer progressivement les REP actuels par des réacteurs de troisième génération appartenant à cette même filière de réacteurs à eau sous pression, de type **EPR** (European Pressurized water Reactor) conçu par **Framatome-ANP**, filiale du groupe **Areva**. Le tout premier EPR est en cours de construction en Finlande, le premier construit en France devant l'être à Flamanville (Manche).

La plus grande partie des combustibles usés du parc est actuellement traitée dans l'usine **UP2-800⁽¹⁾** exploitée depuis 1994 à La Hague (Manche) par Cogema, autre composante du groupe Areva (l'usine UP3, mise en service en 1990-92, traite pour sa part les combustibles étrangers). Les ateliers de **vitrification** des déchets de ces usines, fruits d'un développement commencé à Marcoule, ont donné leur nom (**R7T7**) au verre "nucléaire" utilisé pour confiner les éléments de **haute activité et à vie longue**.

Une quatrième génération de réacteurs pourrait apparaître à partir de 2040 (ainsi que de nouvelles unités de traitement) avec un prototype dès 2020. Il pourrait s'agir de réacteurs à **neutrons rapides (RNR)** à **caloporteur** sodium (RNR-Na) ou à caloporteur gaz (**RCG**). Depuis l'arrêt de Superphénix en 1998, un seul RNR fonctionne en France, Phénix, qui doit être arrêté en 2009.

■ (1) Refonte de l'unité **UP2-400** qui, à la suite de l'usine **UP1** de Marcoule, était destinée au traitement des combustibles usés de la filière UNGG.