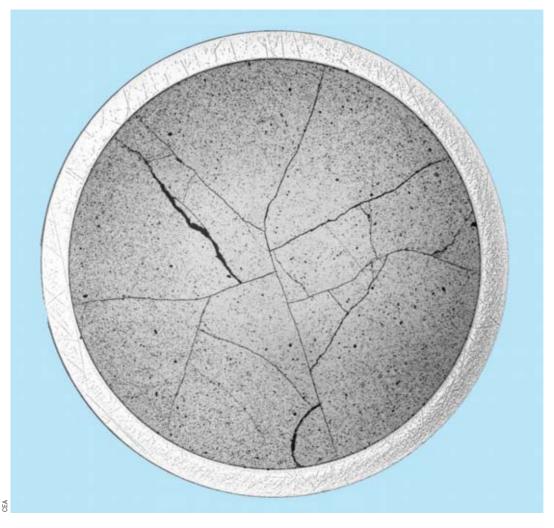
... et les combustibles usés?



Lors de son évolution en réacteur, le combustible subit des transformations physico-chimiques liées aux fortes températures et aux réactions de fission. Cette coupe radiale d'une pastille de combustible usé montre les fractures provoquées par l'existence d'un gradient de température entre son cœur et sa périphérie.

L'étude du comportement des colis de combustibles usés conservés

"en l'état" implique celle de phénomènes qui leur sont particuliers dans la mesure où ils seraient dans une configuration qui n'est pas, à l'origine, destinée à un entreposage ou un stockage de longue durée.

En France, l'option choisie est de **traiter** l'ensemble des combustibles usés après une période d'entreposage provisoire (en piscine ou à sec), car ils contiennent des matières valorisables (voir *Le traitement du combustible usé*: *une filière bien maîtrisée*, p. 19). Certains pays, comme l'Allemagne ou les États-Unis, envisagent l'option de stocker les combustibles usés, d'autres, comme la Finlande ou la Suède, se sont engagés dans l'examen de cette voie.

Dans le but d'étudier l'ensemble des domaines constituant l'aval du cycle électronucléaire et afin de connaître les conséquences que pourrait avoir un changement de stratégie dans le futur, le comportement à long terme des colis de combustibles usés a été étudié suivant la même méthodologie que celle appliquée aux colis de déchets.

Le combustible usé étant essentiellement constitué d'oxyde d'**uranium** (95 % de sa masse environ), celuici a été le matériau support de la compréhension des

mécanismes d'altération à l'échelle microscopique. D'autres expériences dites *intégrées* ont été réalisées sur des tronçons de combustible usé. Ces expériences ont permis de regarder les couplages entre les différents phénomènes sur une échelle de temps courte adaptée à celle de l'entreposage. La validation sur le long terme a reposé, quant à elle, sur l'étude de matériaux présentant des caractéristiques proches de celles des combustibles usés après des milliers d'années de refroidissement, comme les pastilles d'oxyde de **plutonium** PuO₂ ou les analogues naturels provenant de gisements d'uranium ou des réacteurs d'Oklo.

Ces études ont été menées au CEA dans le cadre du Programme de recherches sur l'évolution à long terme des colis de combustibles irradiés (Precci), soutenu en particulier par EDF, propriétaire des combustibles⁽²⁾. Elles ont aussi bénéficié des résultats du projet euro-

(2) À ce sujet voir Clefs CEA, N° 46, printemps 2002, p. 85.

Nouveaux concepts : le colis au cœur des études



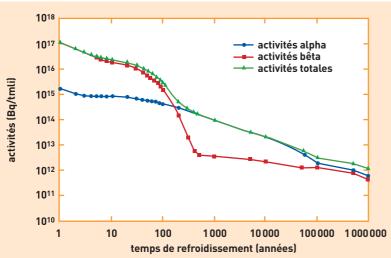


Figure 3.

Activités massiques exprimées en becquerels par tonne de métal lourd initial [Bq/tmli] en fonction du temps dans un combustible UOX irradié à un taux de combustion de 60 GWj/t (calculs Cesar5).

péen du 5° PCRD "Spent Fuel Stability under Repository Conditions", dont le CEA était coordinateur.

Les principaux résultats et les incertitudes

La première étape a consisté à identifier les différents mécanismes susceptibles de faire évoluer le combustible, d'une part en système fermé, d'autre part en système ouvert insaturé ou saturé en eau. Les recherches menées ont permis d'évaluer les conséquences de ces différents mécanismes.

En système fermé (gaine du crayon étanche), l'évolution du combustible usé est contrôlée par sa température et sa radioactivité résiduelle. Dans les limites de températures étudiées (<400 °C), l'auto-irradiation alpha (encadré C, Qu'y a-t-il entre le déchet et l'environnement?, p. 28) apparaît, à long terme, comme le mécanisme d'altération prépondérant (figure 3). Les

études en système fermé ont montré qu'aucune évolution chimique ou cristallographique du combustible n'est attendue dans ces conditions. En outre, la mobilité des radionucléides dans le crayon est gouvernée par les effets de la radioactivité alpha et reste très limitée. La fraction de radionucléides qui pourrait sortir des grains de combustible et se retrouver dans les joints de grains de la pastille ou dans le volume des vides est ainsi inférieure à 5 % après 10 000 ans de refroidissement. Par contre, la radioactivité alpha s'accompagne à long terme d'une accumulation d'hélium, dont les effets sur la microstructure du combustible ne sont pas connus à ce jour. Une ouverture partielle des joints de grains de la pastille ne peut ainsi être exclue pour le long terme.

Une partie des études en système fermé s'est focalisée sur le comportement de la gaine à chaud. En effet, pour l'entreposage à sec, la gaine constitue une première barrière avant le relâchement des radionucléides et joue un rôle essentiel lors de la reprise des assemblages. Le risque majeur de rupture est celui lié au fluage (déformation de la gaine à chaud sous l'effet de la pression interne). L'étude des effets de la contrainte, de la température et du temps sur le fluage des gaines irradiées a permis de proposer un modèle de fluage et un critère de rupture pour les conditions de transport et d'entreposage. L'approche microstructurale en cours devrait permettre de consolider ces lois pour une échelle de temps non couverte par les essais en laboratoire.

En système ouvert insaturé, c'est-à-dire en présence d'air, le combustible usé s'oxyde. Cela suppose que la gaine est rompue (défaut initial) et que l'air est entré au contact de la surface du combustible. À partir d'un certain degré, cette oxydation entraîne un gonflement volumique important du combustible usé, suffisant pour agrandir le défaut initial de la gaine. L'altération du crayon en système ouvert insaturé est essentiellement gouvernée par la température. À des températures de l'ordre de 200 °C, ce phénomène est extrêmement lent. Ainsi, après 6 000 heures, l'oxydation n'a pas conduit à la formation d'une phase gonflante.

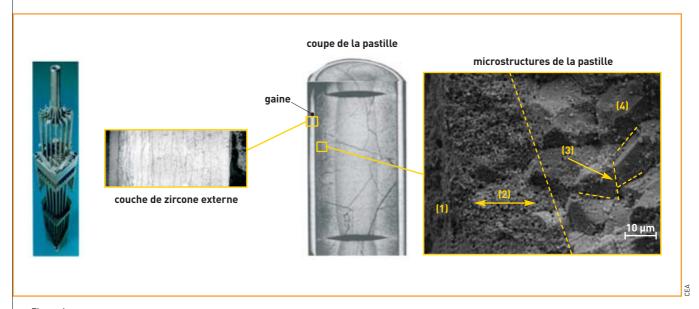


Figure 4.
Du colis de combustible aux microstructures du crayon de combustible usé UOX en sortie de réacteur : (1) surface libre du crayon ; (2) zone restructurée ou rim, constituée de petits grains et de larges pores, apparaissant sur le pourtour de la pastille ; (3) joints de grains et (4) grains.

En outre, plus le **taux de combustion** est élevé, plus l'oxydation est lente. Les différentes analyses (microscopies, diffraction des rayons X) réalisées lors de l'oxydation des différents matériaux étudiés (poudres d'oxyde d'uranium, pastille vierge et fragments de combustibles irradiés) ont permis de proposer un modèle d'oxydation mécaniste. Ce dernier devrait concilier les différentes données de la littérature.

En système ouvert et saturé en eau, les rayonnements émis à la surface du combustible provoquent la dissociation des molécules d'eau (radiolyse), conduisant à la production d'espèces oxydantes, comme H₂O₂, et réductrices, tel H₂. Après quelques centaines d'années, la radiolyse de l'eau sous l'effet de l'activité alpha du combustible est prédominante (figure 3). En créant des conditions oxydantes à la surface du combustible, la radiolyse accélère sa dissolution. Ainsi, à partir d'un certain seuil d'activité, cette dernière augmente de manière quasi linéaire avec l'activité alpha. Le seuil d'activité en dessous duquel la radiolyse n'a plus d'effet dépend fortement du milieu dans lequel baigne le combustible. Ces récents résultats montrent que le couplage entre les colis et l'environnement doit désormais être pris en compte pour améliorer les modèles d'évolution à long terme du combustible usé sous eau.

Les modèles opérationnels d'évolution à long terme

Les principales questions opérationnelles posées par un entreposage de colis de combustibles usés concernent, d'une part, la reprise des colis à l'issue de la période d'entreposage et d'autre part, le relâchement des radionucléides en scénario incidentel. Pour le stockage, l'évaluation de son impact radiologique nécessite de définir la vitesse de relâchement des radionucléides au cours du temps.

Un modèle simplifié décrivant le relâchement des radionucléides par le colis de combustibles usés en stockage a été développé sur la base des résultats décrits précédemment. La simplification du modèle a été réalisée par le biais d'hypothèses pénalisantes. Le relâchement des radionucléides par les colis de combustibles usés sous eau peut être divisé en deux phases. La première est un relâchement rapide de l'activité. Ce relâchement, dit instantané, est constitué des radionucléides présents dans les zones du crayon dont la capacité de confinement à long terme n'est pas démontrée. Les effets de l'hélium sur la stabilité des joints de grains n'étant pas connus, cet inventaire prend en compte les radionucléides se trouvant dans les volumes libres du crayon en sortie de réacteur, mais aussi ceux présents dans les joints de grains et dans la zone restructurée nommée rim (figure 4). Pour un combustible UOX irradié à 55 GWj/t, cela conduit à une fraction ainsi relâchée proche de 15 % pour les éléments très volatils comme l'iode. La seconde phase correspond à un relâchement lent des radionucléides dû à la dissolution des grains de combustible. Gouvernée par la radiolyse de l'eau, la vitesse de dissolution du combustible est proportionnelle à son activité alpha. Elle est de l'ordre de 1 mg/m², j après 10 000 ans de refroidissement. Cette valeur est supérieure d'un ordre de grandeur environ aux vitesses de dissolution mesurées pour un combustible "frais",

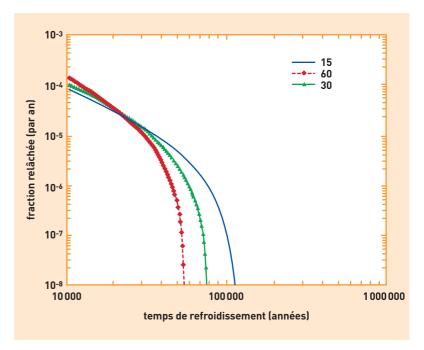


Figure 5. Fraction d'activité relâchée par an par le colis de combustible pour différents taux de fracturation de la pastille de combustible usé.

c'est-à-dire fraîchement irradié. Le relâchement total des radionucléides par le crayon de combustible usé ainsi que la durée de vie de ce dernier dépendront de la surface de combustible qui sera réellement accessible à l'arrivée de l'eau dans le colis (figure 5).

L'après 2006 : passer du générique au particulier

Les modèles opérationnels développés pour les différents colis l'ont été alors que les concepts de stockage étaient parallèlement en cours d'étude. Les matériaux n'étant pas définitivement choisis, les modèles ont été conçus pour pouvoir s'appliquer à différents cas de figure, moyennant la prise en compte d'incertitudes numériques ou l'introduction de marges de sécurité dans les hypothèses. Ils peuvent donc être utilisés pour faire des premiers calculs de performances, mais ils devront dans l'avenir être consolidés par une prise en compte plus explicite des interactions avec les matériaux d'environnement correspondant aux concepts de stockage retenus à l'issue des études menées par l'Andra. Cela passe par l'étude de phénomènes couplés complexes, où interviennent ensemble des phénomènes de transport dans le champ proche et des réactions chimiques traduisant l'évolution conjointe des différents matériaux présents (argiles de site, ouvrages de soutènement, conteneurs métalliques, colis...). Plus généralement, les objectifs des études de comportement à long terme qui seront menées après 2006 visent à consolider la robustesse des modèles, en particulier en traitant de façon exhaustive les cas de colis non conformes ou de situations d'évolution accidentelle, et à les affiner, éventuellement en réduisant les marges et les incertitudes qui y ont été introduites.

> Cécile Ferry* et Isabelle Ribet**
Direction de l'énergie nucléaire
CEA centres de Saclay* et de Valrhô-Marcoule**

A Que sont les déchets radioactifs?

Selon la définition de l'Agence interna-tionale de l'énergie atomique (AIEA), est considérée comme déchet radioactif "toute matière pour laquelle aucune utilisation n'est prévue et qui contient des radionucléides 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 FMA-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, tracabilité 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 comptabilité 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 TWhe par an.

Le tableau 1 donne les nombres et volumes

(suite)

| colis types du MID | symboles | producteurs | catégories | nombre | volume (m³) |
|---|----------|-------------|------------|---------|-------------|
| colis de déchets vitrifiés | CO à C2 | Cogema | НА | 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 | В3 | CEA, Cogema | MA-VL | 32940 | 27260 |
| colis de coques et embouts cimentés | B4 | Cogema | MA-VL | 1 520 | 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 | В6 | Cogema | MA-VL | 10810 | 4 580 |
| total B | | | | 192740 | 78 400 |
| total général | | | | 235 210 | 85 810 |

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 Morvilli Capacité : 6 | | | | |
| faible activité (FA) | centre de l'Aube (ouvert depuis 1992) | stockage dédié à l'étude pour les déchets radifères (volume : 100000 m³) et graphites (volume : 14000 m³) | | | |
| moyenne activité (MA) | capacité : 1 million de m³ | volume estimé MID ^[1] :78000 m ³ | | | |
| haute activité (HA) | volume estimé l | MID ⁽¹⁾ :7400 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).

Les déchets du cycle électronucléaire

'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 10¹⁷ 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 [²³⁵U] fissile. Les conditions d'irradiation généralement mises en œuvre dans les réacteurs du parc français, avec un temps de

| 1 H | | | | | | | | | | | | | | | | | He |
|---|---------------------|--------------------------------|-------------------|-------------------------|----------------------------|------------------|----------------------|-------------------|------------|----------|----------|-----------------|-----------------|------------------|-------------------------|----------|----------|
| 3 Li | ⁴ Be | | | | | | | | | | | 5 B | ်င | 7 N | 0 | , F | Ne |
| Na | Mg | 13 14 15 16 17 Al Si P S Cl | | | | | | | | | | 18 Ar | | | | | |
| 19 K | Ca | 21 Sc | Ti | 23 V | Cr | ²⁵ Mn | Fe Fe | 27 Co | Ni Ni | Cu | Zn | 31 Ga | Ge | 33 As | 34 Se | 35 Br | 36 Kr |
| Rb | 38 Sr | 39 Y | Zr | Nb | ⁴² Mo | 43 Tc | Ru | Rh | Pd) | Ag | 48 Cd | In | 50 Sn | Sb | ⁵² Te | 53 | Xe |
| 55 Cs | Ba | Ln | 72 Hf | ⁷³ Ta | 74 W | 75 Re | ⁷⁶ 0s | 77 Ir | 78 Pt | 79 Au | Hg | 81 TI | 82 Pb | 83 B i | 84 Po | 85 At | Rn |
| 87 Fr | ⁸⁸ Ra | An | 104 R f | 105 Db | 106 Sg | 107 Bh | ¹⁰⁸ Hs | 109 M t | 110 Uun | | | | | | | | |
| lanth | lanthanides | | | | | | | | | | | | | | | | |
| actini | actinides | | | | | | | | | | | | | | | | |
| ■ noyaux lourds ■ produits d'activation ■ produits de fission ■ produits de fission et d'activation ○ radionucléides à vie longue | | | | | | | | | | | | | | | | | |

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 ²³⁵U 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 ²³⁵U 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 (232U, 236U) 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 (²³⁸Pu à ²⁴²Pu, 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 ((E ²³⁵ U: | | 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) |
| | 234 | 246000 | 0,02 | 222 | 0,02 | 206 | 0,02 | 229 | 0,02 | 112 |
| U | 235 | 7,04·10 ⁸ | 1,05 | 10300 | 0,74 | 6870 | 0,62 | 5870 | 0,13 | 1070 |
| U | 236 | 2,34·10 ⁷ | 0,43 | 4224 | 0,54 | 4950 | 0,66 | 6240 | 0,05 | 255 |
| | 238 | 4,47·10 ⁹ | 98,4 | 941 000 | 98,7 | 929000 | 98,7 | 911000 | 99,8 | 886 000 |
| | 238 | 87,7 | 1,8 | 166 | 2,9 | 334 | 4,5 | 590 | 3,9 | 2390 |
| | 239 | 24 100 | 58,3 | 5680 | 52,1 | 5 900 | 48,9 | 6360 | 37,7 | 23100 |
| Pu | 240 | 6 5 6 0 | 22,7 | 2214 | 24,3 | 2760 | 24,5 | 3180 | 32 | 19600 |
| | 241 | 14,4 | 12,2 | 1187 | 12,9 | 1460 | 12,6 | 1640 | 14,5 | 8 9 2 0 |
| | 242 | 3,75·10 ⁵ | 5,0 | 490 | 7,8 | 884 | 9,5 | 1230 | 11,9 | 7300 |

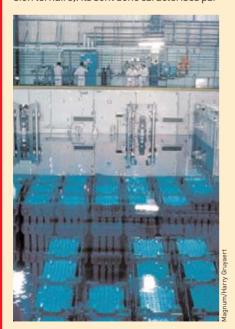
Tableau 1.

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 [14C], 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 (32Ge) au dysprosium (66Dy), avec la présence de tritium issu de la fission en trois fragments de 235U (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.

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

es 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-



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 paral-lélépipédique) 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 4000 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.



De l'entreposage au stockage

a raison d'être de l'entreposage et du stockage des déchets nucléaires est d'assurer le 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.

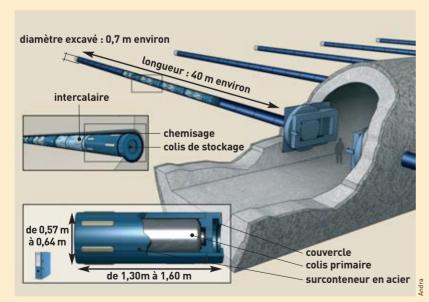
L'entreposage de longue durée (ELD) se conçoit notamment dans le cas d'une mise en œuvre différée dans le temps du stockage ou des réacteurs devant effectuer le recyclage/transmutation ou simplement pour tirer profit de la

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 lonque, 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 concu 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.

Qu'est-ce que la transmutation?

a 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 (γ, 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.

🗉 (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 varient 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 thermigues, 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 ²³⁵U et ²³⁹Pu induites par des neutrons thermiques étant très élevées, une concentration de guelgues pour cent de ces noyaux fissiles est suffisante pour entretenir la cascade de fissions. Le flux d'un réacteur à neutrons thermigues est de l'ordre de 10¹⁸ 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 1019 neutrons par mètre carré et par seconde) que celui d'un réacteur à neutrons thermiques.

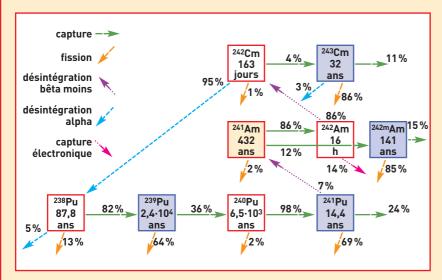


Figure.

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, ²⁴¹Am se transforme en ^{242m}Am qui disparaît majoritairement par fission, et en ²⁴²Am qui décroît (période de 16 heures) principalement par désintégration bêta en ²⁴²Cm. ²⁴²Cm se transforme par désintégration alpha en ²³⁸Pu et par capture en ²⁴³Cm qui, lui-même, disparaît majoritairement par fission. ²³⁸Pu se transforme par capture en ²³⁹Pu qui disparaît majoritairement par fission.

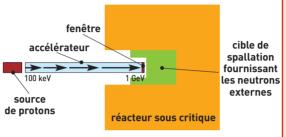
Qu'est-ce qu'un ADS?

n ADS (de l'anglais Accelerator Driven System) est un système hybride constitué par un réacteur nucléaire fonctionnant en mode sous-critique, c'est-àdire incapable à lui seul d'entretenir une réaction en chaîne de fission, "piloté" 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 Schéma de principe d'un ADS. 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 keff, 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

rage d'un réacteur; si keff 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



source extérieure apporte des neutrons. À partir du facteur de multiplication effectif. la **réactivité** d'un réacteur est définie par le rapport (k_{eff}-1) / k_{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 souscritique et produire d'autres neutrons (neutrons de fission) (figure).

La plupart des projets de systèmes hybrides ont pour cœur (généralement annu-

> laire) 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'accé-

lérateur de protons, part d'autant plus importante que le système est plus souscritique. 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 thermigues, 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.

cet état qui est recherché lors du démar-

Le contexte industriel

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.