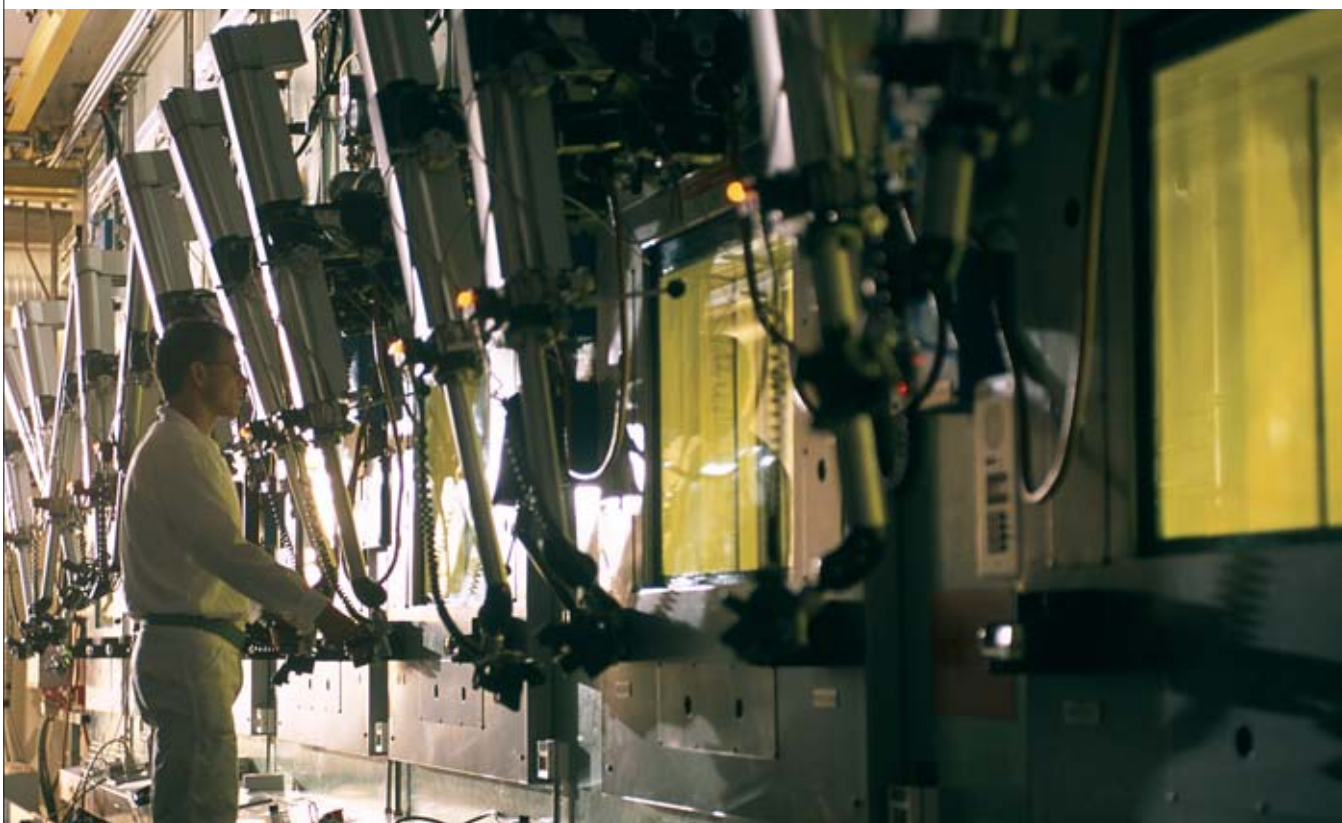




Des déchets ultimes moins radiotoxiques ?

Au sein du combustible usé, une fois retiré le plutonium, recyclable, les actinides mineurs constituent parmi les radionucléides à vie longue la principale source de toxicité résiduelle à long terme des déchets nucléaires. Et donc la cible prioritaire d'une stratégie de gestion particulière, qui implique une "séparation poussée". Les chercheurs du CEA ont effectivement développé des molécules aptes à effectuer ce tri "à la carte", voire à permettre peut-être plus tard de séparer ensemble ces actinides pour alimenter les systèmes nucléaires du futur, capables de les recycler intégralement.



La Chaîne blindée procédé (CBP) à Atalante, dans laquelle ont été menés les essais de démonstration des procédés de séparation des actinides mineurs.

Le **combustible** nucléaire **usé** contient une très grande variété de **nucléides**, qui peuvent présenter des **périodes radioactives** allant de courte à très longue (encadré B, *Les déchets du cycle électronucléaire*, p. 20). Les **radionucléides** dits "à **vie longue**", c'est-à-dire ceux dont la période radioactive ou celle d'un de leurs produits de décroissance est supérieure à trente ans, sont responsables de la nocivité radiologique potentielle à long terme du combustible irradié. Il s'agit de l'**uranium** (U) résiduel, du **plutonium** (Pu), des **actinides mineurs** (AM) et d'une partie, à peu près un dixième, de **produits de fission** (PF) et de **produits d'activation** (PA), tableau 1.

Dans la mesure où ils posent certaines questions bien spécifiques et qui peuvent être jugées délicates dans l'analyse de la sûreté des options de gestion à long terme des **déchets nucléaires**, notamment pour le **stockage**

en couches géologiques profondes, des recherches ont été lancées. Elles visent à évaluer la faisabilité d'une part, et le bénéfice potentiel d'autre part, d'une gestion différenciée des radionucléides à vie longue, et en particulier leur séparation en vue d'une **transmutation** en nucléides stables ou en nucléides de **courte vie**. Un vaste programme de recherche a été mis en place, sous l'égide du CEA, au début des années 90, dans le cadre de la loi du 30 décembre 1991 (voir l'encadré 2 de *Les recherches pour la gestion des déchets radioactifs : un processus de progrès continu*, p. 4). La première étape d'une stratégie spécifique de gestion des radionucléides à vie longue consiste à **les récupérer sélectivement dans le combustible usé**, pour produire des **déchets ultimes** débarrassés de l'essentiel de ce qui les rend encore potentiellement dangereux à très long terme. Par conséquent, une part importante de ce programme

nature	élément	isotope	période (années)	quantité (g/tUi)	teneur isotopique (%)
actinides mineurs	neptunium	237	2 140 000	916	100
	américium	241	432	490	62,4
	américium	243	7 380	294	37,4
	curium	245	8 530	11	8
produits de fission	sélénium	79	1 100 000	8	8
	zirconium	93	1 500 000	1 250	24
	technétium	99	210 000	1 410	100
	iode	129	15 000 000	308	82
	césium	135	2 300 000	769	17
produits d'activation	zirconium	93	1 500 000	81	0,04
	niobium	94	20 300	2	0,4

Tableau 1.

Caractéristiques des principaux radionucléides à vie longue présents dans un combustible usé UOX (une fois l'uranium et le plutonium extraits), enrichi à 4,95% en uranium 235, déchargé à un taux de combustion de 60 GWj/t. Les quantités, exprimées en gramme par tonne d'uranium initial (g/tUi), et les teneurs isotopiques sont données après une durée de cinq ans de refroidissement suivant le déchargement du combustible.

de recherche, dénommé Spin (Séparation Incinération) et lancé dès 1992, a été consacrée aux études de la séparation "poussée" des radionucléides à vie longue.

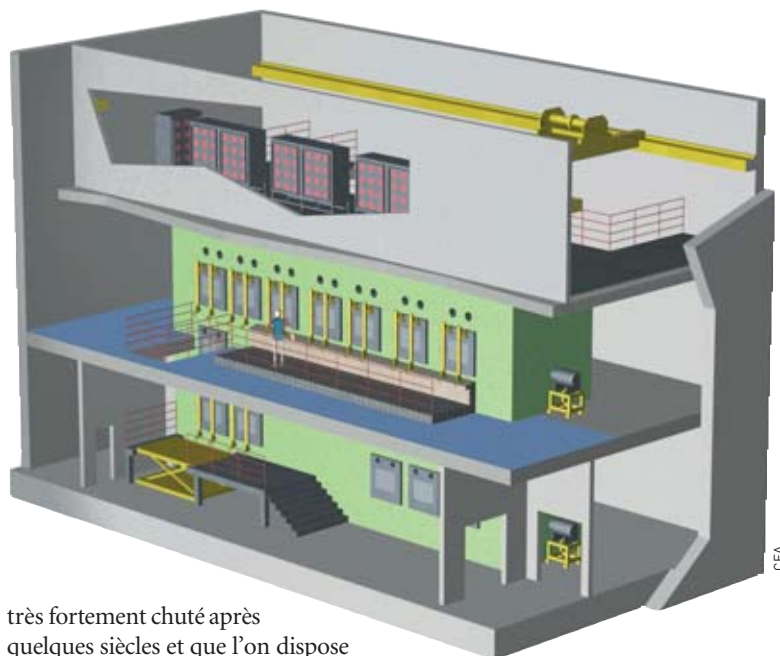
Les recherches sur la séparation poussée

Compte tenu de la diversité des éléments potentiellement impliqués (plusieurs dizaines de radionucléides à vie longue sont présents dans le combustible irradié, PF et AM), et de la variété des techniques envisageables pour les séparer, il fallait définir une stratégie de recherche en tentant de répondre à deux questions essentielles. Quels allaient être les principaux radionucléides concernés par les recherches ? Il était en effet impensable de vouloir étudier la séparation de tous les éléments présentant, soit directement, soit par l'intermédiaire d'un de leurs descendants, un **isotope** radioactif de longue période. Tous les AM et près du tiers de la masse totale des PF auraient été impliqués ! Et quels critères retenir pour le choix des méthodes de séparation ?

Quels éléments faut-il séparer ?

Il faut tout d'abord considérer les contributions respectives des différents constituants du combustible usé à sa "**radiotoxicité**" à long terme. La radiotoxicité d'une substance est le déchet radiologique, c'est-à-dire la **dose efficace** délivrée, qui serait subi par les individus qui incorporeraient cette substance par ingestion ou inhalation. Cela dépend certes des caractéristiques radioactives de ou des radionucléides présents dans la substance incorporée, mais aussi – et de façon essentielle – du métabolisme de ces nucléides dans l'organisme. Ainsi par exemple, à radioactivité équivalente, des effets d'une ampleur radicalement différente seront obtenus selon que cette quantité de radioactivité est incorporée en étant respectivement portée par des noyaux de krypton (gaz rare, inerte chimiquement et non fixé par l'organisme) ou par des noyaux d'iode (apte à se fixer notamment sur la thyroïde).

La radiotoxicité semble un critère approprié pour évaluer la dangerosité (potentielle) des déchets nucléaires à long terme. En effet, dans le cas d'un stockage et au bout d'une très longue période, ce n'est pas l'irradiation externe qui constitue le principal risque à considérer, puisque la très élevée radioactivité initiale a



très fortement chuté après quelques siècles et que l'on dispose dans tous les cas d'écrans de protection pérennes. Il s'agit plutôt, comme le montrent les différents exercices d'évaluation de la sûreté des stockages menés au plan international et par l'**Andra**, du risque d'incorporation, à très faible niveau, d'éléments radioactifs qui seraient présents à l'état de traces dans les eaux de boisson au terme d'un très lent processus de solubilisation et de migration.

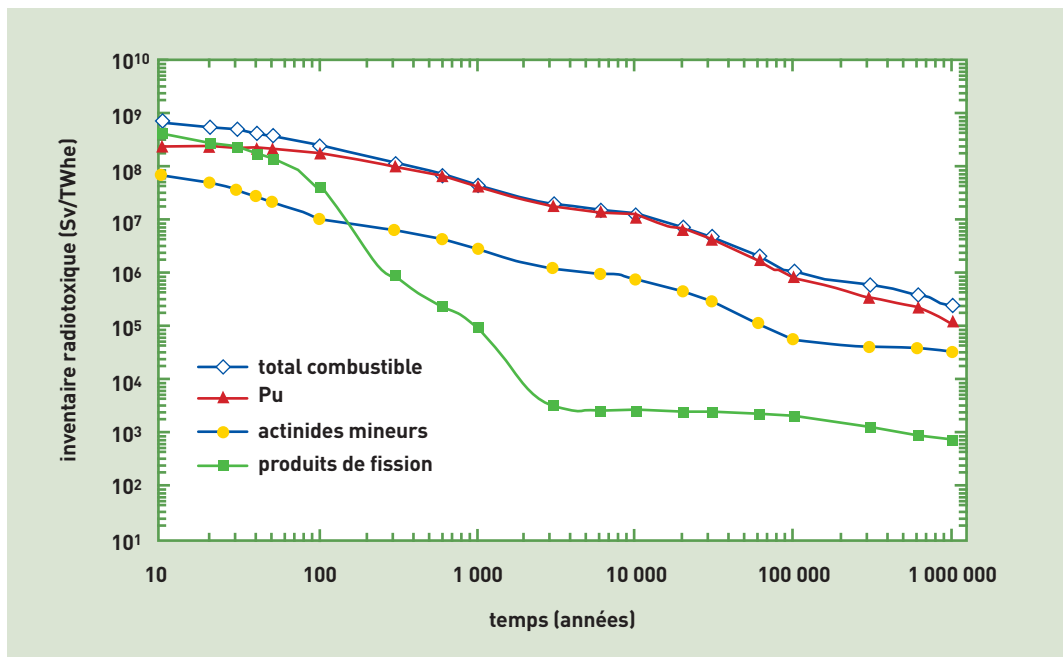
L'analyse de la radiotoxicité résiduelle des combustibles nucléaires usés après quelques siècles (figure 1) indique que celle-ci est dominée en premier lieu, et de très loin, par les quantités de Pu présentes, puis par celles des AM, à peu près un ordre de grandeur en dessous, et enfin, plusieurs ordres de grandeur en dessous, par celles de PF. Une stratégie de réduction de la radiotoxicité à long terme des déchets issus du **traitement** des combustibles usés doit donc, tout d'abord, s'intéresser à en retirer le Pu. C'est ce qui est réalisable et réalisé avec la mise en œuvre du procédé **Purex** et de la stratégie de **recyclage** du Pu dans les combustibles **MOX**, stratégie dont l'intérêt à cet égard peut ainsi être mesuré (voir *Le traitement du combustible usé : une filière bien maîtrisée*, p. 19).

Une fois le Pu retiré, ce sont donc les AM, essentiellement le neptunium (Np), l'américium (Am) et le

La Chaîne blindée procédé (CBP), construite dans Atalante, est l'une des plus importantes installations du CEA pour l'expérimentation sur des matières radioactives. Cet outil permet notamment de tester des procédés de traitement de combustibles usés sur des quantités significatives et sur de longues durées, et en utilisant des technologies représentatives de celles mises en œuvre à l'échelle industrielle.



Figure 1. Évolution de l'inventaire radiotoxique, exprimé en sievert par térawattheure électrique (Sv/TWhe), d'un combustible usé. Le Pu apparaît comme le contributeur principal à la radiotoxicité du combustible usé.

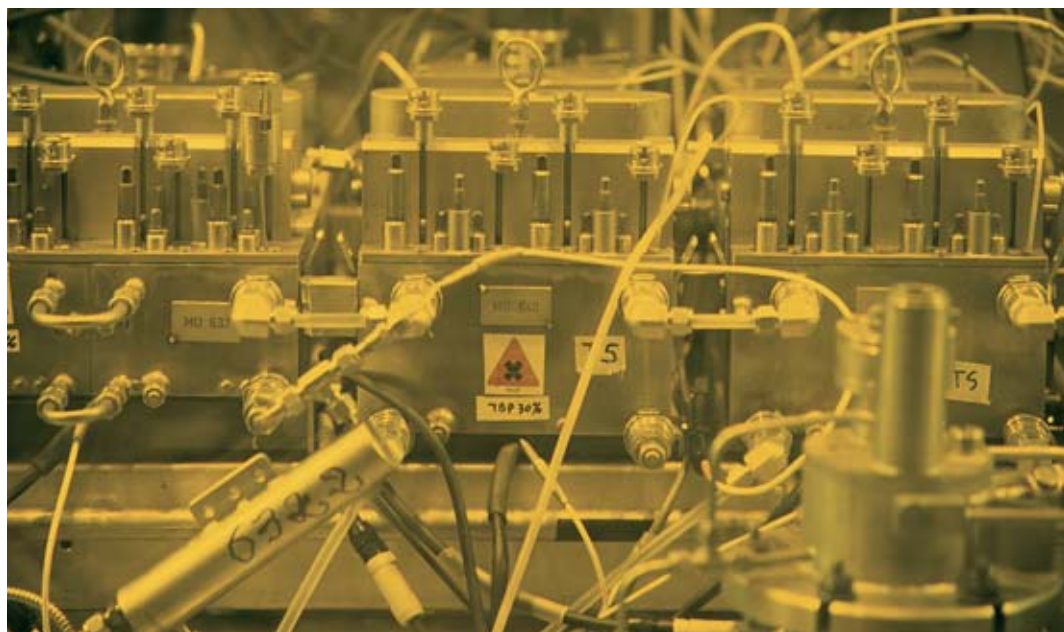


curium (Cm), soit environ le millième de la masse du combustible nucléaire usé, qui constituent la principale source de toxicité résiduelle. Pour voir décroître encore la radiotoxicité à long terme des déchets, ces actinides dits "mineurs" en raison de leur abondance moindre seront ainsi la principale "cible" d'une stratégie de séparation poussée.

L'application de ce seul critère de radiotoxicité conduit à ne considérer que la dangerosité radiologique potentielle des déchets nucléaires, sans prendre aucunement en compte les **barrières** qui, dans les diverses options de gestion, sont interposées entre les déchets et les populations. Ce critère est donc indépendant de toute décision quant aux options de gestion, l'objectif étant de minimiser l'**inventaire radiotoxique** des matières à gérer. Toutefois, dans le cas d'un stockage géologique, la **matrice** qui renferme les éléments radioactifs ainsi que les propriétés du milieu environnant joueront un rôle évidemment majeur pour empêcher ou retarder

la dissémination des radionucléides. Ce sont les **actinides (An)** qui se révèlent les moins mobiles, alors que certains PF à vie longue peuvent s'avérer plus mobiles du fait qu'ils sont plus solubles et moins **sorbables** sur les roches traversées par les aquifères. Les évaluations de sûreté des stockages mettent en évidence que des nucléides tels que l'iode 129 (¹²⁹I) ou, dans une moindre mesure et selon les milieux étudiés, le césium (Cs), le technétium (Tc) et encore quelques autres, intrinsèquement bien moins radiotoxiques que les AM, peuvent compenser cela par leur plus grande mobilité et s'avérer *in fine* de plus importants contributeurs à la dose délivrée à l'**exutoire**.

C'est pourquoi le programme Séparation poussée a également pris en compte la recherche et l'évaluation de procédés pour la séparation de l'I, du Cs et du Tc. Deux remarques toutefois s'imposent. Tout d'abord, il est important de bien mesurer le faible niveau des doses délivrables à très long terme (plusieurs dizaines



Vue de mélangeurs-décanteurs lors des essais menés dans la Chaîne blindée procédé (CBP).

P. Stroppa/CEA

de milliers d'années) par ces éléments conditionnés dans les colis de déchets HA-VL et MA-VL telles qu'elles sont estimées dans les études réalisées (inférieures au **microsievert** dans les conditions normales d'évolution d'un stockage). Ensuite, l'avancée des recherches relatives au stockage au cours de ces quinze années a permis de mieux préciser certaines contributions. Ainsi, les études les plus récentes, portant sur des scénarios de stockage dans l'argile, si elles confirment les hypothèses antérieures quant à la mobilité de l'I, infirment par ailleurs celles relatives au Cs et encore davantage celles relatives au Tc. Les contributions de ces deux éléments ne paraissent aujourd'hui plus aussi déterminantes qu'à l'époque où le programme a été lancé !

Quels procédés mettre en œuvre pour mener les séparations ?

En prenant en compte le retour d'expérience du procédé Purex pour la récupération de l'U et du Pu – dont les performances de séparation sont très élevées, à la fois en termes de quantités extraites et de purification, et avec une production de quantités limitées de **déchets technologiques** –, et l'échéance de 2006 fixée par la loi du 30 décembre 1991 – qui conduit à privilégier une certaine maturité, donc une continuité technologique –, il a été donné priorité aux approches par extraction sélective (ou extraction par **solvant**). Outre cette voie d'exploration principale, et de manière à ouvrir la recherche aux options possibles notamment dans une perspective à long terme, des alternatives ont aussi été étudiées, et principalement les traitements pyrochimiques qui pourraient présenter des avantages significatifs à divers égards.

La stratégie de recherche retenue consiste à essayer de tirer profit des potentialités de séparation du procédé Purex, particulièrement pour le Np, l'I et le Tc, puis à concevoir des étapes de séparation complémentaires, mettant en œuvre de nouveaux agents d'extraction pour les éléments envers lesquels l'extractant du procédé Purex ne présente aucune affinité (cas du Cs, de l'Am et du Cm), et enfin à évaluer les potentialités d'autres technologies (figure 2).

Quelles sont les principales étapes du programme ?

La recherche sur la voie principale d'étude, celle de l'extraction des éléments cibles, a connu deux grandes phases.

Les premières années ont été pour l'essentiel consacrées à la recherche de concepts et d'architectures moléculaires appropriées pour extraire l'Am, le Cm et le Cs. Ce fut une phase particulièrement foisonnante, qui a vu la synthèse de très nombreux extractants, dans un contexte de très large ouverture, avec la mobilisation d'une vaste communauté scientifique, tant nationale avec les groupements de recherche (GdR) Practis puis Paris qu'européenne dans le cadre des projets Newpart puis Partnew (voir l'encadré 3 de *Les recherches pour la gestion des déchets radioactifs : un processus de progrès continu*, p. 4). Cette première phase exploratoire, mettant en jeu des expériences de laboratoire à l'échelle du milligramme, a permis de sélectionner plusieurs extractants susceptibles de convenir en regard des très nombreux critères à considérer. Ils doivent présenter une affinité élevée et sélective envers les éléments d'intérêt, des capacités d'extraction pilotables, réversibles et avec

une cinétique convenable, et aussi être résistants dans leurs conditions de mise en œuvre, notamment vis-à-vis des phénomènes de **radiolyse**.

Lors de la seconde phase, il s'est agi de vérifier la réelle capacité des molécules identifiées à donner lieu à des procédés industrialisables. Les chercheurs ont reproduit à l'échelle du laboratoire, notamment dans l'installation **Atalante**, ce que pourraient être des configurations de procédés pour la récupération des divers éléments concernés, et testé leur validité sur des échantillons réels de combustible usé, de l'ordre de quelques centaines de grammes. Ces expériences, menées pour l'essentiel autour de l'année 2000, ont permis d'affiner encore la sélection parmi les divers concepts "candidats" et de mettre au point leurs conditions de mise en œuvre. Les chercheurs procèdent aujourd'hui à des expérimentations de même nature portant sur l'extraction des AM, mais à plus grande échelle (sur un lot de combustible de près de 15 kg), et aussi plus représentatives des conditions industrielles, notamment au plan des technologies. Cette dernière série d'expérimentations, qui est l'aboutissement de plus de quinze années de recherches, a été amorcée avec la réalisation en avril 2005 d'un essai réussi d'extraction du Np et s'est poursuivie à la fin de l'année 2005 avec les essais concluants de récupération de l'Am et du Cm contenus dans le combustible.

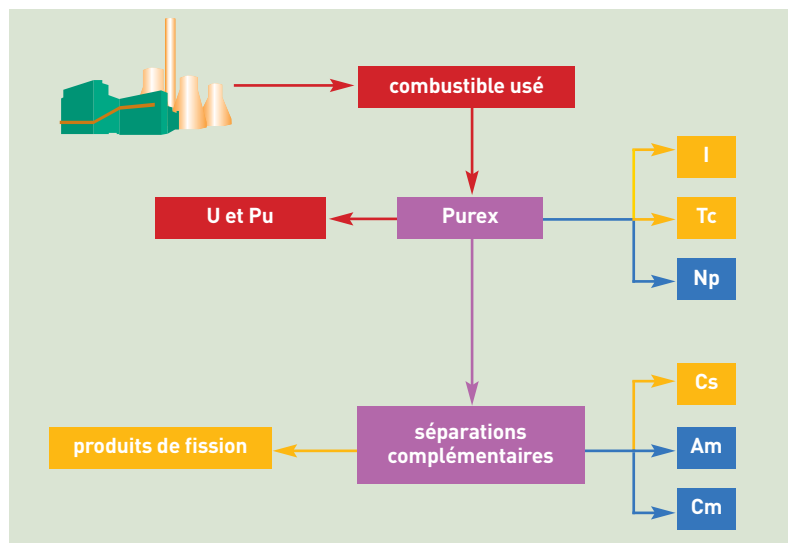


Figure 2. Principe de la séparation poussée.

La séparation des actinides mineurs : les principaux résultats

Si la séparation du Np a été étudiée à partir de modifications du procédé Purex, les séparations de l'Am et du Cm ont nécessité la recherche de procédés entièrement nouveaux.

La séparation du neptunium

Le Np contenu dans le combustible irradié est dissous quantitativement par l'acide nitrique (HNO_3) dans le procédé Purex. Deux espèces principales se retrouvent dans la solution de dissolution nitrique : le NpO_2^+ et le NpO_2^{2+} . L'agent d'extraction du procédé Purex, le phosphate tributylrique (TBP), présente une affinité plutôt élevée pour le NpO_2^{2+} et plutôt faible pour le NpO_2^+ . Par conséquent, la fraction de Np extraite par le TBP dépend des quantités respectives des deux

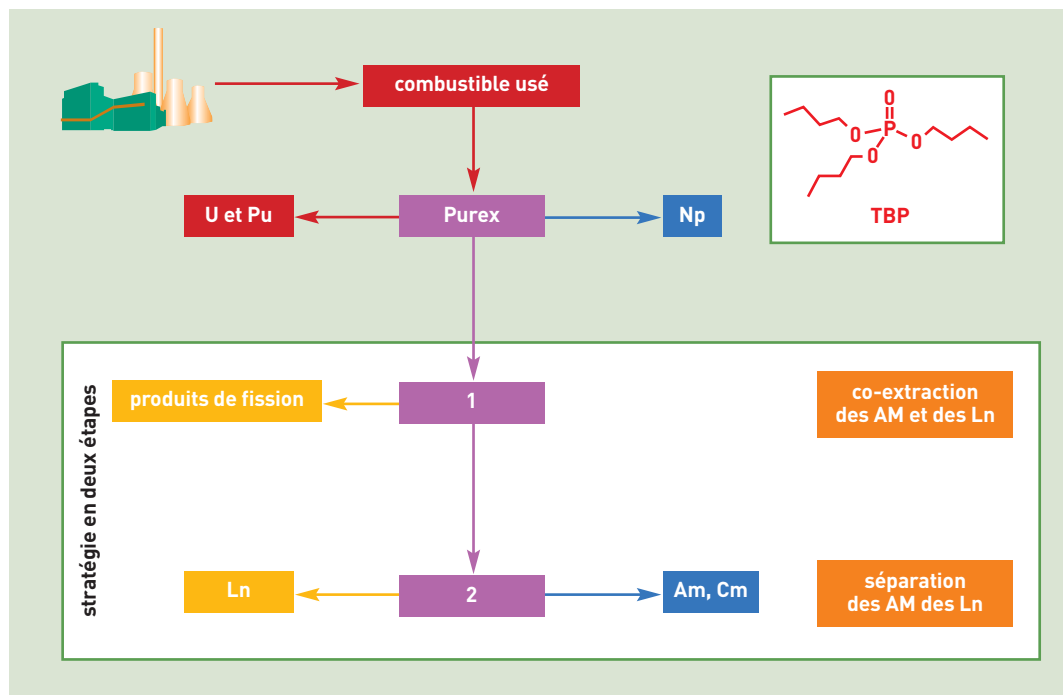


Figure 3.
Les étapes
de la séparation des
actinides mineurs.

espèces dans la solution d'alimentation, et d'un changement éventuel de leurs proportions respectives au cours de l'extraction.

Il est donc apparu possible de récupérer quantitativement le Np par une adaptation du procédé Purex classique en favorisant l'oxydation du NpO_2^+ en NpO_2^{2+} . Les expériences effectuées au niveau du laboratoire ont conduit à la définition des mécanismes présumés et de la cinétique d'oxydation du NpO_2^+ par l'acide nitrique (catalysé par l'acide nitreux HNO_2). Ceci a permis de proposer un schéma de fonctionnement Purex modifié pour la récupération quantitative du Np, basé simplement sur une augmentation modérée de la concentration d'acide nitrique de la solution d'alimentation (figure 3). Les résultats des calculs, obtenus à l'aide du code Parex simulant le processus, permettent d'estimer qu'à peu près 99 % du Np pourraient être extraits dans ces conditions. Ceci a été vérifié lors de l'expérience menée dans Atalante à partir de 15 kg de combustible usé.

La séparation de l'américium et du curium

L'Am et le Cm montrent des affinités très faibles envers le TBP et ne sont donc pas récupérables par le procédé Purex. Les espèces présentes après dissolution sont respectivement l' Am^{3+} et le Cm^{3+} qui restent quantitativement dans la solution aqueuse avec les PF, tandis que l'uranium (UO_2^{2+}) et le plutonium (Pu^{4+}) sont extraits.

De nombreuses tentatives ont été faites par le passé afin de développer des procédés d'extraction spécifiques pour séparer l'Am et le Cm des PF. La mise au point de tels concepts s'avérait délicate. La première raison concerne l'extrême diversité des propriétés chimiques des PF impliqués et notamment la présence, dans les solutions de dissolution du combustible irradié, de grandes quantités d'éléments lanthanides Ln (jusqu'à cinquante fois celles d'AM) au comportement très proche de celui des AM. La deuxième raison se rapporte aux concentrations plutôt élevées d'acide nitrique dans les solutions issues du procédé Purex.

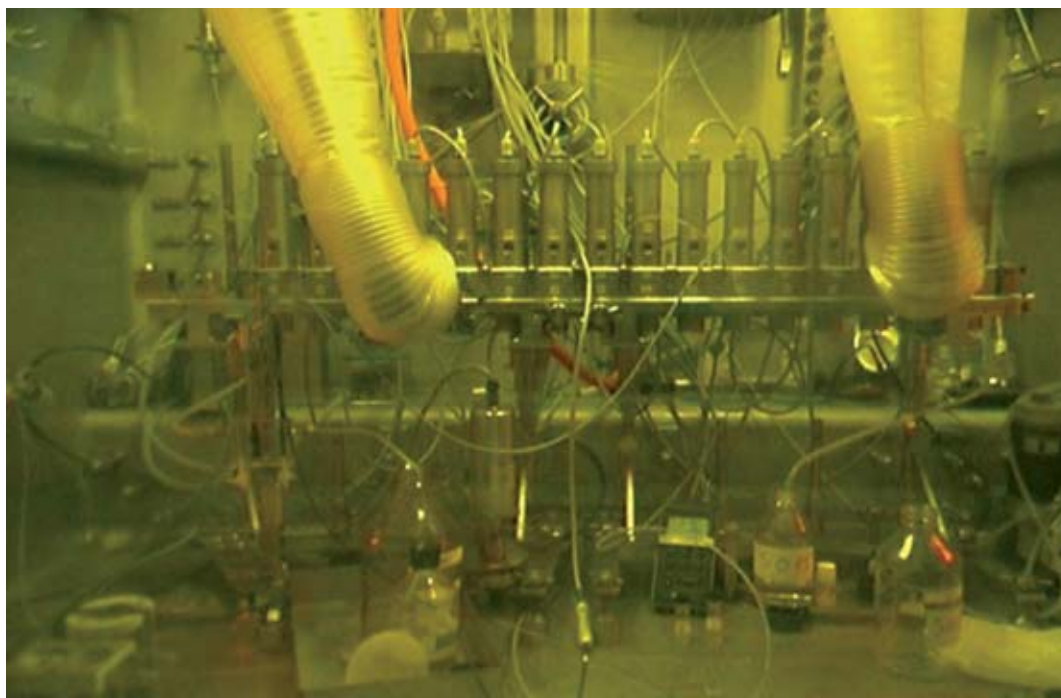
Cela conduit à des effets défavorables de "compétition" entre les ions H^+ (très abondants) et les ions actinides candidats à l'extraction par des extractants potentiellement sélectifs.

Il a été retenu de procéder en deux étapes (figure 3). Tout d'abord, de séparer conjointement les AM et les Ln des autres PF (procédé Diamex) et ensuite de séparer les AM des Ln dans des conditions chimiques appropriées, c'est-à-dire avec une faible concentration d'acide nitrique, et dans un milieu débarrassé d'autres éléments pouvant interférer (procédé Sanex).

L'objectif premier de la recherche était de sélectionner des systèmes d'extraction aptes à effectuer ces opérations et satisfaisant en outre aux exigences énoncées plus haut. De manière à minimiser les déchets secondaires générés par le processus, il est apparu intéressant de focaliser les recherches sur des réactifs potentiellement incinérables en totalité, et constitués uniquement d'atomes de carbone (C), d'hydrogène (H), d'oxygène (O) et d'azote (N). Il s'agit là d'une des grandes originalités des travaux menés par le CEA.

Les agents d'extraction à atomes donneurs, comme l'oxygène, et dotés de deux fonctions de ce type, comme les diamides et surtout parmi eux les malonamides, se sont avérés très efficaces pour l'extraction des éléments $f^{(1)}$ à partir de solutions fortement acides. C'est pourquoi les recherches relatives à la première étape de co-extraction des AM et des Ln se sont rapidement orientées vers cette famille de molécules. Un travail important a été mené pour identifier les mécanismes et les cinétiques d'extraction, les limites de la solubilité et les vitesses de dégradation sous radiolyse, afin d'optimiser la formulation de l'extractant. Le premier choix a été d'utiliser la diméthyl dibutyl tétradécyl malonamide (DMDBDTMA) et son efficacité a été vérifiée par des séries d'essais en milieu radioactif effectués au niveau du laboratoire, sur des échantillons de combustible réels, dès 1993. Il a été ensuite montré que

(1) Pour les lanthanides, la dernière couche électronique occupée est 4f et pour les actinides 5f. L'orbitale est la portion d'espace occupée par un électron donné.



Extracteurs centrifuges de laboratoire dans les chaînes blindées d'Atalante.

cette molécule pouvait être améliorée à divers égards. Après la synthèse de plusieurs dizaines de nouvelles molécules, la diméthyl dioctyl hexyl éthoxy malonamide (DMDOHEMA) a été adoptée, en 1998, comme nouvelle "molécule de référence" (figure 4). Elle a ensuite été testée par des séries successives d'essais sur échantillons réels, avec la conception d'un procédé tirant parti de ses propriétés. Un rendement de l'ordre de 99,9% pour les AM (et les Ln) ainsi que d'excellentes performances d'épuration vis-à-vis des autres PF ont été obtenus.

Pour la deuxième étape, qui correspond à la séparation entre éléments AM et Ln, l'utilisation de divers **ligands** a été successivement examinée. Les chimistes ont cherché à mettre au point des extractants susceptibles de tirer parti d'une différence de comportement tenue entre AM et Ln, qui est la plus grande propension des premiers à s'engager dans des **liaisons** de nature **covalente**. Cela peut notamment être observé avec des extractants où l'atome donneur est un atome d'azote, à la différence des diamides, où l'atome d'oxygène ne prend part qu'à des **liaisons** de type **ionique**, sans possibilité de différenciation entre AM et Ln.

De nombreux essais ont été effectués dans le cadre d'un très large travail coopératif. Une sélectivité plutôt bonne a souvent été obtenue entre les éléments d'AM et de Ln mais dans la plupart des cas, uniquement pour des valeurs très basses de la concentration en acide nitrique dans la phase aqueuse, pour les raisons explicitées plus haut.

La synthèse de molécules substituées de bis-pyridine-triazine marqua une étape importante. Ces molécules paraissaient en effet capables d'amener à une extraction très sélective des AM et ce, même à partir de milieux très acides. Cette découverte essentielle faite par Zdenek Kolarik, chercheur au *Forschungszentrum Karlsruhe (FZK)* en Allemagne, dans le cadre du programme de recherche Partnew en 1998, entraîna plusieurs séries d'essais sur échantillons réels. Les principaux résultats de ces essais furent excellents sur le plan des performances, avec des taux de récupération

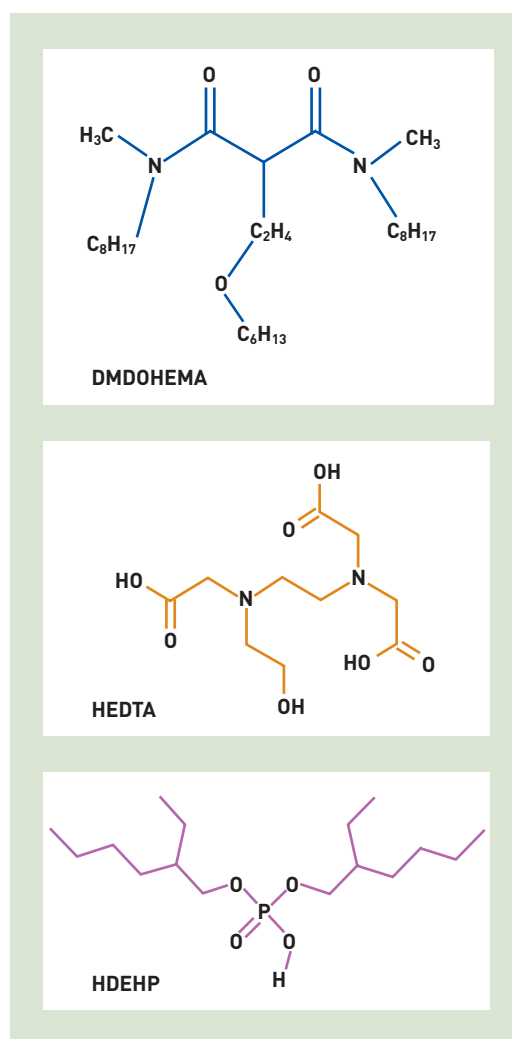


Figure 4. Les extractants retenus pour la séparation de l'américium et du curium. DMDOHEMA est la molécule de référence du procédé Diamex ; HEDTA (hydroxyéthyl éthylène diamine-triacétate) et HDEHP (acide di-éthylexyl phosphorique) sont en outre utilisés dans le procédé Sanex.



et d'épuration très élevés. Malheureusement, des difficultés à ce stade rédhitoires apparurent sur le plan de la cinétique d'extraction, de la solubilité des ions actinides **trivalents** entourés de molécules de solvant dans la phase organique, et surtout de la stabilité très médiocre de l'extractant.

Les travaux se sont poursuivis et se poursuivent encore aujourd'hui sur cette famille d'extractants pour tenter de résoudre ces problèmes par une formulation appropriée. Cependant, les chercheurs se sont orientés, pour la voie de référence, vers une alternative basée sur l'utilisation d'une association de deux extractants : une diamide capable d'extraire des AM et des Ln trivalents de solutions très acides, et un acide organique capable d'extraire ces ions trivalents à faibles acidités (figure 4). Un tel concept a été testé avec succès au laboratoire et récemment à plus grande échelle. Il paraît très intéressant car il permet d'envisager, après optimisation, de regrouper dans un seul et même cycle les deux opérations qu'il était jusqu'ici prévu de réaliser en deux étapes successives.

La séparation entre l'Am et le Cm a également été étudiée, pour le cas où une gestion différenciée de ces éléments serait envisagée. Le problème est ici moins complexe. Il est possible – et cela a été vérifié expérimentalement – de tirer parti des différences d'affinité respectives de chacun de ces éléments envers des extractants tels que les diamides pour obtenir leur séparation.

La séparation des produits de fission : les principaux résultats

La démarche suivie pour les séparations de l'I et du Tc consiste à adapter le procédé Purex. Par contre, celle pour la séparation du Cs a demandé de développer un procédé d'extraction spécifique.

matières **amorphes** imprégnées de nitrate d'argent (AgNO_3). Ces étapes conduisent à la formation et à la rétention sur ces supports de l'iode sous la forme d'AgI et AgIO_3 . Plus de 98 % de l'iode est ainsi récupéré.

La séparation du technétium

Le Tc n'est qu'en partie dissous lors de l'étape de dissolution du combustible usé, car il est essentiellement présent dans ce dernier sous la forme d'alliages polymétalliques dont la mise en solution est délicate. La fraction dissoute, qui représente à peu près 85 % des quantités totales de Tc pour le combustible **UOX** standard, l'est sous la forme de l'**anion** pertechnétate (TcO_4^-). Cette partie soluble du Tc peut être extraite et récupérée quantitativement par extraction par le phosphate tributylique (TBP), car le TcO_4^- peut remplacer le NO_3^- dans les **complexes** extraits de l'U, du Pu et du zirconium Zr (voir *Le traitement du combustible usé : une filière bien maîtrisée*, p. 19). Le comportement du Tc dans le procédé Purex a fait l'objet d'importantes recherches au cours des années 80 pour pouvoir justement épurer en Tc l'U et le Pu récupérés. La chimie du système est considérée aujourd'hui comme plutôt bien maîtrisée, et les modèles de traitement ont été développés et contrôlés. Ils donnent aux chimistes la possibilité de créer des cycles d'extraction Purex qui permettent la récupération sélective de plus de 95 % de la partie soluble du Tc présent dans le combustible irradié.

La séparation du césium

Le procédé Purex n'offre aucune potentialité de récupération sélective du Cs, qui est quantitativement dissous sous la forme Cs^+ en solution aqueuse mais non extractible par le TBP. Cependant, l'extraction sélective du Cs à des concentrations plutôt faibles, en présence de grandes quantités d'ions H^+ , est également une question difficile. L'idée de recourir à des architectures moléculaires élaborées, préorganisées, a été avancée. Des résultats d'extraction intéressants ont été obtenus avec le 1,3-diméthoxycalix[4]arène-couronne-6. De très nombreuses recherches, dans le cadre coopératif européen, ont permis de sélectionner des configurations de calixarènes fonctionnalisés présentant des propriétés remarquables de sélectivité et de résistance à la radiolyse. L'efficacité d'une récupération sélective de Cs avec ces agents d'extraction a été vérifiée par des séries d'essais préliminaires, au laboratoire, sur des échantillons réels et à diverses échelles. Les rendements de récupération obtenus sont supérieurs à 99,9 %.

Les procédés pyrochimiques, une autre voie de séparation poussée

Les procédés pyrochimiques, consistant en une séparation à haute température dans des sels fondus, pourraient représenter une alternative intéressante aux procédés **hydrométallurgiques** retenus comme "voie de référence" pour la séparation poussée des radionucléides à vie longue. Ils sont en effet réputés pour offrir une compacité (concentrations plus élevées que dans les solutions aqueuses et réduction du nombre d'étapes élémentaires) et des potentialités importantes pour opérer des transformations chimiques. Toutefois, ils sont aussi très attractifs pour des opérations sur des éléments radioactifs, dans la mesure où ils n'emploient pas de composé radiosensible, tels que le sont, à un



Équipements d'extraction dans la Chaîne blindée procédé (CBP).

La séparation de l'iode

La mise en œuvre du procédé Purex conduit aujourd'hui à une récupération effective et efficace de l'iode à partir du combustible irradié. Cet iode est essentiellement libéré sous forme de diiode gazeux (I_2) lors de la dissolution du combustible et son piégeage intervient en premier lieu dans une solution **basique**, où il est **réduit** en iodure I^- soluble, puis par **adsorption** sur des

degré que les chimistes s'efforcent certes de minimiser, les extractants organiques utilisés dans les concepts décrits plus haut. Cela permettrait en particulier de traiter des éléments combustibles ou des cibles de transmutation présentant des **taux de combustion** élevés ou/et des temps de refroidissement courts. En revanche, d'importantes incertitudes subsistent quant aux performances de séparation d'une part, et à la mise en œuvre industrielle de tels procédés d'autre part. En effet, ceux-ci impliquent des milieux particulièrement agressifs et pourraient alors conduire à des déchets technologiques en quantité plus élevée.

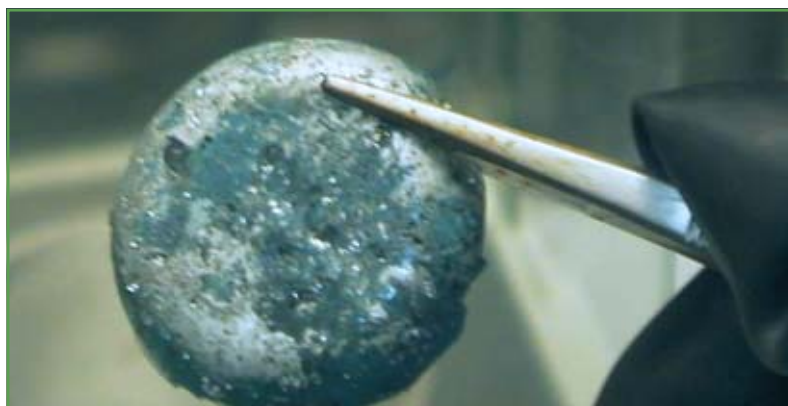
Divers concepts pyrochimiques ont été étudiés, développés et testés dans le monde, et dans certains cas à l'échelle du pilote. Dans plusieurs pays, depuis près d'une décennie, l'intérêt pour ces types de procédés connaît un regain marqué. L'approche générique consiste en la dissolution des éléments de combustible irradié dans un **eutectique** de sel en fusion à une température de l'ordre de 500°C à 800°C, suivie d'une récupération, que les chimistes s'efforcent de rendre sélective, des éléments souhaités. Plusieurs milieux et une grande variété de techniques ont été et continuent d'être examinés : milieu chlorure ou fluorure, séparation par extraction à l'aide de métaux fondus, par électrodéposition ou par **précipitation**. Les concepts en milieu chlorure, développés pour des combustibles métalliques au **Argonne National Laboratory** aux États-Unis ou pour des combustibles oxydes au **Research Institute of Atomic Reactors** en Russie, constituent à ce jour les réalisations les plus marquantes en ce domaine, avec le traitement de plusieurs tonnes par de telles techniques dans l'unité pilote "Fuel Cycle Facility" du **Idaho National Laboratory** à Argonne-West.

Un programme de recherche a été construit à partir de la fin des années 90, ici aussi dans un large cadre coopératif, avec la volonté d'explorer de nombreuses options et, compte tenu de la moindre maturité de ces procédés, dans une vision d'application à plus long terme. Il s'agissait en premier lieu, de vérifier dans quelle mesure les éléments cibles identifiés pour la séparation poussée pouvaient être efficacement séparés par de tels concepts, puis de rechercher les milieux et technologies les plus appropriés et enfin, de mettre au point des schémas de procédé et de les tester sur des échantillons réels de combustible usé.

À ce jour, à la lumière des résultats acquis lors de ces quelques années, il n'est pas encore possible de conclure sur tous ces points. De nombreuses études restent à réaliser avant d'amener à maturité de tels concepts pour leur application aux séparations visées. Toutefois, des résultats préliminaires très encourageants ont été obtenus au laboratoire lors d'essais d'extraction, par un mélange d'aluminium et de cuivre fondus, d'An dissous dans un bain de fluorures fondus. Des facteurs d'extraction élevés pour l'ensemble des An et très faibles pour les PF ont été atteints, ce qui laisse augurer de la possibilité d'une excellente sélectivité!

Des réponses et un nouvel élan

Suite à près de quinze ans de recherches sur la séparation poussée des radionucléides à vie longue, les scientifiques disposent donc de techniques de séparation validées sur des échantillons réels de combustible usé. La démonstration de la récupération quantitative et



Lors d'un essai d'extraction à l'aide d'un alliage d'aluminium et de cuivre fondus (78 % Al-22 % Cu), il a été possible d'extraire sélectivement le plutonium et l'américium d'une solution de fluorures fondus (85 % LiF-15 % AlF₃) qui contenait, outre ces éléments, des lanthanides. Ce concept pourrait permettre une récupération "en bloc" de tous les actinides. Ici, vues des phases saline et métallique après refroidissement et démoulage montrant au milieu, le bloc démoulé et en haut, le dessous de la phase métallique.

nature	élément	coefficient d'extraction
actinides	plutonium	197
	américium	144
lanthanides	cérium	0,142
	samarium	0,062
	europium	< 0,013
	lanthane	< 0,06

sélective des AM a été effectuée à la fin de l'année 2005 dans Atalante, sur une installation de plus grande taille, par une expérimentation sur une dizaine de kg de combustible, qui devrait permettre d'approcher (à l'échelle du 500°) ce que pourrait être un procédé de séparation industriel.

Les alternatives étudiées, et notamment les procédés pyrochimiques, s'ils sont intéressants à divers égards, sont aujourd'hui loin de présenter un degré de maturité permettant de conclure à leur applicabilité à la séparation poussée des AM. Leur développement semble plutôt à envisager à plus long terme, dans le cadre de nouvelles options de combustible et de cycle des matières.

Ces recherches, au-delà des réponses importantes qu'elles apportent dans le cadre de la loi du 30 décembre 1991, ont donné un nouvel élan à la recherche en chimie séparative des actinides, en contribuant notamment à la création du "réseau d'excellence" européen Actinet, et à l'étude de nouveaux concepts de recyclage pour les cycles des systèmes nucléaires du futur, avec par exemple le concept **Ganex** de recyclage groupé de l'ensemble des actinides.

> **Bernard Boullis**

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

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 **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 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}U fissile. Les conditions d'irradiation généralement mises en œuvre dans les réacteurs du parc français, avec un temps de

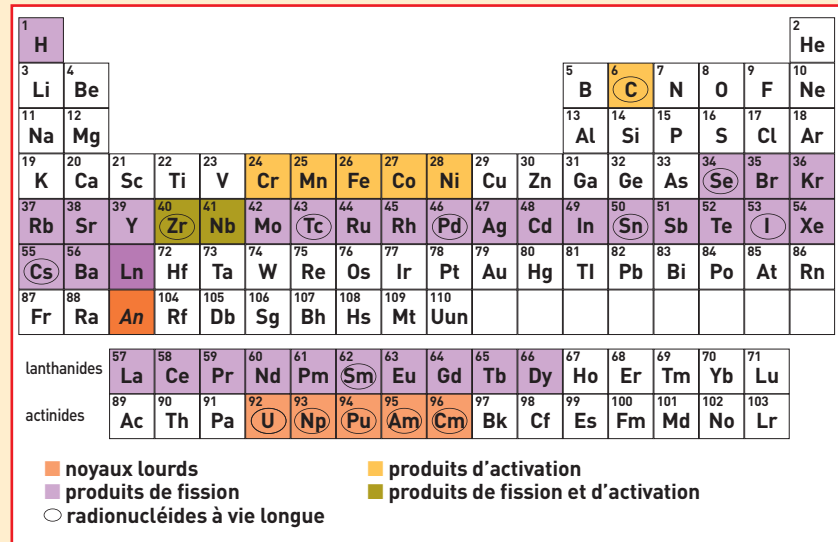


Figure 1. Principaux éléments présents dans le combustible nucléaire usé.

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 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

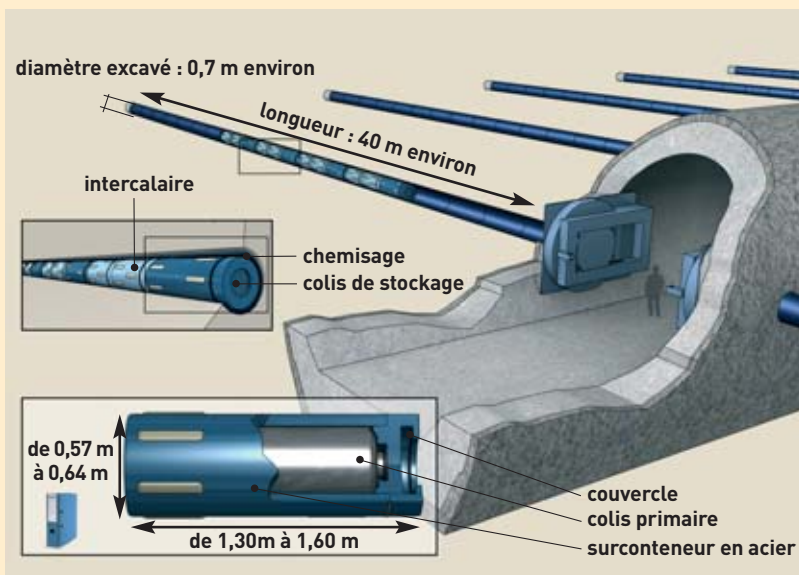
décroissance naturelle de la radioactivité (et donc de l'émission de chaleur des déchets de haute activité) avant une mise en **stockage géologique**. La longue durée s'entend sur des durées pouvant aller

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 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.

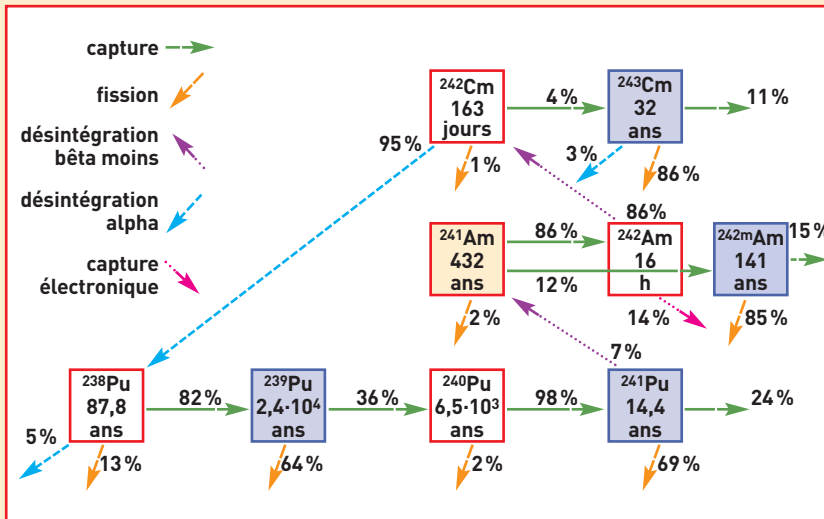


Figure.

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 conduite, 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

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 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.

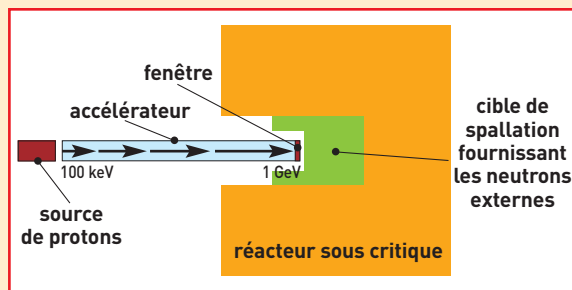


Schéma de principe d'un ADS.

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

■ 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.