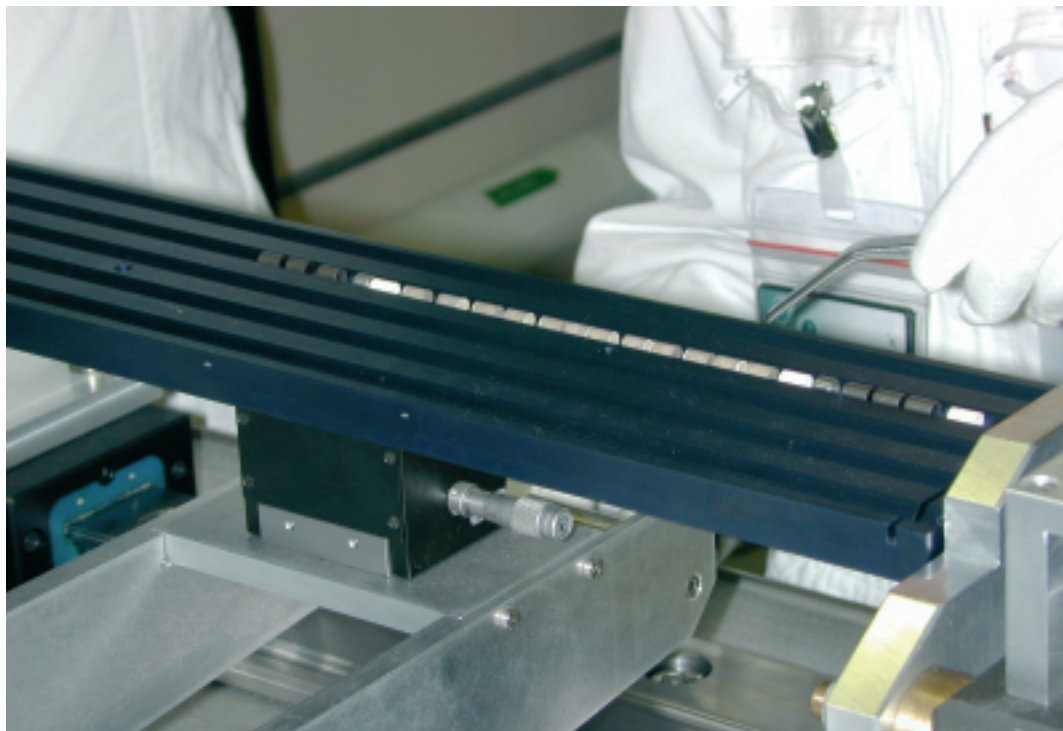




Les combustibles pour la transmutation

Un large programme d'expérimentations a permis de démontrer la faisabilité de la transmutation de radionucléides à vie longue, actinides mineurs ainsi que, parmi les produits de fission, du technétium. Les résultats obtenus permettront d'optimiser la conception des futurs combustibles voués à la transmutation.



Engainage, réalisée au centre CEA de Cadarache, de pastilles destinées à l'expérience d'irradiation Matina 2-3 dans Phénix pour l'étude du comportement de matrices inertes. Les études s'orientent actuellement vers la matrice MgO et des composés de zircon stabilisée.

Une part importante des recherches du CEA sur les combustibles pour la **transmutation** est effectuée en collaboration, en particulier avec l'**Union européenne** et l'**Institut des TransUranien**s de Karlsruhe (ITU), le **Department of Energy** américain, le Japon, au travers du **JAEA** et du Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI), et le ministère russe de l'Énergie atomique (Rosatom).

Les conditions de la transmutation

Quel type de combustible ?

Deux voies sont envisagées en réacteur de puissance : **homogène** (dilution des **actinides mineurs (AM)** dans le **combustible** standard **UOX** ou **MOX**, ou dans les combustibles des réacteurs du futur) et **hétérogène** (concentration des actinides au sein de cibles dont la fabrication et la gestion en réacteur sont découplées de celles du combustible standard).

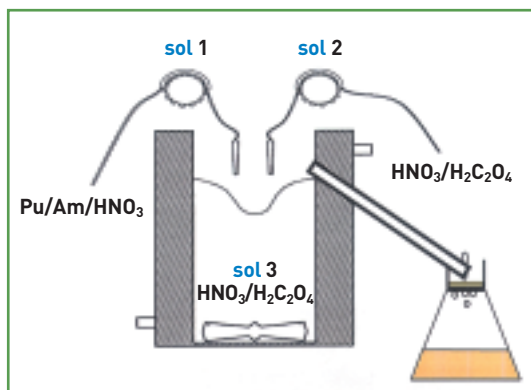
Dans le premier cas, la teneur en AM est limitée par les paramètres liés à la physique du cœur ou au comportement du combustible. Elle reste faible, inférieure à 5 % en poids au maximum pour certains réacteurs, et souvent voisine de 2,5 %. Les propriétés de ces combustibles restant comparables à celles du combustible standard, l'impact principal concerne les usines de fabrication.

Dans le second, la quantité d'AM est beaucoup plus élevée et se monte à quelques dizaines de pour-cent en poids (la teneur atteint 1,5 à 2,5 g par cm³ de cible et

les taux de **fission** visés sont de l'ordre de 90 %). Les usines de fabrication et de **retraitement** de ces cibles sont alors plus compactes (sans impact sur le cycle du combustible standard). En revanche, il faut concevoir de nouveaux objets et dérouler l'ensemble des étapes de qualification préalable à une industrialisation. Les cibles sont des matériaux où les actinides sont mélangés à une matrice inerte afin de limiter les puissances volumiques générées lors de la transmutation. Sur un plan microscopique, trois microstructures sont étudiées : les solutions solides et les structures micro-dispersées et macro-dispersées. La solution solide se caractérise par une simplicité de fabrication, la **micro-dispersion** permet d'optimiser la matrice inerte vis-à-vis des propriétés recherchées (thermique, gonflement sous irradiation...) et les macro-masses permettent en outre de limiter les zones d'endommagement de la matrice. Leur fabrication s'avère cependant complexe. Il faut enfin mentionner l'utilisation potentielle de réacteurs dédiés **sous-critiques** couplés à un accélérateur (**ADS**), utilisant un combustible au **plutonium** le plus chargé possible en actinides mineurs (voir *Des réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur dédiés à la transmutation des déchets?*, p. 101). Les études de faisabilité de ce type de réacteur sont menées en collaboration avec le **CNRS**.

Comment les fabriquer ?

Dans le domaine de la fabrication, des recherches sont menées pour mettre au point des procédés alternatifs



CEA

Figure. Dispositif mis au point à Atalante, à Marcoule, pour l'élaboration de composés fissiles contenant des actinides mineurs par co-précipitation.

à la métallurgie des poudres, qui est la technologie mise en œuvre industriellement pour la fabrication de combustibles oxydes. L'objectif est de réduire les coûts de fabrication en diminuant le nombre et la durée des étapes du procédé, en particulier celles impliquant la manipulation de matériaux pulvérulents, en limitant les volumes des cellules blindées nécessaires et en réduisant le volume de déchets. Ainsi, des procédés d'élaboration des poudres (imprégnation, co-précipitation), des combustibles (extrusion de pâte plastique) et d'aiguilles (vibrocompaction de poudre ou de billes obtenues par voie **sol-gel**) sont envisagés (figure). Ces procédés doivent notamment être étudiés pour les fabrications mettant en jeu du curium, de par les contraintes de radioprotection particulièrement lourdes qui sont associées à la manipulation de ce **radioélément**. À titre d'exemple, un procédé de co-précipitation d'oxydes de plutonium et d'américium (Am) est en cours de développement et des composés avec des teneurs en Am de 80 % ont été élaborés avec succès au CEA.

Expériences d'irradiation

Plusieurs expériences de démonstration scientifique ou technique ont été effectuées ou sont en cours d'irradiation ou de préparation. La démonstration expérimentale des différents modes de transmutation nécessite de sélectionner les matériaux des structures (gainage des aiguilles et éléments des **assemblages**) et les matrices inertes des cibles. Cette sélection est faite sur la base de données bibliographiques puis grâce à des irradiations ne mettant pas en œuvre de matière **fissile** (étude de l'effet des **neutrons**), ou impliquant de l'**uranium enrichi** en ^{235}U (étude de l'effet des neutrons et des **produits de fission (PF)** de **recul**). Des expériences mettant en œuvre des actinides mineurs sont ensuite réalisées.

Produits de fission à vie longue

Pour les PF-VL, la faisabilité de la transmutation du technétium en ruthénium a été démontrée par l'expérience EFTTRA T2 (European Feasibility of Target for TRANsmutation)¹ réalisée dans le réacteur HFR. Un taux de transmutation égal à 15 % a été atteint sans gonflement important (inférieur à 1 %_{vol}) ni changement micro-structural significatif.

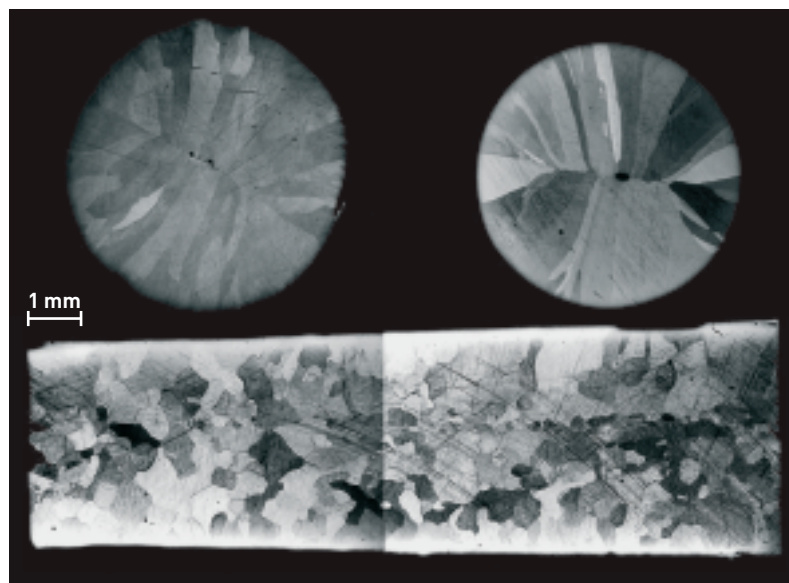
Une nouvelle expérience (Anticorp 1) est en cours d'irradiation dans Phénix avec un **spectre** localement

(1) Groupe composé du CEA, de EDF, FZK, ITU, HFR et NRG pour étudier les cibles de transmutation.

modéré (spectre permettant de bénéficier du flux élevé de neutrons des réacteurs à **neutrons rapides**, mais optimisé du point de vue de l'efficacité de la transmutation). L'objectif d'un taux de transmutation de 20 à 25 % devrait être atteint en 2007.

Transmutation des AM en mode homogène

L'expérience Superfact a été, dans les années 80, la première démonstration de la transmutation en mode homogène d'actinides mineurs. Elle a permis d'étudier le comportement de combustibles oxydes contenant 2 % de Np ou 2 % d'Am. Celui-ci se révèle quasi identique à celui des combustibles standard jusqu'à un **taux de combustion** de 6,6 at%, correspondant à un taux de transmutation de l'ordre de 30 %. Cet essai a également permis de mettre en évidence le relâche-



CEA/EFTTRA

ment total de l'hélium produit en cours d'irradiation. Par ailleurs, l'expérience Trabant 1 a montré que le neptunium (5 % en poids) ne modifie pas significativement le comportement du combustible jusqu'à des taux de combustion de 9,3 at%.

L'expérience Métaphix, réalisée par le CEA et l'ITU pour le compte de CRIEPI consiste à irradier un combustible UPuZr dont certains lingots contiennent jusqu'à 5 % d'actinides mineurs (neptunium, américium et curium), et des **terres rares** (néodyme, gadolinium, cérium). La première étape de ce programme, qui consistait à irradier les combustibles jusqu'à un taux de combustion égal à 2,4 at%, est

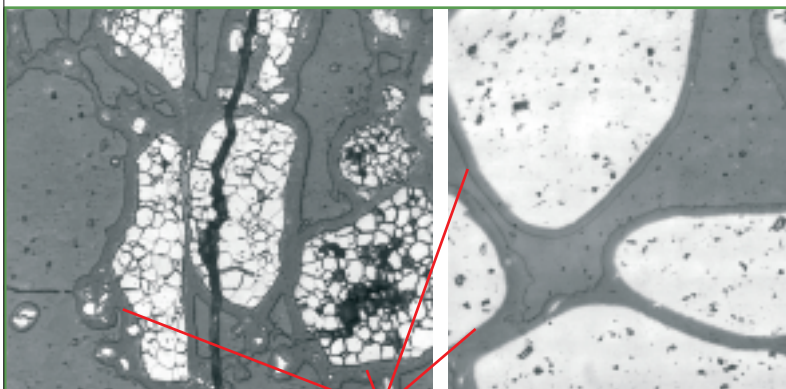
Coupe de barreaux de technétium avant (en haut à gauche) et après irradiation dans HFR dans le cadre de l'expérience EFTTRA T2.



terminée et les examens non destructifs ont été faits. Les deux autres étapes, qui visent à atteindre des taux de combustion de 7 at% et 11 at%, sont en cours. Les examens non destructifs déjà réalisés laissent entrevoir un début d'interaction mécanique entre la gaine et le combustible, en cohérence avec l'expérience acquise aux États-Unis qui prévoit une fermeture du jeu initial pour des taux de combustion environ égaux à 1 at%. Des examens complémentaires seront réalisés par ITU.

Transmutation des AM en mode hétérogène

À partir des premières démonstrations de faisabilité, un programme très ambitieux a été mis en œuvre par le CEA pour étudier et comparer le comportement de différents concepts de cibles de transmutation. Les irradiations se déroulent principalement dans Phénix et sont programmées jusqu'à l'arrêt du réacteur, prévu début 2009. Il faut compter une dizaine d'années pour une irradiation complète, de la conception jusqu'à la fin des examens post-irradiations et leur interprétation. Les expériences réalisées sont destinées à étudier le comportement des matrices inertes et des composés fissiles, à tester différentes options de concept de cible et à démontrer la faisabilité technique de ce mode de transmutation.



matrice endommagée autour des macromasses

Endommagement par les produits de fission de recul d'une matrice de spinelle (irradiation Tanox réalisée dans Siloé en 1994).

Les matrices inertes des cibles doivent être choisies en fonction de leur conductivité thermique, de leur caractère réfractaire et de leur aptitude à un faible gonflement sous irradiation. Enfin, leur compatibilité chimique avec le composé d'actinides, la gaine et le **caloporteur** permet d'affiner la sélection.

Quatre matériaux ont initialement été retenus : l'alumine, Al_2O_3 , le spinelle⁽²⁾, $MgAl_2O_4$, la magnésie, MgO et la zircone ytriée, $(Zr,Y)O_2$. Les expériences T2 bis et Santenay ont rapidement permis d'écarter l'alumine du fait du fort gonflement (jusqu'à 28%) observé sous irradiation. De même, l'expérience T3 a montré les risques importants de gonflement associés à l'utilisation du spinelle. En revanche, l'expérience Tanox a permis de montrer que l'endommagement de la matrice par recul des produits de fission était limité à une zone d'environ 10 mm autour des particules fissiles, mettant ainsi en

(2) Spinelle : structure cristalline d'oxydes dans laquelle les ions oxygène forment des assemblages de type cubique compact à faces centrées dont les cations occupent des sites octaédriques et tétraédriques.

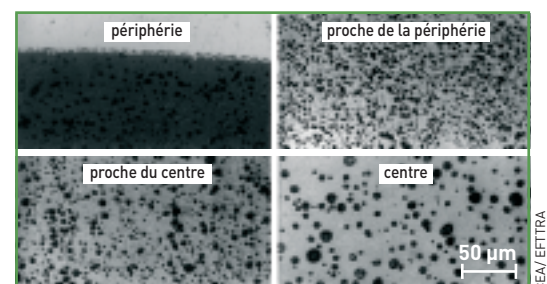
évidence l'intérêt de la macro-dispersion des actinides par rapport à la micro-dispersion. Cet effet a également été observé dans les expériences Thermet et Otto.

L'expérience Matina 1A, poursuite de l'irradiation Matina 1, s'est achevée fin 2004. Les premiers examens réalisés ensuite semblent confirmer l'effet positif d'une température élevée sur le comportement des matrices inertes, et en particulier du spinelle. Celle-ci peut en effet en contrecarrer l'**amorphisation** et ainsi limiter son gonflement. Actuellement, les études se sont orientées vers la matrice MgO et des composés de zircone stabilisée. Le comportement de ces matrices inertes sera testé dans l'expérience Matina 2 et 3 qui permettra d'étudier les effets couplés de la température et de la microstructure des cibles.

La transmutation de l'américium génère une quantité importante d'hélium qui peut entraîner un fort gonflement des cibles. Ce phénomène a été mis en évidence lors de l'expérience T4 qui a permis d'atteindre un taux de transmutation de l'américium égal à 97%. Cette irradiation a conduit à un gonflement de la matrice spinelle de 18%. Cette expérience a donc confirmé la nécessité de favoriser le relâchement de l'hélium par la présence de porosités ouvertes stables et/ou en favorisant les températures de fonctionnement élevées. À noter que l'irradiation T4 bis, menée dans les mêmes conditions que T4, a permis d'atteindre un taux de transmutation de l'américium supérieur à 99% correspondant à un taux de fission de 72%, au prix d'un gonflement des pastilles voisin de 24%.

Les principaux acquis sont donc que MgO et $(Zr,Y)O_2$ semblent être les pistes les plus prometteuses pour les matrices, que la macro-dispersion peut être une solution à l'endommagement provoqué par les produits de fission de recul et que le développement de cibles poreuses et/ou des températures de fonctionnement supérieures à 1000 °C sont des solutions potentielles permettant le relâchement de l'hélium. Ces acquis sont en cours de validation au travers des expériences Ecrix B et H, actuellement dans le réacteur Phénix (l'irradiation Ecrix H étant terminée en février 2006), et Camix-Cochix, en cours de préparation.

Les expériences Ecrix permettent de tester le comportement en spectre localement modéré (par du B_4C pour Ecrix B et par du CaH_x pour Ecrix H) d'une matrice MgO dans laquelle l'oxyde d'américium est micro-dispersé à une teneur de 0,7 g d'américium par cm^3 de cible (cette teneur était égale à 0,4 $g \cdot cm^{-3}$ dans T4). Le taux de transmutation qui sera atteint début 2006 dans les cibles Ecrix H sera supérieur à 80% et le taux de fission de l'américium sera égal à 33 at%. La préparation de cette irradiation, qui a lieu dans un réac-



Ceramographie montrant la porosité des pastilles de l'expérience EFTTRA T4 de transmutation de l'américium réalisée dans le réacteur HFR. Elle fait apparaître les bulles d'hélium créées dans la matrice spinelle.

teur de puissance, a nécessité de démontrer à l'**Autorité de sûreté** que la méthodologie de dimensionnement, permettant de calculer le comportement de ces cibles tout au long de leur irradiation, était suffisamment maîtrisée pour que l'on puisse garantir que, même dans des situations de fonctionnement dégradées du réacteur, des marges subsisteraient par rapport aux critères de sûreté imposés (en particulier, absence de fusion même locale et intégrité du confinement de la cible). Les examens post-irradiation qui seront réalisés en 2006 et 2007 permettront de réduire certaines incertitudes, par exemple en ce qui concerne le gonflement et l'évolution sous irradiation de la conductivité thermique de la magnésite, et ainsi d'améliorer les capacités de transmutation des cibles (augmentation de la teneur en américium et du taux de fission).

Les expériences Camix/Cochix s'inscrivent dans une logique de recherche d'optimisation de la microstructure des cibles à matrice MgO (comparaison des concepts micro et macro-dispersés) et des matériaux (irradiation d'une solution solide $(Am,Zr,Y)O_{2-x}$).

La transmutation en réacteur dédié

Dans les réacteurs de type ADS, la concentration en actinides mineurs dans le combustible pourrait être portée à 6 g par cm^3 . Ces combustibles auront donc un comportement notablement différent du standard : **vecteur isotopique** du Pu dégradé, relâchement très élevé d'hélium, propriétés thermiques altérées, ce qui nécessite des études de conceptions spécifiques menées essentiellement dans un cadre de collaborations internationales.

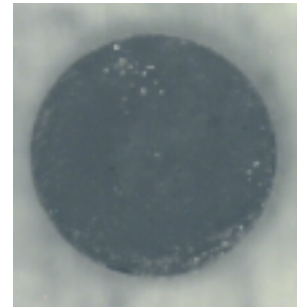
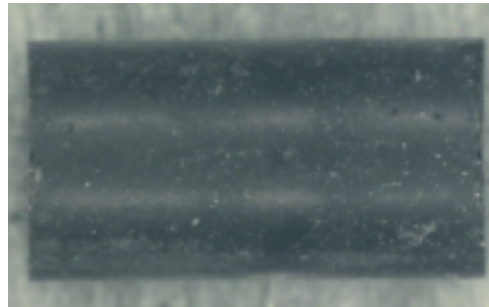
L'irradiation Bora Bora, menée dans le réacteur russe BOR 60, a permis d'atteindre un taux de combustion d'environ 11 at% et apporte d'ores et déjà quelques éléments de comportement de combustibles précurseurs oxydes (PuO_2 dans MgO) et nitrures (PuN dans ZrN) : bonne stabilité géométrique des pastilles, pas d'interaction pastille-gaine et pas de corrosion significative.

Les programmes européens Confirm et Future étudient respectivement des solutions solides nitrures (dont la fabrication s'avère délicate en grande partie du fait de la volatilité du nitrure d'américium) et des combustibles oxydes.

Une expérience dans Phénix, Futurix/FTA (réalisée dans le cadre d'une collaboration entre le CEA, l'ITU, le DoE et JAEA), a pour objectif de comparer dans des conditions représentatives et similaires le comportement de combustibles métalliques, nitrures et composites $((Am,Pu)O_2$ dispersé dans MgO et dans Mo). Celle-ci est en cours de préparation et sera chargée en réacteur en 2007.

La maîtrise des combustibles porteurs d'AM, une composante du nucléaire durable

Un programme très complet a permis de démontrer assez rapidement la faisabilité de la transmutation des actinides mineurs et des produits de fission à vie longue (le technétium). Il se poursuit activement avec de nombreuses irradiations qui s'achèveront dans les prochaines années, de façon à compléter les éléments sur la faisabilité technique prenant en compte la conception, la fabrication et le comportement du combustible.

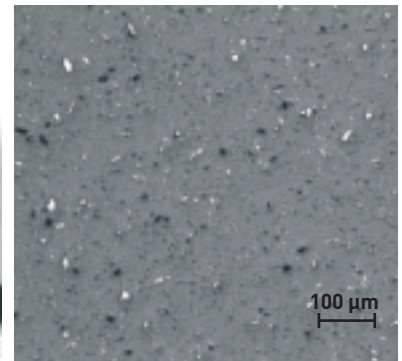
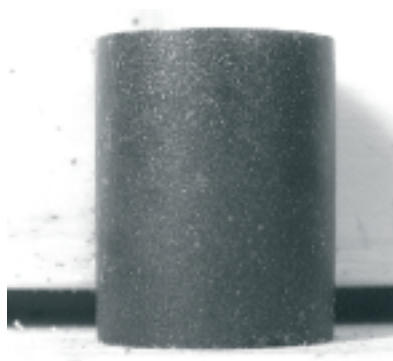


CEA

La transmutation des AM est beaucoup plus favorable en **RNR** qu'en **REP**. En mode homogène, le combustible oxyde peut contenir jusqu'à 2,5 % d'AM en masse, sans que son comportement ne diffère de façon significative du standard, les expériences avec du curium restant encore peu nombreuses. En mode hétérogène, l'obtention d'un taux de transmutation de 99 % pour l'américium et la mise au point de la méthodologie de conception constituent des éléments essentiels pour la démonstration technique.

Au-delà des prochaines décennies où le cycle du combustible restera basé sur l'uranium et le plutonium, les réacteurs électrogènes **surgénérateurs** de génération (GEN) IV, destinés à assurer le développement durable du nucléaire, devraient pouvoir brûler aussi les actinides mineurs. Il est donc essentiel que les expérimentations se poursuivent afin d'optimiser la technologie et d'accroître la maîtrise des combustibles contenant ces actinides.

Macroscopies, réalisées au Laboratoire d'étude des combustibles avancés (LECA) de Cadarache d'une cible spinelle contenant de l' UO_2 microdispersé, irradiée dans Phénix au cours de l'expérience Matina 1A.



CEA

Les objectifs des recherches futures restent l'augmentation des teneurs en AM et des taux de combustion, la prise en compte du curium avec un impact sur le cycle (fabrication, manutention) et la démonstration de l'ensemble du cycle des AM, de la séparation à la transmutation, sur un assemblage complet, qui pourrait se faire à l'horizon 2020 dans le réacteur rapide Monju au Japon.

La **Commission européenne** soutient l'activité de développement d'un ADS avec la constitution d'un dossier de faisabilité incluant les principales options d'un pilote et les conditions liées au cycle du combustible. Cependant, les ADS restent des systèmes complexes sur lesquels de nombreux verrous subsistent. Mais quelle que soit la filière finalement choisie, la transmutation offre des perspectives prometteuses pour contribuer à la réduction de la nocivité des déchets.

Pastille (dispersion d'oxyde d'américium dans une matrice de magnésite) de diamètre 5,25 mm, et coupe céramographique d'une cible Écrix pour incinération d'actinides mineurs dans Phénix.

> **Jean-Philippe Nabot et François Sudreau**
Direction de l'énergie nucléaire
CEA centre de Cadarache

A Que sont les déchets radioactifs ?

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

Que seront ces déchets demain ?

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

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

Le tableau 1 donne les nombres et volumes

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

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

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

Sous quelles formes se présentent-ils ?

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

B Les déchets du cycle électronucléaire

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

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

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

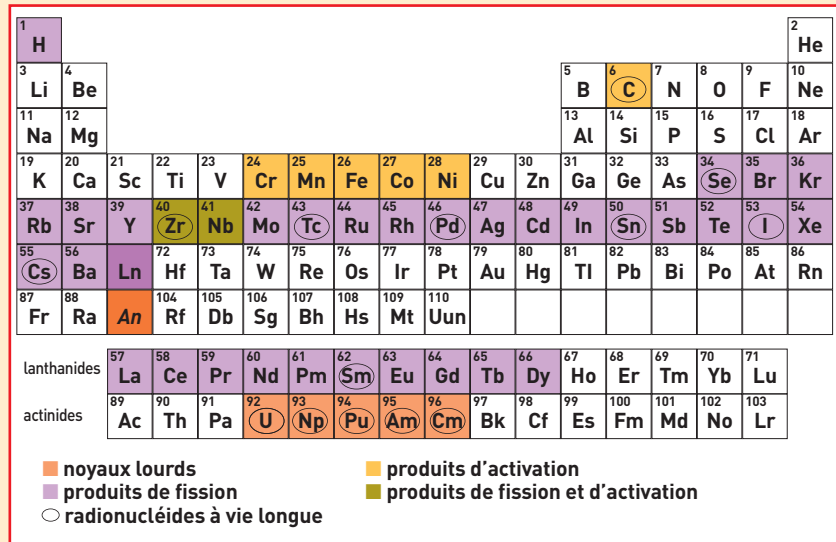


Figure 1. Principaux éléments présents dans le combustible nucléaire usé.

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

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

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

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

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

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

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

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



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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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



A. Gomin/CEA

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

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

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

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

C (suite)

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

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

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

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

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

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

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



Démonstrateurs technologiques de colis MA-VL pour boues bitumées.

D De l'entreposage au stockage

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

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

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



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

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

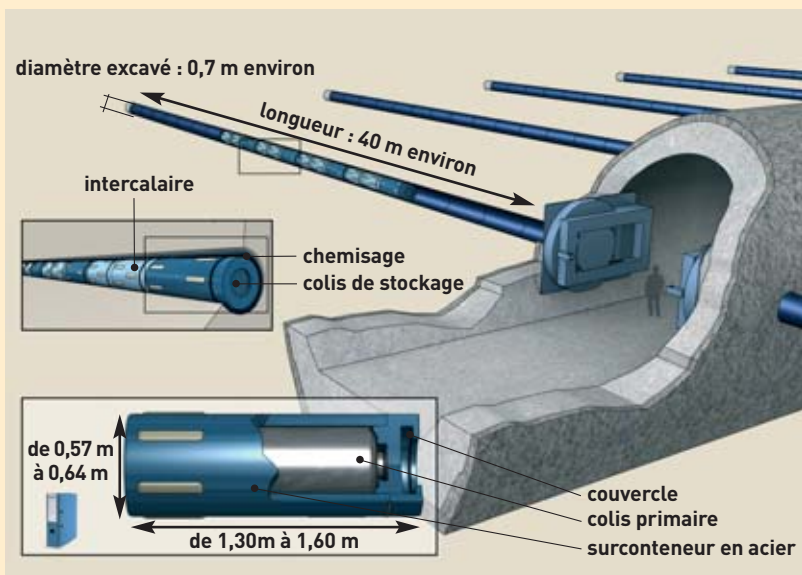
décroissance naturelle de la radioactivité (et donc de l'émission de chaleur des déchets de haute activité) avant une mise en **stockage géologique**. La longue durée s'entend sur des durées pouvant aller

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

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

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

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



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

E Qu'est-ce que la transmutation ?

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

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

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

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

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

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

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

E (suite)

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

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

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

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

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

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

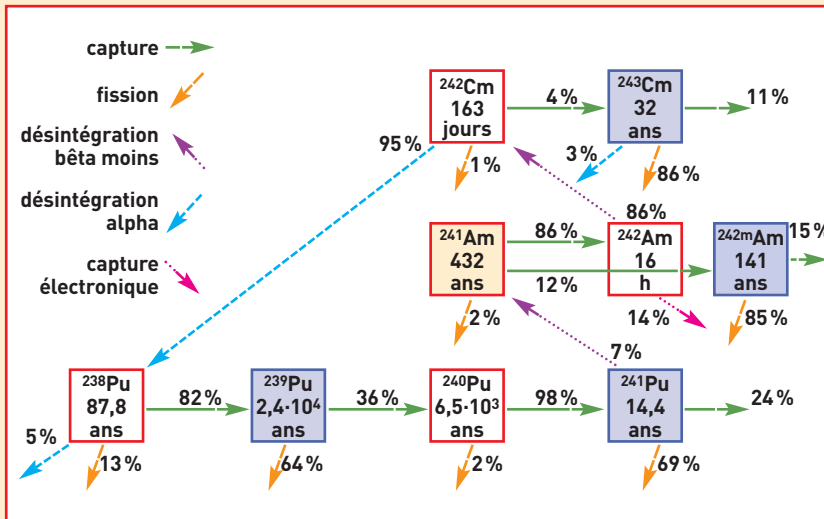


Figure.

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

F Qu'est-ce qu'un ADS ?

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

Dans le cœur d'un réacteur nucléaire, en effet, est libérée l'énergie de fission des **noyaux lourds** comme ceux de l'**uranium 235** ou du **plutonium 239**. L'uranium 235 produit en fissionnant en moyenne 2,5 neutrons qui pourront à leur tour provoquer une nouvelle fission s'ils heurtent un noyau d'uranium 235. Il est donc concevable qu'une fois la première fission amorcée, une réaction en chaîne puisse se développer et conduise, par une succession de fissions, à un accroissement de la population de neutrons. Mais parmi les neutrons produits par la première fission, certains sont capturés et ne donnent pas naissance à de nouvelles fissions. Le nombre de fissions générées à partir d'une fission initiale est caractérisé par le **facteur de multiplication effectif k_{eff}** , égal au rapport des neutrons de fission produits sur les neutrons disparus. De la valeur de ce coefficient dépend le devenir de la population de neutrons : si k_{eff} est nettement plus grand que 1, cette population augmente très rapidement ; si k_{eff} est très légèrement supérieur à 1, la multiplication des neutrons s'enclenche mais reste sous contrôle ; c'est cet état qui est recherché lors du démar-

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

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.

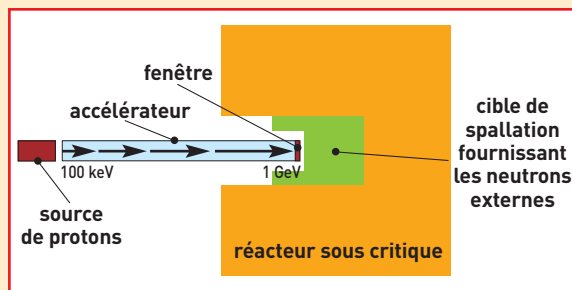


Schéma de principe d'un ADS.

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.