

# La transmutation des déchets radioactifs

**Massimo Salvatores\*** docteur ès science, **Alain Zaetta\*\*** docteur ès science

**Summary :** *Radioactive waste transmutation*

*We present the issues and the physical principles of long-lived radioactive waste transmutation, produced in nuclear power plants. The state of the art of the studies related to transmutation in fission reactors, both critical and subcritical (possibly fed by a particle accelerator) is also summarized, with some examples of application to a park of reactors of the type of that currently in operation in France.*

**Mots clés :** *Transmutation, déchets, radiotoxicité.*

**Key-words :** *Transmutation, wastes, radiotoxicity.*

**L**a loi « Bataille » du 30 décembre 1991 représente un événement hautement significatif dans le débat qui se développe depuis quelques années autour du futur de l'énergie nucléaire non seulement en France, mais aussi en Europe et dans le monde.

Cette loi exprime une exigence éthique et prend origine dans la préoccupation des populations vis-à-vis du devenir des déchets radioactifs, inévitablement produits par l'industrie nucléaire. On peut débattre sur l'impact potentiel sur les populations de ces déchets, de leur volume et nocivité et les comparer aux volumes et à la nocivité des déchets produits par d'autres industries stratégiques pour l'économie et le développement d'un pays et d'une société moderne. Cependant, les questions posées par la loi sont assez simples et nécessitent des réponses qui sont d'abord à caractère scientifique et technologique.

En particulier l'« axe » 1 de la loi concerne les stratégies dites de « séparation/transmutation » et la question posée concerne la R et D à effectuer pour en déterminer le potentiel en vue de la réduction « significative » du volume et de l'activité des déchets radioactifs. Dans le présent article, on donnera l'état actuel des travaux de recherche en France en ce qui concerne l'objectif « transmutation » que nous allons définir.

La « transmutation » d'un isotope radioactif à période longue ( $\geq 500$  ans) est sa transformation par processus physique en isotope stable ou radioactif, mais à période radioactive beaucoup plus courte (inférieure à quelques dizaines d'années).

Il est important de rappeler que des études sur le potentiel de la transmutation dans la gestion des déchets radioactifs

ont été menées dans le passé, depuis les années 70 environ, dans beaucoup de pays et que les organismes internationaux (Euratom et l'Agence Internationale pour l'Énergie Atomique, AIEA) ont coordonné des études internationales dans ce domaine.

La conclusion dans le passé (la dernière étude de l'AIEA date de 1982) était plutôt pessimiste sur l'efficacité de ces stratégies. Les raisons sont simples : a) la séparation/transmutation n'élimine pas le besoin d'un stockage en profon-

## Sigles utilisés

AIEA	: Agence Internationale pour l'Énergie Atomique
CAPRA	: consommation accrue de plutonium dans les rapides (réacteur rapide de type avancé)
DHA	: déchets à haute activité
EFR	: European fast reactor
Euratom	: European Atomic Energy Commission
MOX	: mixed oxide (oxyde mixte)
PFVL	: produits de fission radioactifs à vie longue
PUREX	: processus de retraitement du combustible irradié par voie aqueuse
REP	: réacteur à eau sous pression
RNR	: réacteur à neutrons rapides
SPIN	: séparation/incinération (programme)
TCT	: taux de combustion
UOX	: uranium oxide (oxyde d'uranium)
URT	: uranium de retraitement

\* CEA, Direction des réacteurs nucléaires, DRN, bât. 707, CEA/Cadarache, 13108 Saint-Paul-Lez-Durance Cedex. Tél. : 04.42.25.33.65. Fax : 04.42.25.41.42. E-mail : SALVATORES@DRN.CEA.FR

\*\* CEA, Direction des réacteurs nucléaires, DER/SPRC/LEDC, bât. 230, CEA/Cadarache, 13108 Saint-Paul-Lez-Durance Cedex. Tél. : 04.42.25.27.61. Fax : 04.42.25.75.95. E-mail : ZAETTA@SPRC.CEA.FR

deur (par exemple, dans une formation géologique stable et profonde) ; b) la mise en œuvre des technologies de séparation/transmutation risquent de comporter des coûts importants ; c) la récupération, la fabrication de combustibles et l'utilisation en réacteur à fission des éléments radioactifs en question a des conséquences sur le cycle du combustible nucléaire, par exemple en terme de doses aux travailleurs.

Pourquoi donc reprendre aujourd'hui ces recherches et y consacrer des ressources importantes ?

En particulier, on peut bien dire que, aujourd'hui encore, le premier point mentionné plus haut (nécessité d'un stockage profond) est valable et il restera tel aussi dans le futur.

Par contre, donner des indications quantitatives sur la réduction envisageable des masses et de l'activité des déchets à enfouir et, en même temps, apporter des éléments quantitatifs d'évaluation sur les coûts et l'impact sur le cycle du combustible, est un objectif aujourd'hui impératif, au vue des enjeux (acceptabilité de la part de la société de l'option nucléaire, utilisation optimale des ressources) et des échéances (renouvellement du parc et des usines du cycle du combustible). Dans cet article donc, on rappellera les principes physiques de la transmutation et on donnera des tendances et des résultats, obtenus dans le cadre du programme SPIN (séparation/incinération) du CEA.

### Transmutation : quels isotopes, quels objectifs ?

Toute évaluation de stratégie vis-à-vis de la gestion des déchets radioactifs à vie longue passe par une revue de données objectives telles que l'analyse d'un combustible standard irradié dans un REP (réacteur à eau sous pression) et déchargé après avoir atteint un certain taux de combustion.

Cette analyse devrait être à la base d'une évaluation des nucléides importants. Cependant, un critère objectif et unique de classification présupposerait une définition unique des risques représentés par un colis de déchets dans un stockage profond. A l'heure actuelle sont utilisées deux notions de toxicité qui peuvent servir à la définition de stratégies de séparation/transmutation et en évaluer l'impact. A la base des deux notions que nous appellerons « radiotoxicité potentielle » et « radiotoxicité résiduelle », il y a l'évaluation de l'activité d'un combustible irradié. Si l'activité est multi-

pliée par des coefficients de « risque biologique » (exprimés en Sv/Bq), on obtient la « radiotoxicité potentielle »  $R(t)$  :

$$R(t) = a \sum_i \frac{Q_i(t)}{Q_0(0)} \frac{D_i}{MT_i} \text{ (Sv/g)}$$

où  $a$  est une constante ( $a = 1,322 \times 10^{16}$ ).  $R(t)$  s'exprime en Sv/g. La radiotoxicité provient de l'isotope père (présent au temps  $t = 0$ ) et de tous ses descendants  $i$ .  $Q_0(0)$  est le nombre de noyaux de l'isotope père à  $t = 0$  et  $Q_i(t)$  le nombre de noyaux du descendant  $i$  au temps  $t$ .  $M$  est la masse molaire de l'isotope père.  $T_i$  est la période radioactive en années du noyau  $i$ .  $D_i$  est le coefficient de « danger » à l'ingestion de l'isotope  $i$  (exprimé en Sv/Bq).

La radiotoxicité potentielle est une notion directement liée à des grandeurs physiques (périodes de désintégration). En effet, l'utilisation de l'activité ne change pas de façon significative les conclusions que l'on peut tirer d'une analyse en termes de radiotoxicité potentielle. Cette notion ne prend pas en compte des barrières éventuelles autour de la « source » d'activité dans un stockage. Cependant, elle est utile dans le cas d'évaluation de l'évolution « anormale » (intrusion) des stockages ou des colis stockés.

La deuxième notion, la « radiotoxicité résiduelle », ne considère que la fraction de la source d'activité qui revient à la biosphère (après dissolution, migration, etc.). Cette notion, dont l'évaluation quantitative est très liée aux propriétés physico-chimiques des différents isotopes et des milieux de l'environnement géologique, est essentiellement liée à l'évolution « normale » des stockages.

Par la suite, on fera essentiellement état de la radiotoxicité potentielle, même si certaines conséquences de la prise en compte de la radiotoxicité résiduelle seront aussi évoquées.

En ce qui concerne la source de radiotoxicité potentielle, le *tableau I* donne la décomposition des constituants d'un combustible irradié dans un REP standard à un taux de combustion de 33 GWj/t. En ce qui concerne les actinides mineurs, le *tableau II* donne les constantes et les modes de décroissance.

A partir de ces données, le *tableau III* donne l'évolution de la radiotoxicité  $R(t)$  de ce type de combustible, norma-

**Tableau I** - Décomposition des constituants d'un combustible irradié déchargé d'un REP.

1 REP de 1000 MWe chargé avec un combustible UOX et qui produit 6 TWh/an, génère 21 t de combustible irradié par an			
20 t U	200 kg Pu	21 kg d'actinides mineurs	760 kg de produits de fission
avec 0,9 % <sup>235</sup> U		10,4 kg Np	35 kg <sup>135</sup> Cs + <sup>137</sup> Cs
		9,8 kg Am	18 kg <sup>99</sup> Tc
		0,8 kg Cm	16 kg <sup>93</sup> Zr
			5 kg <sup>107</sup> Pd
			3 kg <sup>129</sup> I

Tableau II - Décroissance naturelle des actinides.

Isotopes	Émission	Période	Éléments de la descendance
<sup>237</sup> Np	α	2,1 x 10 <sup>6</sup> ans	<sup>233</sup> Pa (27 jours)
			<sup>233</sup> U (1,6 x 10 <sup>5</sup> ans)
			<sup>229</sup> Th
<sup>239</sup> Np	β <sup>-</sup>	2,3 jours	<sup>239</sup> Pu
<sup>241</sup> Am	α	432 ans	<sup>237</sup> Np
<sup>242g</sup> Am	β <sup>-</sup> (0,83)	16 heures	<sup>242</sup> Cm
	β <sup>+</sup> (0,17) trans. isoméri.	152 ans	<sup>242g</sup> Am
<sup>243</sup> Am	α	7 380 ans	<sup>239</sup> Np → <sup>239</sup> Pu
<sup>242</sup> Cm	α	163 jours	<sup>238</sup> Pu
<sup>244</sup> Cm	α	18 ans	<sup>240</sup> Pu
<sup>245</sup> Cm	α	8 500 ans	<sup>241</sup> Pu → <sup>241</sup> Am → <sup>237</sup> Np
<sup>236</sup> Pu	α	2,8 ans	<sup>232</sup> U (72 ans)..., <sup>208</sup> Tl
<sup>238</sup> Pu	α	87 ans	<sup>234</sup> U (2,4 x 10 <sup>5</sup> ans), <sup>230</sup> Th
<sup>239</sup> Pu	α	24 000 ans	<sup>235</sup> U
<sup>240</sup> Pu	α	6 540 ans	<sup>236</sup> U
<sup>241</sup> Pu	β <sup>-</sup>	14 ans	<sup>241</sup> Am
<sup>242</sup> Pu	α	3,7 x 10 <sup>5</sup> ans	<sup>238</sup> U

Tableau III - Composantes de la source de radiotoxicité potentielle et évolution avec le temps (pour un combustible REP et un taux de combustion de 33 GWj/t).

	10 <sup>3</sup> ans	10 <sup>4</sup> ans	10 <sup>5</sup> ans	10 <sup>6</sup> ans
Total = URT + Pu + Np + Cm + PF (Sv/TWhe)	3,1 x 10 <sup>8</sup>	7,7 x 10 <sup>7</sup>	4,2 x 10 <sup>6</sup>	5,2 x 10 <sup>5</sup>
Composantes (%)				
URT	/	/	6	28
Pu	90	97	88	50
Np	/	/	1,3	13
Am	9,2	2,5	2,7	6,8
Cm	0,3	0,4	/	/
PFVL	6,0 x 10 <sup>-4</sup>	2,4 x 10 <sup>-3</sup>	3,2 x 10 <sup>-2</sup>	9,6 x 10 <sup>-2</sup>
Composantes uranium (Sv/TWhe)				
U appauvri	2,4 x 10 <sup>4</sup>	3,5 x 10 <sup>4</sup>	1,4 x 10 <sup>5</sup>	5,7 x 10 <sup>5</sup>
URT	2,1 x 10 <sup>4</sup>	4,8 x 10 <sup>4</sup>	2,2 x 10 <sup>5</sup>	1,4 x 10 <sup>5</sup>
Résidus miniers	7,2 x 10 <sup>5</sup>	6,6 x 10 <sup>5</sup>	2,6 x 10 <sup>5</sup>	6,5 x 10 <sup>1</sup>

lisée à l'énergie produite. La décomposition met en évidence la contribution prépondérante du plutonium sur toute l'échelle des temps et la contribution très modeste des produits de fission radioactifs à vie longue (PFVL). Le *tableau III* indique aussi les contributions à la radiotoxicité de l'uranium de retraitement (URT), de l'uranium appauvri, et des résidus miniers.

Cette radiotoxicité potentielle est celle qui serait à associer à un combustible REP stocké en l'état (hypothèse du stockage direct). Elle servira comme point de comparaison pour les analyses de scénarios, dont il sera question plus loin.

Enfin, il faut rappeler que, en termes de radiotoxicité résiduelle, les produits de fission représentent la composante la plus importante, à cause de leur comportement (solubilité) et de leur vitesse de migration dans les différents milieux géologiques (supérieure de plusieurs ordres de grandeur par rapport aux mêmes paramètres pour les actinides). Il est donc intéressant de donner la décomposition par isotopes majeurs du terme relatif au PFVL du *tableau III*. Ces valeurs sont indiquées dans le *tableau IV*.

Par ailleurs, le *tableau IV* rappelle aussi les quantités de PFVL produites dans le REP standard que nous avons pris

**Tableau IV** - Production des principaux PFVL (réacteurs REP chargé avec un combustible d'oxyde d'uranium, REP-UOX, avec un taux de combustion de 33 GWj/t).

Isotope (période)	Production des principaux PFVL (réacteurs REP chargé avec un combustible d'oxyde d'uranium, REP-UOX, avec un taux de comb. 33 GWj/t)		Contribution (% du total) à la source de rad. potentielle		
	Quantité d'isotope (kg/TWhe)	Quantité d'élément (kg/TWhe)	10 <sup>3</sup> ans	10 <sup>4</sup> ans	10 <sup>5</sup> ans
<sup>79</sup> Se (6,5 x 10 <sup>4</sup> ans)	0,018	0,209	6	5	3
<sup>93</sup> Zr (1,5 x 10 <sup>6</sup> ans)	2,8	13,7	12	12	14
<sup>99</sup> Tc (2,1 x 10 <sup>5</sup> ans)	3,2	3,2	36	37	36
<sup>126</sup> Sn (1,0 x 10 <sup>5</sup> ans)	0,079	0,2	24	24	17
<sup>129</sup> I (1,6 x 10 <sup>6</sup> ans)	0,66	0,8	16	16	22
<sup>135</sup> Cs (2,3 x 10 <sup>6</sup> ans)	1,40	14,0	6	6	8
Total	9,0	37	100	100	100

comme référence. Ce dernier *tableau* montre le fait important que les radio-isotopes à vie longue représentent parfois un pourcentage modeste de l'élément chimique.

### Physique de la transmutation par neutrons

Si l'on considère l'option de transmutation, en cohérence avec la demande de l'axe 1 de la loi Bataille de 1991, on ne connaît aujourd'hui d'autres voies réalistes que la transmutation par interaction des isotopes à transmuter avec des neutrons. Les neutrons peuvent être produits de plusieurs façons mais toutes les propositions font essentiellement appel à la fission par neutrons, comme moyen privilégié pour transformer l'isotope radioactif en question, en isotope stable ou radioactif avec une période nettement plus courte.

Faire appel à la fission signifie considérer la transmutation dans le contexte de la réaction en chaîne qui caractérise le fonctionnement du cœur d'un réacteur. Toutefois, étant donné que la transmutation perturbe le bilan neutronique qui permet à un réacteur de fonctionner, on peut se rendre compte simplement que la transmutation est essentiellement une question de disponibilité de neutrons. Les différents types de réacteurs à fission (critiques ou, comme on le verra par la suite, sous-critiques) sont caractérisés par des distributions différentes des neutrons en énergie : à neutrons plus ou moins thermalisés (réacteurs à eau sous pression, ou réacteurs à eau lourde, dont le spectre neutronique est très thermalisé) ou à neutrons rapides (réacteurs à neutrons rapides (RNR)). La fission des noyaux dont la transmutation serait à envisager (les actinides mineurs) varie en fonction de l'énergie des neutrons, et est toujours en compétition avec d'autres réactions, notamment la capture neutronique. Les sections efficaces des différents isotopes peuvent être moyennées dans les différents types de spectre, pour avoir une indication synthétique des qualités des différents spectres neutroniques, en particulier si l'on veut favoriser les fissions par rapport aux captures neutroniques. En effet, ce dernier processus « transmute » un isotope radioactif en un autre isotope, également radioactif.

Le *tableau V* donne les probabilités de fission et de capture (et leur rapport  $\alpha$ ) dans le spectre neutronique d'un REP

standard et d'un RNR de type Superphénix. Les données de ce *tableau* (exprimées en termes de sections efficaces) indiquent que d'un point de vue physique, les RNR présentent des avantages certains pour la transmutation.

### La transmutation des actinides mineurs dans les réacteurs nucléaires de technologie actuelle

En ce qui concerne les réacteurs nucléaires de technologie actuelle, le recyclage en réacteurs à fission des déchets à vie longue peut être envisagé selon deux voies :

- une voie dite homogène où les déchets sont mélangés au combustible standard,
- une voie dite hétérogène où les déchets sont séparés du combustible standard et placés dans des cibles spécifiques.

### Conséquences sur les caractéristiques des cœurs

En mode homogène, l'impact sur les caractéristiques physiques du cœur dû à l'introduction d'actinides mineurs tels que le neptunium ou l'américium est quasi proportionnel à la teneur en actinides présents initialement.

L'analyse des conséquences impose de limiter la quantité maximale admissible d'actinides mineurs dans le combustible à environ 5 % de la masse totale des isotopes lourds pour les réacteurs rapides et de 1 à 2 % pour les réacteurs thermiques.

En mode hétérogène, dans le cas où les cibles sont placées dans le cœur, les conséquences sont voisines de celles du mode homogène. Dans le cas où les cibles sont placées en périphérie du cœur, l'impact sur les caractéristiques physiques du cœur reste faible si la concentration en actinides est limitée pour éviter des problèmes de dégagement de puissance en cours d'irradiation.

### Performances de transmutation

Les performances d'incinération des actinides s'expriment en termes de taux de consommation qui traduisent la

Tableau V - Sections efficaces moyennes\* de fission  $\sigma_f$  et de capture neutronique  $\sigma_c$  ainsi que leur rapport  $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$ .

Isotope	Réacteur thermique REP			Réacteur rapide RNR		
	$\sigma_f$	$\sigma_c$	$\alpha$	$\sigma_f$	$\sigma_c$	$\alpha$
<sup>237</sup> Np	0,52	33	63	0,32	1,7	5,3
<sup>238</sup> Np	134	13,6	0,1	3,6	0,2	0,05
<sup>238</sup> Pu	2,4	27,7	12	1,1	0,58	0,53
<sup>241</sup> Am	1,1	110	100	0,27	2,0	7,4
<sup>242</sup> Am	159	301	1,9	3,2	0,6	0,19
<sup>242m</sup> Am	595	137	0,23	3,3	0,6	0,18
<sup>243</sup> Am	0,44	49	111	0,21	1,8	0,57
<sup>242</sup> Cm	1,14	4,5	3,9	0,58	1,0	1,7
<sup>243</sup> Cm	88	14	0,16	7,2	1,0	0,14
<sup>244</sup> Cm	1,0	16	16	0,42	0,6	1,4
<sup>245</sup> Cm	116	17	0,15	5,1	0,9	0,18
<sup>235</sup> U	38,8	8,7	0,22	1,98	0,57	0,29
<sup>239</sup> Pu	102	58,7	0,58	1,86	0,56	0,3

\* Les sections efficaces se calculent au moyen de l'expression  $\sigma = \int \sigma(E) \phi(E) dE / \int \phi(E) dE$ , où  $\phi(E)$  est la fonction de distribution des neutrons en énergie.

disparition de l'élément considéré par fission et par capture neutronique entre le début et la fin de l'irradiation. Ces taux varient entre 40 et 70 % selon les différentes voies de recyclage envisagées (tableau VI).

Plus intéressante est la proportion de l'élément détruit uniquement par fission. Ce taux de fission varie entre 20 et 30 % dans les RNR et seulement entre 5 % et 15 % dans les

REP mettant en évidence l'avantage intrinsèque du spectre neutronique rapide.

Selon les voies d'incinération étudiées, les niveaux de consommation en fonction de l'énergie produite varient entre 10 et 15 kg/TWhe. Ces taux sont nettement supérieurs au taux de production des actinides mineurs dans un REP à combustible standard UO<sub>2</sub> (de l'ordre de 3 kg/TWhe). Ces

Tableau VI - Bilans massiques après un recyclage.

	RNR de type EFR <sup>a</sup>		REP	
	(1500 Mwe) Recyclage homogène (teneur = 2,5 %) TCT = 120 GWj/t	Recyclage homogène dans les couvertures radiales (teneur 40 %)	Combustible MOX avec support de modulation = 3 (teneur = 1 %) TCT = 47,5 GWj/t	Combustible UOX Recyclage hétérogène dans le coeur TCT = 42 GWj/t
<b>Neptunium</b>				
Consommation (kg/TWhe)	10	13	11	15
Taux consommation (%)	60	60	45	38
Taux fissionné (%)	27	24	9	3
<b>Américium</b>				
Consommation (kg/TWhe)	9	14	10	8
Taux consommation (%)	45	60	42	70
Taux fissionné (%)	18	22	6	13

<sup>a</sup>European fast reactor.

performances permettent d'envisager des parcs nucléaires mixtes constitués, d'une part, par des réacteurs classiques et, d'autre part, par un nombre limité de réacteurs dédiés à l'incinération des déchets nucléaires à vie longue.

### Conséquences sur les grandeurs physiques du cycle du combustible

Des études détaillées indiquent que, pour les combustibles homogènes, les conséquences les plus importantes apparaissent à l'étape de la fabrication. En ce qui concerne le combustible neuf, l'ajout de neptunium à concurrence de 2,5 % de la masse des isotopes lourds ne modifie pas les niveaux de puissance, d'activité ou de sources neutroniques. Seul le débit de dose  $\gamma$  est majoré par rapport à un combustible standard MOX RNR.

Pour le combustible chargé en américium, la forte augmentation de la source  $\gamma$  (facteur 4) et du débit de dose associé (facteur 80) est due principalement à la contribution du neptunium 239 en équilibre avec son père l'américium 243.

Avec l'introduction de curium, les conséquences sont nettement plus accentuées, le débit de dose  $\gamma$  est augmenté (toujours par rapport à un combustible standard) de près d'un facteur 500 à cause des contributions du curium 243 et du curium 244 forts émetteurs de rayons  $\gamma$  durs. L'augmentation de la source neutronique est encore plus conséquente (facteur 1 700) principalement à cause du curium 244.

Ainsi, si le recyclage en mode homogène du neptunium apparaît tout à fait envisageable, les conséquences sur les sources  $\gamma$  et principalement neutroniques dues à l'introduction de curium rendent son recyclage en réacteur extrêmement difficile, voire impossible.

Pour l'américium, la situation est intermédiaire. Son recyclage en mode homogène nécessiterait un développement important des technologies actuelles et, en particulier, nécessiterait une chaîne de fabrication blindée. La voie hétérogène permettrait d'éviter de dégrader les caractéristiques du combustible standard en concentrant les problèmes sur un flux de matière réduit.

### Le mode hétérogène pour l'incinération de l'américium

Comme il a été mentionné précédemment, les pénalités importantes sur les paramètres physiques du cycle du combustible liées à la présence d'américium conduisent à privilégier le mode hétérogène pour cet élément.

Les différentes options évaluées dans une première phase des études nécessitaient, compte tenu des taux d'incinération limités atteints, un multirecyclage des cibles pour obtenir des performances conséquentes en terme de réduction de la radiotoxicité potentielle des déchets.

Ceci suppose la capacité de « recycler » le curium produit dans les cibles par transmutation de l'américium. Or, cet élément, comme on l'a vu, est très difficilement manipulable et conduit à de très sérieuses difficultés à toutes les étapes du cycle : séparation, fabrication, réacteurs.

Ainsi, différentes voies de gestion de curium méritent d'être explorées :

- l'entreposage. Les cibles d'américium après irradiation sont entreposées afin de laisser décroître naturellement les isotopes du curium les plus problématiques  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{243}\text{Cm}$  et  $^{244}\text{Cm}$  sur les isotopes du plutonium.

Le plutonium ainsi produit est alors recyclé avec le flux du plutonium standard. Cette voie nécessite la faisabilité d'un entreposage de longue durée de l'ordre du siècle ;

- le recycler au même titre que les autres actinides mineurs : américium et neptunium. Comme on l'a vu cette voie induit les difficultés majeures au niveau de la fabrication. Les performances en réacteur, de par la production d'actinides supérieurs (berkélium et californium) méritent d'être établies avec soin ;

- réduire sa production. Est-il possible d'envisager un mode d'irradiation des cibles d'américium permettant d'atteindre des taux de fission supérieurs à 95 % et ainsi éviter la nécessité du multirecyclage ? Pour ce faire, il faut privilégier un haut niveau de flux neutronique associé à des sections efficaces de fission élevées et accéder à de très longues durées d'irradiation.

Le concept de cibles dans des assemblages modérés placées en périphérie du cœur d'un RNR pourrait répondre à ces besoins : le flux neutronique  $\gamma$  est important et voisin de  $10^{15}\text{n/cm}^2\text{s}$ .

La thermalisation du spectre neutronique grâce à la présence d'un modérateur permet de réduire l'endommagement des matériaux et autorise donc des durées d'irradiation importantes tout en augmentant les probabilités de fission en particulier pour les isotopes 243 et 245 du curium.

Des études prospectives permettent d'établir qu'il est possible d'atteindre des taux de fission supérieurs à 95 % (la masse des isotopes lourds dans la cible en fin d'irradiation représente moins de 5 % de la masse initiale chargée) avec des durées d'irradiation voisines de 20 années pour des cibles placées en couronne périphérique d'un RNR.

Les taux d'endommagement dépassent les valeurs admises aujourd'hui, ce qui nécessite des progrès technologiques pour la tenue des matériaux.

D'autre part, ces performances sont atteintes pour des chargements initiaux d'américium limités dans les cibles ( $\cong 5\%$  en volume). Ainsi, la consommation d'américium, exprimée en kg/TWhe, s'en trouve réduite autour de 3 à 5 kg/TWhe, inférieure à la propre production du cœur qui est voisine de 8 kg/TWhe.

Cette option, de par ses avantages potentiels (non absolue nécessité du retraitement et du multirecyclage des cibles, résolution à la source du problème curium), mérite d'être examinée de manière approfondie et des études théoriques et expérimentales sont en cours ou programmées.

### Application à un parc de réacteurs

Les études effectuées au CEA, mais aussi dans plusieurs laboratoires à l'étranger, ont permis de définir la faisabilité du recyclage des actinides (principalement américium et neptunium) dans les différents types de réacteurs (RNR, REP), selon différents modes de recyclage (homogène, hétérogène, mixte).

Dans l'optique de réduire la radiotoxicité potentielle, il a été souligné que toute stratégie de multirecyclage du plutonium (quel que soit le but de cette stratégie : consommation du plutonium, stabilisation des stocks...) doit avoir pour enjeu essentiel de ne pas accroître la production d'actinides mineurs à masse élevée.

L'avantage des RNR (lié aux rapports  $\sigma_c/\sigma_f$  plus faibles dans ce type de spectre) a été illustré précédemment.

Pour essayer d'apprécier de façon plus réaliste les gains que l'on peut obtenir avec une stratégie de séparation/transmutation sur la toxicité des déchets, il faut faire appel à un scénario de gestion simultanée du plutonium et des actinides mineurs, l'objectif étant d'obtenir un équilibre entre production et disparition à l'intérieur du parc de l'ensemble plutonium, américium, neptunium et curium, avec une diminution significative de la source de radiotoxicité potentielle générée par ce parc et représentée par l'ensemble des pertes dans les différentes opérations de retraitement (et séparation) prévues pour l'alimentation du parc.

Plusieurs types de parc équilibrés peuvent être envisagés et ont été étudiés. Nous donnerons ici seulement les résultats concernant un parc mixte dans lequel le plutonium issu des REP-UOX est recyclé une seule fois dans des REP-MOX. Le plutonium résiduel, ainsi que la totalité des actinides mineurs, est recyclé dans des RNR de type avancé.

Dans ce parc, tous les réacteurs REP et RNR ont une puissance électrique de 1450 MWe. Le taux de combustion des REP-UOX est de 55 GWj/t.

Les cœurs de RNR correspondent à un cœur de type avancé (CAPRA) à combustible oxyde avec une teneur initiale en plutonium de 45 %.

Le neptunium est recyclé en mode homogène, mélangé au combustible dans le cœur. L'américium est recyclé en mode hétérogène sous forme de cibles placées en première couronne d'assemblages autour du cœur du réacteur.

Le curium est supposé entreposé pendant un siècle afin de laisser décroître le curium 244 en plutonium (période de 18,1 ans). Ce plutonium est alors recyclé avec le flux standard de plutonium. Le curium résiduel (essentiellement le curium 245) est quant à lui recyclé avec l'américium dans les cibles.

Seules les pertes lors des opérations de retraitement sont prises en compte avec des hypothèses de 0,1 % pour le plutonium et 1 % pour les actinides mineurs.

Les proportions en puissance installée des différentes composantes du parc à l'équilibre sont les suivantes :

REP-UOX	REP-MOX	RNR
70 %	10 %	20 %

La source de radiotoxicité potentielle, exprimée en Sv/TWhe, allant aux déchets et son évolution dans le temps est indiquée sur la figure 1. Elle est comparée aux sources radiotoxiques produites par un parc de même puissance constitué uniquement de REP-UOX géré en cycle ouvert, c'est-à-dire que la totalité du combustible irradié part aux déchets. On constate que les facteurs de réduction de la radiotoxicité aux déchets sont proches du facteur 100.

Ces réductions (très significatives) sont toutefois moins importantes que les gains potentiels théoriques (voisins d'un facteur 500) déterminés en considérant que seuls 0,1 % du

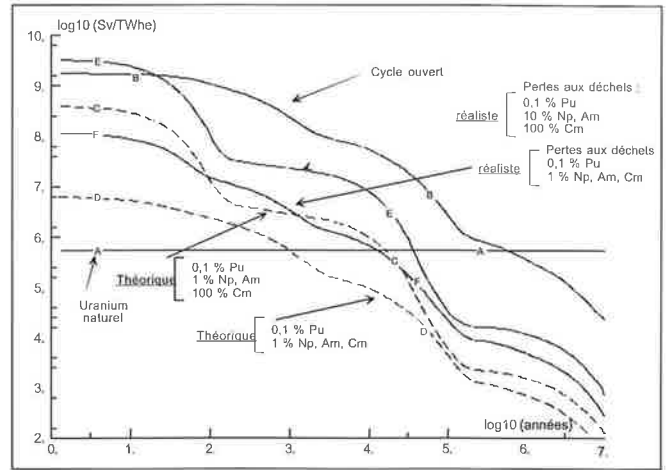


Figure 1 - Radiotoxicité potentielle et évolution dans le temps.

plutonium et 1 % des actinides mineurs produits par le parc de référence alimenté en combustible d'oxyde d'uranium partent aux déchets, le reste étant considéré comme entreposé ou bien consommé dans un système incinérateur idéal apte à brûler en un seul passage la totalité des actinides chargés et donc sans production de déchets supplémentaires.

## Des systèmes dédiés à la transmutation : les systèmes hybrides

### Une stratégie de cycle de combustible « à double strate »

Jusqu'ici nous avons considéré que la transmutation à l'aide de neutrons puisse avoir lieu dans des réacteurs à fission critiques de technologie connue.

On a vu cependant que dans le cas de l'Am (qui est l'isotope clé si l'on envisage l'utilisation du plutonium de façon standard), on aboutit à des stratégies de transmutation qui impliquent l'introduction massive de cibles d'Am dans une grande partie d'un parc de réacteurs (~ 30 %) et aussi des irradiations très longues, avec des problèmes potentiels d'endommagement et de tenue des matériaux (matériaux de gainage, mais aussi matériaux utilisés comme support de l'Am dans la cible).

Une alternative consiste à envisager ce que l'on peut appeler un cycle du combustible « à double strate » (voir figure 2).

L'idée, peut-être un peu schématique, est celle d'envisager une première strate où les réacteurs, les usines du cycle et les usines de fabrication du combustible sont tout à fait standard et/ou évolutionnaires. Le combustible irradié dans les REP, est retraité par le procédé PUREX ; le Pu récupéré est (multi)-recyclé dans les REP-MOX (éventuellement de type innovant) et ensuite en RNR (éventuellement de type CAPRA), le Np étant aussi un candidat au multirecyclage dans cette strate. Les actinides mineurs (Am, Cm) « passent » à la deuxième strate.

Dans cette seconde strate, on envisage un retraitement (parfois appelé « poussé ») pour extraire des déchets l'Am et Cm (trivalents), les ayant décontaminés autant que possible des lanthanides (trivalents).

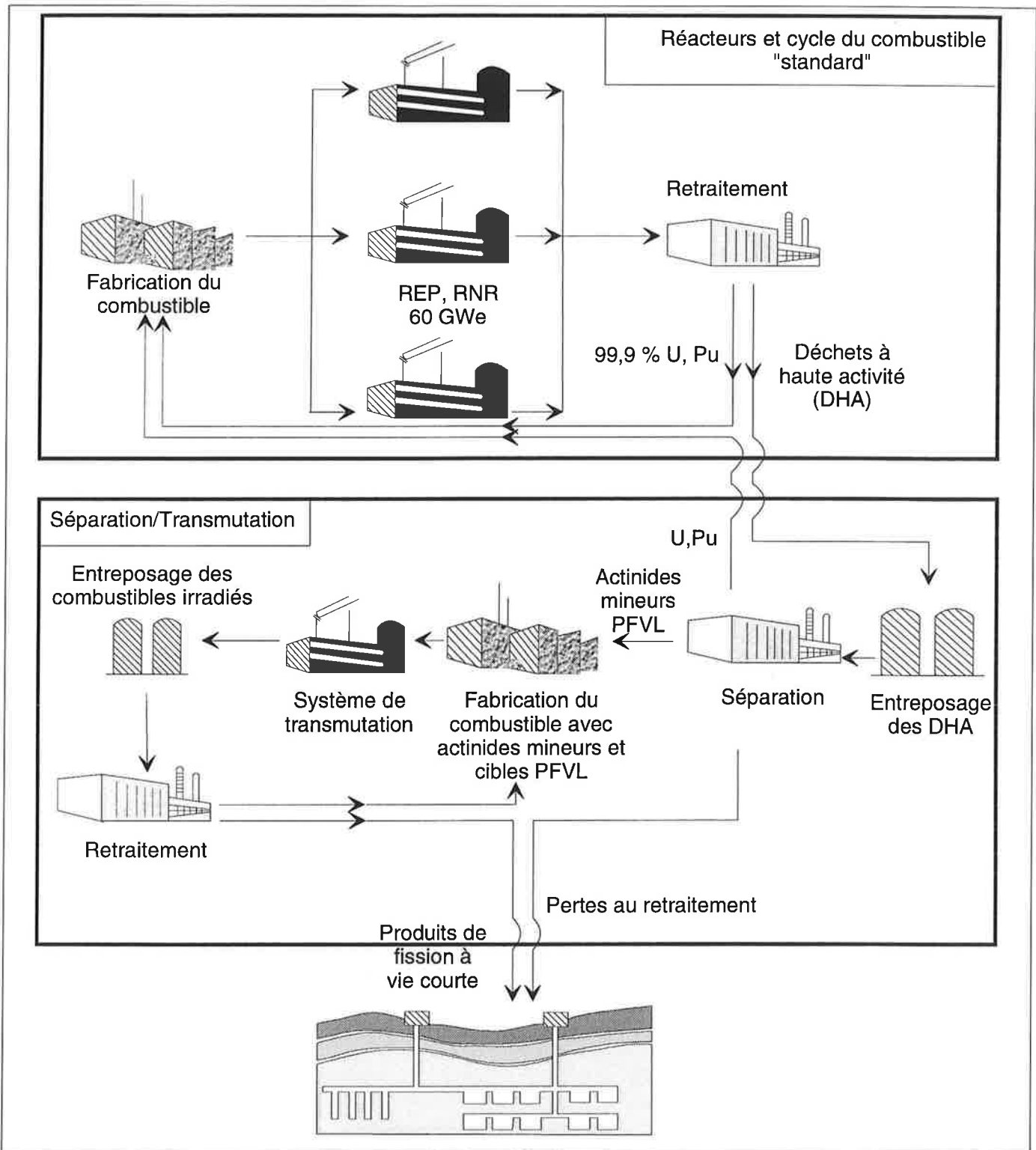


Figure 2 - Une stratégie « à deux strates » pour la gestion des déchets avec *séparation/transmutation*.

L'Am et Cm ainsi récupérés (éventuellement avec le Np) sont mis sous une forme qui reste à définir, pour être utilisés comme matériaux à consommer (combustibles) par fission dans le cœur de réacteurs critiques ou sous-critiques. Dans ce dernier cas, il s'agirait donc d'hybrides, qui seront définis plus loin.

En proposant ce concept de double strate, on est confronté à une question de fond.

En effet : pourquoi une double strate, sachant que du moins le Np et l'Am peuvent, en principe, faire l'objet de transmutation dans les réacteurs classiques, et que les programmes d'études de la transmutation au Japon et en France (dans le cadre de SPIN), consacrent des efforts parfois considérables à cette option. Une réponse à cette question consiste à dire que, si l'option d'une stratégie de séparation/transmutation s'avérait être utile en support du



stockage en formation géologique profonde, il pourrait être préférable de « concentrer » pour ainsi dire, dans une strate séparée du cycle les opérations certainement très innovantes sur des matériaux et des combustibles spécifiques, qui feraient ensuite l'objet de transmutation dans un nombre limité d'installations elles aussi de type très innovant. Des calculs de coin de table indiquent, de façon tout à fait approximative, que pour consommer environ 3 t/an d'américium et de curium issus d'un parc produisant ~ 60 GWe et qui recyclerait le plutonium (dans la première strate), il faut des installations qui font des fissions et produisent une puissance à la hauteur de ~ 4 à 5 GWe.

### Les réacteurs hybrides

Ces systèmes consistent en un couplage d'un accélérateur de particules (ex. protons), d'une cible et d'un réacteur sous-critique. Un schéma de principe est donné dans la figure 3. Le faisceau de protons (d'environ 1 GeV d'énergie et d'intensité de courant  $i \geq 10$  mA), interagit avec le matériau de la cible et par spallation donne lieu à un grand nombre de neutrons. Ces neutrons agissent comme source pour le réacteur sous-critique, en assurant son fonctionnement stable. Dans le réacteur sous-critique se produisent des fissions (donnant lieu donc à transmutations et production d'énergie) de façon tout à fait identique au cas du réacteur critique.

Ces réacteurs peuvent donc fonctionner à un niveau de sous-criticité significatif (par exemple avec un facteur de multiplication  $K_{\text{eff}}$  de  $\approx 0,90 \div 0,95$ ) et tel que l'on puisse réduire de beaucoup la probabilité d'accidents de réactivité (du type de celui de Tchernobyl). Ceci ne veut pas dire « sûreté illimitée », parce que, dans un réacteur critique ou sous-critique, la préoccupation majeure reste celle de l'évacuation de la puissance résiduelle après arrêt de la réaction

en chaîne, et qui ne dépend pas du niveau de sous-criticité (criticité) en fonctionnement, mais seulement de la puissance produite dans le cœur du réacteur.

Par ailleurs, l'entretien du fonctionnement du système hybride nécessite l'alimentation de l'accélérateur par une fraction  $f$  de l'énergie  $E_r$  produite dans le réacteur sous-critique (voir figure 3), et cette fraction sera d'autant plus élevée que la sous-criticité (c'est-à-dire  $1-K_{\text{eff}}$ ) sera grande.

Toutefois, si l'on veut « concentrer » les actinides mineurs (Am, Cm...) à transmuter (fissionner) dans un nombre limité d'installations, et si l'on veut pallier aux difficultés physiques d'utilisation de combustibles « exotiques » dans un réacteur critique, il est certain que la sous-criticité est un élément important dans la démarche de recherche d'un système dédié à la transmutation.

### Le potentiel des systèmes hybrides pour la transmutation

Nous avons vu plus haut qu'une condition nécessaire pour assurer la transmutation d'actinides mineurs (ou produits de fission radioactifs à vie longue) dans un réacteur, est représentée par un bilan neutronique favorable. Les considérations qui amènent à privilégier les cœurs de réacteurs à neutrons rapides restent les mêmes pour un réacteur sous-critique. De plus, à cause de la sous-criticité, les systèmes hybrides offrent un surplus de neutrons disponibles pour la transmutation. Ce surplus est d'autant plus significatif que le réacteur est sous-critique (c'est-à-dire  $1-K_{\text{eff}}$  grand). Vers 1950, les systèmes hybrides avaient été proposés pour utiliser les neutrons pour produire de la matière fissile (à partir de  $^{238}\text{U}$  ou du  $^{232}\text{Th}$ ). Ces systèmes ont été étudiés plus récemment et par plusieurs groupes dans le monde (Japon, États-Unis), justement dans l'optique de la transmutation des déchets.

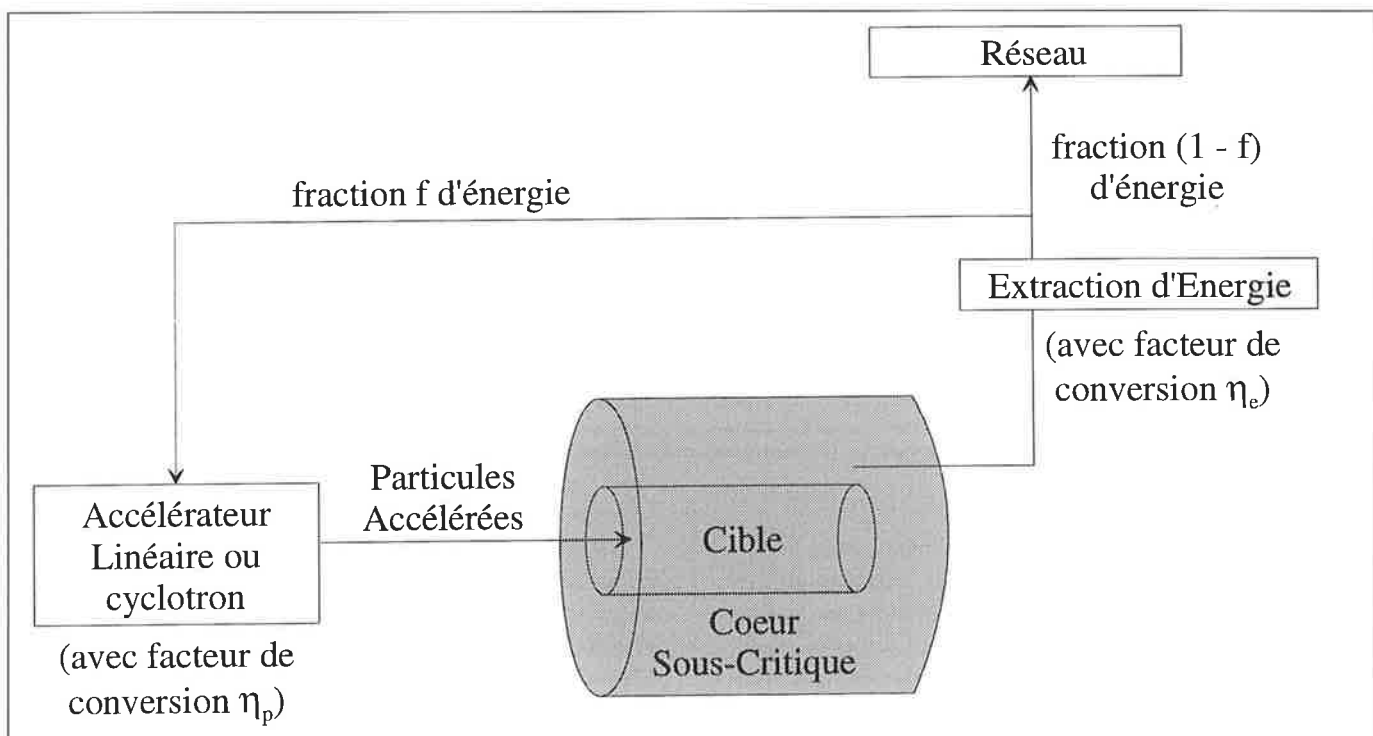


Figure 3 - Système hybride.

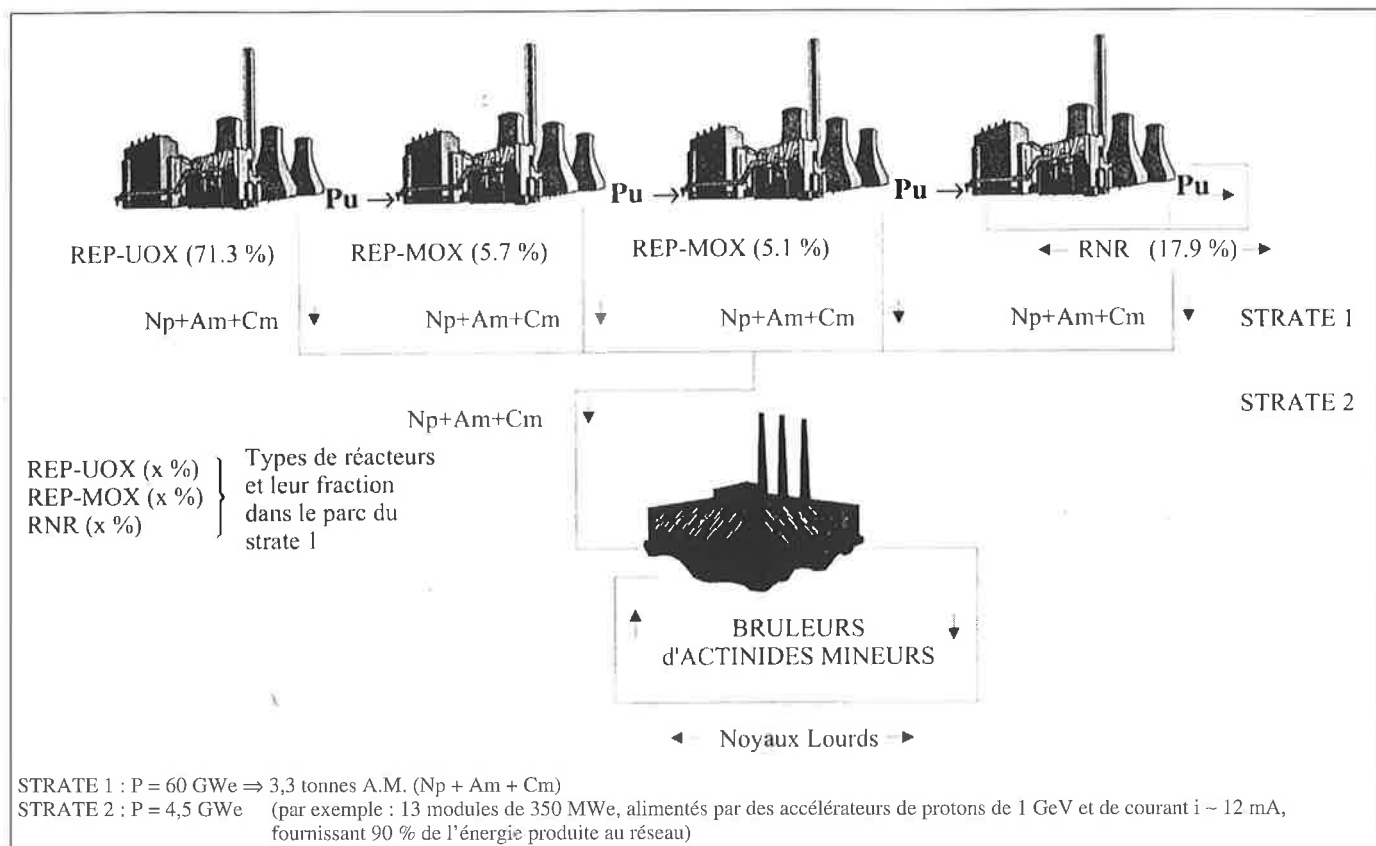


Figure 4 - Schéma d'un parc de réacteurs et d'un cycle du combustible à double strate pour la gestion des déchets radioactifs à l'aide de systèmes hybrides.

Une application particulière est celle proposée par C. Rubbia, qui envisage l'utilisation des hybrides pour la production d'énergie (ce qui est envisageable à partir du schéma de la figure 3), en remplacement des réacteurs à fission actuels. En France, de nombreuses études (théoriques et expérimentales) sont consacrées à la validation des principes physiques de ces systèmes. D'autres études ont permis de démontrer que, à l'aide d'une seconde strate (selon le schéma de la figure 2) comportant des hybrides, on peut gérer l'ensemble des actinides mineurs produits dans un parc de réacteurs classiques (première strate) produisant 60 GWe.

Le schéma est donné dans la figure 4, où l'on précise le type de réacteurs de la strate 1. Dans la strate 2, les réacteurs sous-critiques pour la transmutation de l'Am, Cm et Np sont du type dit à sels fondus produisant au total 4,5 GWe (dont 10 % est utilisé pour alimenter les accélérateurs).

Avec cet ensemble de réacteurs à l'équilibre, et en supposant comme précédemment des pertes aux déchets de 0,1 % pour l'U et le Pu et de 1 % pour les actinides mineurs, on obtient une réduction d'un facteur environ 100 de la source de radiotoxicité potentielle dans le stockage géologique, par rapport au cas du cycle ouvert, et cela sur toute l'échelle des temps, de ~ 100 ans à  $10^6$  ans après enfouissement.

## Conclusions

La transmutation des déchets radioactifs à vie longue par des neutrons est basée sur une physique bien maîtrisée, qu'il s'agisse du champ neutronique d'un réacteur à fission classique ou du champ neutronique d'un milieu multiplicateur

sous-critique alimenté par un accélérateur (ou une source de neutrons de 14 MeV).

Les modèles et les données nucléaires utilisés pour les calculs nécessitent une validation détaillée, pour garantir la fiabilité d'un projet de réalisation, même à échelle modeste. Cependant, ces mêmes modèles et données permettent d'effectuer des calculs d'orientation, dont les résultats et les tendances sont tout à fait significatifs.

A l'heure actuelle, un certain nombre d'options ont été étudiées et il est possible d'effectuer les premières études de scénarios, qui concernent les réacteurs (critiques ou sous-critiques), leurs performances, et les cycles du combustible associés. On n'a pas abordé ici les aspects concernant la chimie et les facteurs de séparation utilisés pour mener les études de scénario. Cependant, des études importantes sont menées en France (dans le cadre du programme SPIN) et à l'étranger, et des résultats encourageants sont obtenus au niveau des expérimentations de laboratoire.

De plus, rien n'a été dit ici sur les études concernant les combustibles adaptés à la transmutation, à base d'actinides mineurs, qui doivent être développés. De nombreuses études fondamentales (propriétés physico-chimiques des composés...), des fabrications expérimentales et des irradiations en réacteur ont été cependant lancées. Ces études et ces expérimentations concernent des combustibles homogènes, ou des cibles hétérogènes tout à fait cohérentes avec les études physiques dont on a fait état ici. Ce vaste programme de recherche théorique et expérimentale devra donner les indications demandées par le législateur, dans le délai prévu, pour permettre une prise de décision de la part du parlement aux alentours de 2006.