

Séparation et recyclage des actinides

Enjeux, avancées et perspectives

Bernard Boullis et Michaël Lecomte

Résumé La séparation des éléments actinides des autres radionucléides ouvrirait la voie à de nouveaux types de gestion des déchets radioactifs. C'est pourquoi la séparation du neptunium, de l'américium et du curium a fait l'objet d'importantes recherches depuis une dizaine d'années. Une nouvelle molécule extractante, de la famille des diamides, a été sélectionnée suite à un large programme d'études expérimentales et de modélisation qui ont démontré sa capacité à séparer les actinides et les lanthanides des autres éléments. Une installation pilote, exploitée dans le laboratoire « chaud » Atalante a ensuite permis d'établir la faisabilité industrielle du procédé. L'étape suivante, la séparation entre les actinides et les lanthanides, est encore en phase d'études de laboratoire ; elle fait l'objet d'intenses efforts au plan international et est déjà marquée de succès très prometteurs.

Mots-clés Extraction chimique, diamides, actinides, séparation.

Abstract **Separation and recycling of actinide elements: objective, progress and perspective**
A prospective route toward the handling of radioactive waste involves a full separation of actinide elements from the other radionuclides, to apply to them specific treatments. Thus, the separation from other elements of the used fuel of neptunium, americium and curium has promoted recent research programs over the last ten years, which are summed up here. A new extracting molecule, from the diamides family, has been selected after a thorough survey with experimental trials and modelling, which proved its capacity to extract the actinides and the lanthanides from other elements. A pilot installation, run in the Atalante hot facility, has established the industrial feasibility of the process. The further separation between actinides and lanthanides is still in the laboratory stage and the object of numerous international efforts; very promising results have already been obtained.

Keywords Chemical extraction, diamides, actinides, separation

La chimie séparative des actinides, après avoir été le vecteur même de la découverte de ces propres éléments par Abelson, Mc Millan et Seaborg à Berkeley il y a près de 60 ans, a été depuis lors étroitement associée au développement des applications de la fission, tout d'abord dans le domaine de la défense (pour récupérer du plutonium), puis avec l'essor de la filière électronucléaire : la séparation des actinides est en effet une problématique essentielle de ce qu'il est convenu d'appeler le cycle du combustible nucléaire. Dans sa partie amont tout d'abord, où il s'agit d'extraire, de concentrer, de purifier l'uranium, puis d'enrichir sa teneur en isotope fissile avant son irradiation.

Mais c'est dans l'aval du cycle, au terme du séjour du combustible dans le réacteur, que la question de la séparation des actinides prend sa plus grande dimension, tant au regard des enjeux – qui sont considérables – qu'en raison de la richesse, la complexité et l'agressivité des milieux dans lesquels ces séparations doivent être menées.

L'étude de procédés et techniques séparatives pour les actinides, au service des stratégies de gestion du combustible nucléaire – et notamment le recyclage du plutonium et de l'uranium résiduel – a donc constitué un champ de recherches important depuis près d'un demi-

siècle, débouchant sur des réalisations industrielles d'envergure (les usines de retraitement de La Hague en sont sans doute la forme la plus aboutie). Mais la décennie écoulée a vu des évolutions importantes ; les enjeux se sont déplacés, avec la préoccupation croissante d'extraire des déchets ultimes les éléments les plus nocifs à long terme : la loi de 1991* l'inscrit comme premier axe de recherche pour l'étude des voies de gestion des déchets radioactifs HAVL* [1]. Les concepts envisageables pour mener à bien les séparations visées se sont par ailleurs enrichis (notamment avec l'émergence de procédés dits « pyrochimiques », à côté des plus traditionnels procédés hydrométallurgiques), et les approches connaissent bien sûr elles-mêmes des évolutions, avec à la fois de nouvelles capacités de simulation permettant d'aborder des phénomènes plus complexes, et aussi les formidables progrès pour observer la matière à différentes échelles.

Cet article propose de dresser un panorama général du domaine, en présentant successivement les enjeux de la séparation des actinides, les moyens d'accomplir ces séparations, en insistant sur ce qui apparaît comme les principales avancées récentes de la recherche, et enfin en donnant quelques pistes pour le futur.

Pourquoi séparer et recycler les actinides ?

Le combustible nucléaire dit « usé » (CU) présente une extrême diversité à l'issue de son séjour en réacteur. La transformation de l'uranium initial, par des réactions de fission et de capture neutronique, conduit en effet à la formation de radionucléides très divers à de nombreux égards : diversité de nature des éléments chimiques présents (qui prennent place dans l'ensemble des colonnes du tableau de classification périodique, voir *figure 1*), de propriétés chimiques, physiques, radioactives...

Les actinides y occupent une place remarquable : les actinides dits « majeurs », **uranium et plutonium**, les plus abondants (respectivement près de 95 % et 1 % dans le combustible oxyde standard) ; mais aussi les autres, dits « mineurs », **neptunium, américium, curium**, en quantités bien moindres (près de 1 % du combustible standard), mais que le recyclage des premiers contribue à faire croître. Et l'intérêt d'une gestion différenciée des actinides trouve son sens tant dans le potentiel énergétique aisément valorisable de certains noyaux fissiles (^{239}Pu , ^{235}U) que dans leur contribution essentielle à la radiotoxicité* à long terme du CU.

Il est intéressant d'analyser l'intérêt d'une gestion séparée des actinides à l'aune des critères qui ressortent de la réflexion du « forum génération IV », regroupant les experts de divers pays (à l'initiative des États-Unis), pour essayer de dégager les concepts paraissant les plus attractifs pour les nouveaux systèmes nucléaires (réacteurs et leur cycle du combustible) qui pourraient être mis en œuvre au tournant de ce siècle. Il apparaît que certes les critères de sûreté et économiques sont essentiels et doivent guider la conception des réacteurs du futur, mais aussi que ce sont les options retenues pour le cycle du combustible qui permettront, le cas échéant, un développement durable de l'énergie nucléaire. En particulier, la stratégie de gestion des actinides apparaît déterminante, tant en regard de la valorisation des ressources naturelles que de la préservation de l'environnement, et vraisemblablement aussi en égard au risque de prolifération des armes nucléaires.

S'agissant de la pleine **valorisation des ressources**, c'est assurément un enjeu essentiel à moyen terme : les réserves d'uranium connues dans le monde s'élèvent aujourd'hui à environ 4 mégatonnes (Mt) et les ressources dites « spéculatives » sont estimées à près de 17 Mt. Cela peut procurer en cycle « ouvert » (sans recyclage des actinides) une durée avant épuisement évidemment dépendante de la demande énergétique et de la hauteur de la contribution de l'énergie nucléaire à la satisfaction de ces besoins, que des scénarios qualifiés de « médians » situent avant la fin de ce siècle ! [2] – l'énergie nucléaire satisfait aujourd'hui 7 % de la demande mondiale en énergie et la consommation d'uranium est d'environ 60 000 t/an.

Le recyclage de U et Pu apparaît donc la condition d'un nucléaire durable. Mais encore faut-il que les réacteurs permettent un recyclage récurrent en tirant tout le parti

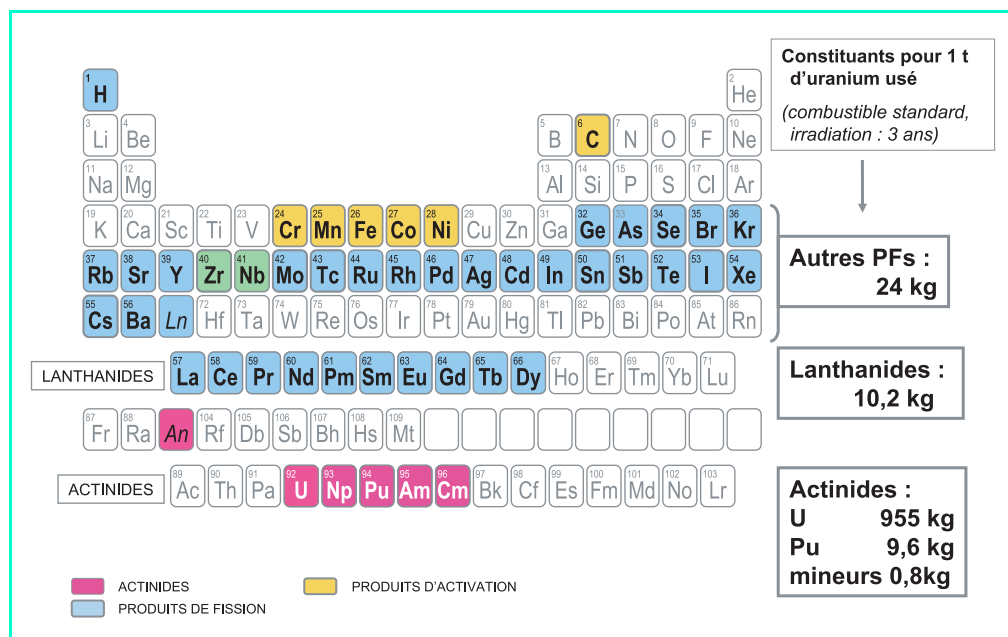


Figure 1 - Les principaux constituants du combustible nucléaire usé.

possible de ces matières. Cela semble être difficilement à terme le cas des réacteurs à eau actuels : le recyclage du Pu (à un degré moindre de U) peut certes permettre une économie de matières premières d'environ 15 % ; mais une évolution défavorable du « vecteur isotopique » à chaque recyclage (par accumulation d'isotopes pairs moins bien fissiles) limite, dans les réacteurs à eau actuels, la possibilité d'un « multirecyclage ». En fait, seuls des réacteurs « à neutrons rapides » sont à même de fissionner efficacement les divers isotopes en présence, et donc de valoriser pleinement le potentiel énergétique de l'uranium naturel. Par des recyclages successifs au sein de tels réacteurs, on pourrait accroître de près d'un facteur 50 l'énergie extraite d'une même quantité de minerai : les perspectives d'épuisement de matières premières seraient dans ce cas repoussées de plusieurs dizaines de siècles !

Autre exigence, celle d'une gestion sûre des déchets.

Et pour cela, le recyclage des actinides peut réduire considérablement le terme source, le déchet ultime. Il faut en premier lieu réduire la quantité de déchets à gérer, donc le besoin de stockage, car les actinides majeurs représentent plus de 90 % du CU.

Mais cela peut permettre aussi de réduire de façon tout à fait significative la toxicité à long terme des déchets. En effet, si l'on analyse la contribution respective de chacun des composants du CU à sa radiotoxicité au cours du temps, on observe :

- que quelques dizaines d'années après son déchargement, c'est le Pu qui constitue, et de loin, le principal contributeur ;
- qu'après quelques siècles, la contribution des actinides mineurs devient largement prépondérante devant celle des produits de fission.

Ainsi, pour réduire la toxicité des déchets ultimes sur la période allant de quelques siècles à près de 10 000 ans, il convient en premier lieu d'en extraire le Pu, en second lieu les actinides mineurs.

Cette moindre toxicité résiduelle si l'on retire les actinides s'accompagne par ailleurs d'une réduction importante du dégagement de chaleur. Et cela présente une incidence favorable sur le stockage en couches géologiques profondes

des déchets ultimes, en réduisant de façon significative les températures de la roche « hôte » à échéance de quelques siècles, et en ouvrant ainsi la voie à des dispositifs de stockage plus denses. Il apparaît que si les produits de fission sont les principaux contributeurs à la puissance calorifique des CU durant les premières décennies qui suivent son déchargement, le Pu et l'Am deviennent, après près d'un siècle, les émetteurs prépondérants.

La question de la **résistance des diverses options de cycle vis-à-vis des risques de prolifération** est particulièrement complexe, et il est difficile de dégager sur ce point des conclusions simples. Si l'extraction des actinides peut apporter un détriment en isolant momentanément de la matière stratégique (certains isotopes du Pu sont particulièrement fissiles), leur recyclage ultérieur en réacteur les dénature (par l'évolution défavorable pour la fission du vecteur isotopique évoquée plus haut) ou les fait disparaître, ce qui est évidemment favorable. On voit aujourd'hui émerger le concept de « co-recyclage » des actinides, lesquels seraient extraits et recyclés ensemble : les matières stratégiques seraient plus diluées et la présence d'isotopes très radioactifs (tel que ^{244}Cm) constituerait une barrière intrinsèque qui renforcerait encore les difficultés d'accès à ces matières. Un attrait complémentaire d'une telle option de co-gestion est qu'elle devrait conduire à simplifier, donc à réduire des coûts du recyclage.

Il apparaît donc que la séparation et le recyclage (dans des réacteurs appropriés) des actinides peut présenter un intérêt au regard de divers critères. On peut même considérer qu'il s'agit de la seule option rationnelle de gestion des matières nucléaires pour le futur !

Et l'on peut résumer comme suit l'évolution des « cibles » de la recherche pour la séparation des actinides : **uranium et plutonium** dans les décennies passées, **actinides mineurs**, en complément aujourd'hui et **actinides en bloc**, peut-être demain pour la nouvelle génération de systèmes nucléaires.

Comment séparer les actinides des autres constituants du CU ?

La récupération des actinides dans les CU est essentiellement le fait de procédés d'extraction par solvant, après mise en solution aqueuse de l'ensemble de ses constituants. Depuis près d'un demi-siècle, le procédé PUREX* a été développé, mis en œuvre, amélioré, d'abord aux États-Unis, puis ailleurs dans le monde : les grandes usines récemment mises en service en France (La Hague), au Royaume-Uni (Sellafield), ou sur le point de l'être au Japon (Rokkashomura), sont basées sur ce même procédé, qui tire parti de la remarquable et sélective affinité du phosphate de tributyle (« TBP ») envers U et Pu (figure 2) [3].

Pourquoi un tel succès, aussi unanime et aussi durable ? Cela tient semble-t-il avant tout aux avantages inhérents aux procédés d'extraction par solvant : ce sont des procédés **puissants**, et ce sont aussi des procédés **propres** ! Les taux de récupération des matières sont de l'ordre de 99,9 % à La Hague, et les facteurs d'épuration vis-à-vis des

produits de fission sont supérieurs à 10^8 ! Et cela est obtenu en générant une faible quantité de déchets technologiques, ce qui constitue évidemment un atout essentiel pour des procédés opérant sur des matières radioactives.

Forts de ces résultats, ce sont encore de tels procédés d'extraction qui font l'objet de la plupart des recherches en cours. Ces recherches visent essentiellement à préparer des réponses aux enjeux de demain : s'adapter à l'évolution des combustibles, diminuer le coût du traitement (en simplifiant les procédés, en adoptant des technologies plus compactes...), et aussi, on l'a vu, compléter le travail de séparation en s'attachant à récupérer aussi les actinides mineurs : Np, Am et Cm.

Celle du Np est la plus aisée : les propriétés chimiques de cet élément s'apparentent, dans une assez large mesure, à celles de U et Pu et le TBP présente aussi une affinité notable envers certaines espèces du Np. Des adaptations opératoires du procédé PUREX sont donc de nature à permettre sa récupération.

La récupération de l'Am et du Cm en aval du procédé PUREX est beaucoup plus délicate et a focalisé d'importants efforts de recherche depuis plus d'une décennie ! On cherche à extraire les ions Am^{3+} et Cm^{3+} de solutions très acides et très radioactives. Le procédé PUREX n'offre aucune potentialité pour cela (en raison de la très faible affinité du TBP envers ces ions) et il convient de concevoir de nouvelles architectures moléculaires, à la fois sélectives et résistantes (aux agressions hydrolytiques et radiolytiques du milieu dans lequel on doit opérer). La question de la sélectivité est d'autant plus délicate qu'une très large proportion des produits de fission présents en solution (et dont il convient de séparer Am et Cm) sont des lanthanides : il y a en fait près de 50 fois plus d'ions lanthanide que d'ions actinide en solution, et leurs propriétés chimiques très semblables compliquent considérablement la mise au point d'extractants sélectifs. La mise en œuvre d'extractants à atome donneur « dur » [4], tel que l'oxygène dans les groupements carboxyliques, bien adaptés à la complexation d'ions « durs » tels que Am^{3+} et Cm^{3+} par des liaisons de type « ionique », permet certes leur extraction mais accompagnée de celle des ions lanthanide.

On peut penser tirer parti du caractère un peu moins « dur » des ions Am^{3+} et Cm^{3+} par comparaison aux ions Ln^{3+} (l'extension spatiale des 4f est moindre que celle des 5f, d'où une tendance légèrement plus forte à la covalence chez ces derniers). Cela conduit à rechercher des extractants à

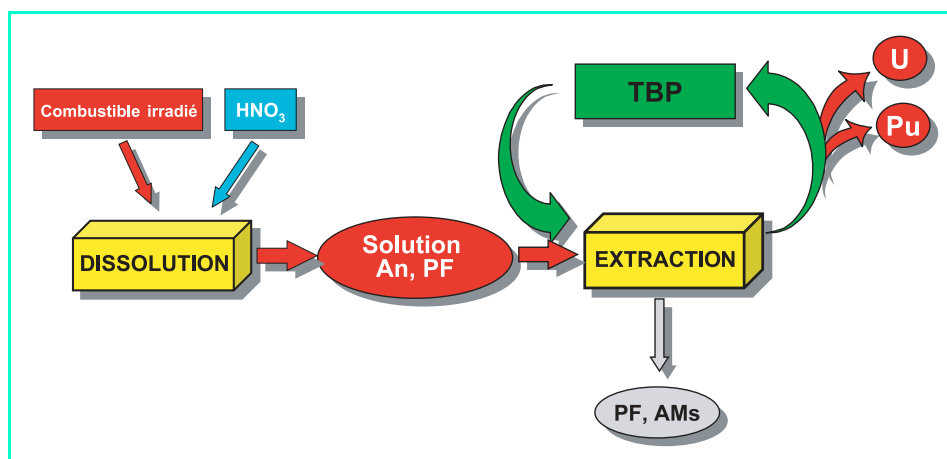


Figure 2 - Le principe du procédé PUREX.

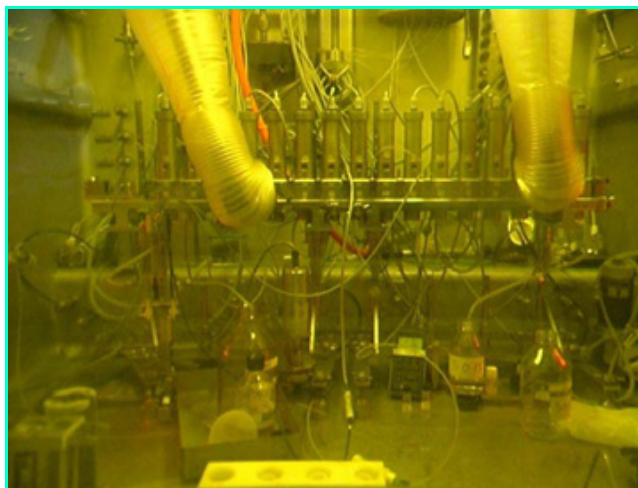


Figure 3 - Expérience de la séparation poussée sur échantillons réels de combustible usé dans les laboratoires d'Atalante, mettant en œuvre une batterie d'extracteurs centrifuges de laboratoire.

atome donneur mou, tels que l'azote (dans les motifs pyridinyles par exemple) ou le soufre. On peut obtenir des sélectivités intéressantes entre An^{3+} et Ln^{3+} , mais on se heurte dans ce cas à un problème de sélectivité vis-à-vis des éléments de transition et surtout vis-à-vis du proton, très abondant dans ces solutions très acides. Aussi, la plupart des équipes engagées dans ces recherches optent-elles aujourd'hui pour une stratégie en deux étapes : une première mettant en œuvre des extractants donneurs « durs » de co-extraction des actinides et lanthanides, lesquels sont ainsi séparés du reste des produits de fission ; et ensuite, une seconde étape où l'on met en œuvre des donneurs « mous » dans des conditions opératoires ajustées.

Ces dernières années ont vu la concrétisation d'efforts de recherche engagés de longue date au CEA et avec le concours de nombreuses autres équipes (notamment sous l'égide de la Commission européenne) [5] autour des molécules extractantes de la famille des **diamides**. Ces extractants bidendates présentent une forte affinité pour les actinides – et lanthanides – trivalents. Si les liaisons entre métal et ligand sont de nature ionique, l'extractant et le solvate extrait sont neutres (co-extraction de contre-ions nitrate).

Au terme d'un effort d'optimisation du motif moléculaire au regard des divers critères à considérer (affinité, sélectivité, mais aussi solubilité dans les diluants aliphatiques et stabilité chimique), la molécule de diméthyl-dioctyl-hexylethoxy-malonamide (« DMDOHEMA ») a été sélectionnée parmi près d'une centaine de diamides synthétisés et expérimentés. Il s'est agi ensuite de concevoir ce que pourrait être un procédé de séparation envisageable à l'échelle industrielle, qui a été mis à l'épreuve à l'échelle de laboratoire mais sur des échantillons réels de CU. Ces essais, menés dans l'installation Atalante à Marcoule (figure 3), mais aussi à l'Institut des Transuraniens de Karlsruhe, ont permis de conclure à la viabilité du concept (figure 4) : on peut extraire à mieux que 99 % américium et curium – avec les lanthanides – à

l'aide d'une molécule qui s'avère par ailleurs endurante et régénérable. Une étape importante devrait être franchie en 2005 avec une expérimentation dite démonstrative qui sera menée dans Atalante sur près de 10 kg de CU, en mettant en œuvre des technologies représentatives de celles utilisées à l'échelle industrielle, et intégrant l'ensemble des opérations élémentaires à considérer.

L'étape suivante, celle de la **séparation entre ions actinide et lanthanide**, fait encore aujourd'hui l'objet d'une recherche beaucoup plus foisonnante. Des options très diverses sont à l'étude en Europe, au Japon, aux États-Unis : échangeurs cationiques ou extractants neutres, composés azotés ou soufrés, seuls ou en association synergique... Ici la difficulté ne tient pas tant à l'obtention d'une très grande sélectivité entre ions actinide et lanthanide (cela est effectivement accessible avec les divers donneurs « mous »), mais plutôt à l'obtention d'une affinité suffisante pour obtenir des rendements d'extraction convenables à partir de solutions acides. Des performances exceptionnelles ont été obtenues par des équipes en Chine ou en Europe, respectivement avec un échangeur cationique soufré (CYANEX) ou avec la bis-triazinyl-pyridine (BTP) ; mais ces molécules se sont ensuite révélées présenter des détriments qui apparaissent aujourd'hui rédhibitoires vis-à-vis des critères respectivement de solubilité des complexes formés et de stabilité. Cela illustre bien la dimension multicritères de l'optimisation : le plus fort, le plus sélectif des extractants n'est souvent pas le meilleur ! Et s'agissant des recherches menées en France dans le cadre de la loi de 1991, c'est dans cet esprit que sont aujourd'hui analysées les diverses options encore ouvertes pour mener à bien cette difficile étape de séparation entre ions actinide et lanthanide (figure 4).

Une dernière étape dans ce processus de récupération des actinides mineurs pourrait concerner la séparation entre Am et Cm. Inutile dans le cas d'un co-recyclage de ces éléments, elle pourrait s'avérer nécessaire si l'on envisageait des modes de gestion différenciés de ces éléments. Mais elle ne présente pas de difficulté particulière : on peut mettre à profit les différences (même faibles) dans les affinités respectives de Am^{3+} et Cm^{3+} envers un extractant tel qu'un diamide pour mener à bien, le cas échéant, une telle séparation.

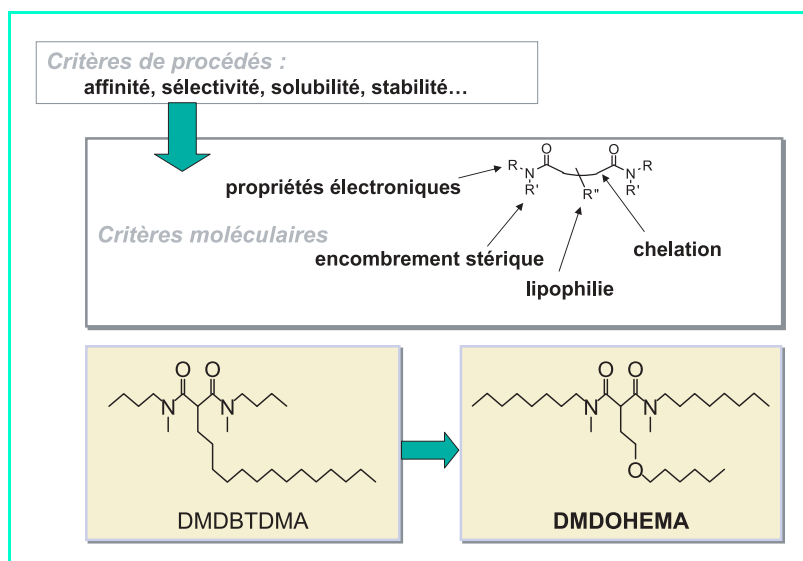


Figure 4 - Optimisation de l'extractant pour le procédé DIAMEX.

La recherche a donc été particulièrement soutenue, foisonnante et productive ces dernières années dans le domaine de l'extraction sélective des actinides mineurs [6], et l'on peut penser que l'on disposera sous peu de concepts viables pour, le cas échéant, récupérer dans les CU les actinides mineurs en complétant les installations actuelles mettant en œuvre le procédé PUREX.

Quels sont les axes de recherche que l'on peut entrevoir au-delà dans le domaine de la chimie séparative des actinides ?

En premier lieu, il s'agit d'améliorer, de consolider les très importants acquis – les procédés hydrométallurgiques développés jusqu'ici ont fait preuve de leurs remarquables capacités à répondre efficacement aux enjeux de séparation –, de s'adapter à l'évolution des stratégies. Mais des marges de progrès existent ; on peut envisager en particulier si l'objectif d'une séparation « en bloc » des actinides se voit affirmé, de chercher à « contracter » l'ensemble des opérations d'extraction successives, et de rechercher des systèmes extractants aptes à gérer conjointement actinides majeurs et mineurs. De telles recherches ont d'ores et déjà été entreprises au CEA pour le développement de concepts de cycle qui pourraient être adossés à un parc de réacteurs à neutrons rapides.

Il paraît tout aussi important de progresser dans la maîtrise des phénomènes élémentaires qui sont à la base des développements. On sait aujourd'hui concevoir des procédés efficaces, mais il y a aussi encore beaucoup de zones d'ombres dans l'explication de ce qui est observé... L'extraction par solvant met en jeu une succession de processus divers, depuis les interactions électroniques entre l'ion métallique et le ligand – la clé de la sélectivité – jusqu'aux phénomènes de solvation et d'organisation des édifices dans les solvants. Et il est apparu en diverses occasions, lors des travaux menés ces dernières années, que d'importantes lacunes jalonnaient notre maîtrise de ces phénomènes fondamentaux. C'est par exemple le déficit d'explication à propos des spectaculaires performances évoquées plus haut de la BTP pour la séparation entre actinides et lanthanides : ses performances sont incomparablement supérieures à celles d'autres polyazines de structure comparable, sans que cela puisse être correctement expliqué (facteurs de séparation très élevés, même en présence de concentrations importantes de protons, et sans recours à une association synergique). Il y a là assurément un enjeu primordial de connaissance, car on touche au cœur des questions de séparation !

Un autre exemple intéressant est celui de récentes observations effectuées par une équipe du CEA, par diffusion de neutrons aux petits angles sur des solutions organiques de diamides après extraction de cations métalliques. Ils ont mis en évidence des agrégats sous forme de « cœurs polaires » (les ions et les molécules d'eau) entourés de molécules de diamide, dans des proportions très éloignées de ce que l'on pourrait appeler « l'image stœchiométrique » (figure 5) : les interactions supramoléculaires sont aussi un vaste champ pour des investigations complémentaires, avec là encore des enjeux importants (comme dans l'exemple choisi, la maîtrise des phénomènes de solubilité). D'une façon générale, maîtriser, modéliser les

différents aspects de l'extraction des actinides reste un défi scientifique de première importance.

Si les procédés hydrométallurgiques évoqués jusqu'ici constituent, pour les raisons évoquées précédemment, la principale voie de recherche pour la récupération des actinides dans les combustibles nucléaires, d'autres moyens sont envisageables. On peut par exemple imaginer que s'il s'agit de séparer en bloc l'ensemble des actinides de celui des produits de fission, des procédés « physiques », basés sur les différences importantes de leurs masses atomiques respectives, pourraient être imaginés : mais peu a été jusqu'ici entrepris dans ce domaine, et force reste aux procédés chimiques, « puissants », « propres », et aussi aisément adaptables...

La principale alternative aux procédés « en voie aqueuse », ce sont aujourd'hui les concepts dits « pyrochimiques ». Ce terme recouvre en fait diverses options : après mise en solution du combustible dans un bain de sels fondus à haute température (500 à 800 °C), on récupère les actinides d'intérêt par électrodéposition sélective, par extraction par des métaux fondus, par précipitation... On prête d'importants avantages de principe à de tels concepts, comme une plus grande capacité à solubiliser certains composés, leur moindre sensibilité aux agressions radiolytiques, une relative compacité (peu d'étapes de transformation successives). Des développements jusqu'à l'échelle de plusieurs kg (en Russie) ou de la tonne (aux États-Unis) ont été menés, et les recherches dans ce domaine connaissent aujourd'hui un essor renouvelé dans de nombreux pays. De nombreux obstacles et incertitudes restent toutefois à lever, tant au plan du procédé que de sa mise en œuvre qui requiert des développements technologiques importants. Et l'une des questions qui focalise de nombreux efforts de recherche aujourd'hui est l'étude des possibilités de récupération des actinides mineurs par de tels procédés. Des avancées importantes semblent avoir été récemment obtenues tant au CEA qu'à l'Institut des Transuraniens de Karlsruhe en utilisant l'aluminium, tant comme matériau de cathode pour l'électrodéposition de l'américium que comme métal pour son extraction d'un bain de fluorures fondus : les rendements de récupération sont élevés et les facteurs d'épuration vis-à-vis des lanthanides supérieurs à 10^3 ! Il s'agit là de résultats encourageants, mais il reste aujourd'hui encore

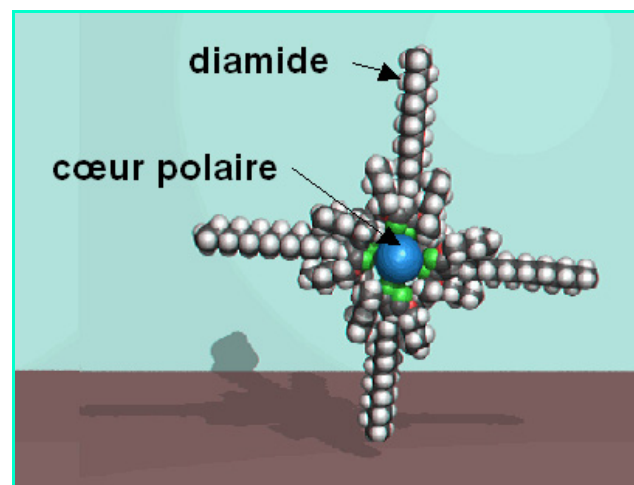


Figure 5 - Restitution d'une image d'organisation en solution d'un complexe DMDOHEMA/ M^{3+} (CEA Saclay DRECAM/SCM).

beaucoup à faire pour espérer amener à maturité industrielle de tels procédés !

Outre ces procédés pyrochimiques, on s'intéresse aussi, mais de façon plus marginale, à des concepts utilisant des milieux « non usuels » tels que les liquides ioniques à basse température ou les fluides supercritiques : ils présentent à certains égards des potentialités intéressantes qui, sans remettre en cause les bases des concepts de séparation, pourraient apporter des améliorations significatives de leur mise en œuvre.

Conclusion

Au terme de ce tour d'horizon, il apparaît à l'évidence que la chimie séparative des actinides, portée par des enjeux industriels et sociétaux de premier ordre, est un champ de recherche qui présente aujourd'hui une grande vitalité. Des avancées importantes ont été obtenues ces dernières années, notamment en France dans le cadre de la loi de 1991. De nouveaux défis apparaissent aujourd'hui, et tant l'expérience récente que l'ampleur de ce qui est encore à explorer pointent un facteur-clé pour la réussite : celui de l'ouverture et d'une coopération aussi large que possible au sein de la communauté scientifique concernée. De nombreuses initiatives sont aujourd'hui prises en ce sens, depuis le renforcement des groupements de recherche en France (le GdR PARIS, voir encadré p. 11, a apporté une contribution essentielle aux travaux menés dans le cadre de la loi précitée), la constitution de « réseaux d'excellence » (tels que par exemple le réseau ACTINET réunissant 27 laboratoires européens), le lancement par l'Union européenne de projets intégrés (tels Europart pour l'étude

de nouveaux procédés de séparation des actinides), ou l'initiative Génération IV qui devrait permettre d'organiser au plan international la très vaste recherche pour les systèmes nucléaires du futur, en suivant très largement les options explorées dans une approche globalisant les réacteurs, le combustible et son cycle. Car c'est une autre évidence : ce sont les réacteurs qui donnent leur sens aux procédés de recyclage...

Références

- [1] Boullis B., Les déchets nucléaires. Un dossier scientifique, R. Turley (ed.), EDP Sciences, 1997, p. 3-24.
- [2] A technology roadmap for generation IV nuclear energy systems, GIF 002, US Department of Energy, déc. 2002.
- [3] McKay H.A.C. et al., The PUREX Process, *Science and Technology of Tributyl Phosphate*, W.W. Schulz, L.K. Burger, J.D. Navratil (eds), CRC Press, 1990.
- [4] Pearson R.G., *Chemical Hardness*, Wiley-VCH, Weinheim, 1997.
- [5] Madić C., Hudson M.J., Liljezin J.O., Glatz J.P., Nannicini R., Facchini A., Kolarik Z., Odoj R., New partitioning techniques for minor actinides, EUR 19149 EN, 2000.
- [6] Madić C. et al., *C.R. Physique* 3, 2002, p. 797.



B. Boullis

Bernard Boullis est chef du département radiochimie et procédés et **Michaël Lecomte** est chef du service de chimie des procédés de séparation au CEA*.



M. Lecomte

* CEA VALRHO, Département Radiochimie et Procédés, 30207 Bagnols-sur-Cèze.
Courriel : boullis@atil.cea.fr

**18 000 produits
chimiques organiques,
1 seul appel suffit !**

TCI Europe, le centre de distribution à Anvers en Belgique, vous garantit la livraison rapide de tous les produits TCI à travers l'Europe, des laboratoires d'universités jusqu'aux centres de recherches d'entreprises.



**TCI 2005
Catalogue
en Euros**

NOUVEAU

Nous vous offrons une vaste gamme de produits de haute qualité, pour toute application et en quantités pratiques.

- Produits chimiques organiques
- Réactifs analytiques
- Produits fonctionnels
- Matériaux standards
- Produits biochimiques ...etc.

Réservez aujourd'hui votre copie gratuite !

TCI a 75 ans d'expérience dans la fabrication de produits chimiques de spécialité.

TCI peut vous aider à accélérer vos projets, de R & D jusqu'à la production !



TCI EUROPE N.V.

00 800 46 73 86 67 • +32 (0)3 735 07 00
Fax +32 (0)3 735 07 01
sales@tcieurope.be • www.tcieurope.be

<Head Office>
TOKYO KASEI KOGYO CO., LTD.
www.tokyokasei.co.jp