

SOMMAIRE

- Introduction
- Déchets et filières
 - Quelques définitions
 - Cadre législatif, réglementaire et industriel
 - Déchets et matières : le cas du traitement des combustibles usés
- Stockage profond des déchets
 - Principe de fonctionnement d'un stockage
 - Spécificités du problème du stockage profond
 - La question de l'acceptabilité
- la transmutation des déchets
 - Données de base
 - La formation des noyaux radioactifs à l'intérieur des combustibles usés
 - Les risques radiologiques à long terme induits par les déchets
 - Physique de la transmutation
 - Caractéristiques principales de la transmutation
 - Mode de transmutation des actinides
 - Mode de transmutation des produits de fission à vie longue
 - Contraintes limitant les performances de la transmutation
 - Le recyclage des actinides et la destruction du plutonium

- L'utilisation de réacteurs sous-critiques
 - Les composantes d'un système sous-critique assisté par accélérateur
 - État actuel des systèmes sous-critiques
- Les perspectives offertes par la transmutation
- Bibliographie
- Classification

NUCLÉAIRE

Déchets

ÉCRIT PAR

Pierre BEREST : ingénieur général des Mines, directeur de recherche à l'École polytechnique

Jean-Paul SCHAPIRA : directeur de recherche au C.N.R.S., codirecteur du groupement de recherche G.E.D.E.O.N. (gestion des déchets par les options innovantes) entre le C.E.A., le C.N.R.S., E.D.F. et Framatome

La production d'électricité dans des centrales nucléaires, mais aussi la médecine, la défense, la recherche scientifique et de nombreuses activités industrielles utilisent des substances radioactives et engendrent des déchets radioactifs. Ceux-ci présentent une activité et une radiotoxicité extrêmement variables. De plus, et au contraire des déchets chimiques dont la durée de vie est infinie, ils voient leur activité décroître avec le temps : certains d'entre eux deviennent inoffensifs en quelques années ; d'autres, au contraire, ont des durées de vie sans commune mesure avec les durées qui intéressent usuellement les activités humaines.

En France, les déchets radioactifs font l'objet d'un inventaire national et d'un plan national de gestion. Ce dernier précise, pour les différentes catégories de déchets, les filières de gestion existantes (collecte, tri, conditionnement, entreposage, puis stockage définitif) et celles qui doivent être complétées.

Des solutions de stockage définitif existent pour l'essentiel du volume des déchets radioactifs produits et à produire, mais elles concernent seulement les déchets à vie courte, qui ne contiennent qu'une part réduite de l'activité totale. Pour quelques catégories de déchets faiblement actifs mais à vie plus longue, des solutions de stockage définitif doivent être mises en œuvre dans le milieu des années 2010. Les déchets à moyenne et haute activité et à vie longue, dont le volume est réduit mais qui concentrent l'essentiel de l'activité, posent le problème le plus difficile, problème souvent mis en exergue par les opposants à l'utilisation du nucléaire. Pour ces déchets, la France, avec la loi de 2006, a privilégié trois axes de recherche, d'ailleurs complémentaires :

– Le *stockage réversible* en couche géologique profonde. Son étude est en cours dans un laboratoire souterrain dans l'est de la France et devrait conduire au choix d'un site dont la demande d'autorisation sera déposée

à la fin de 2017.

- La *séparation-transmutation*. Cette opération consiste à réduire la nocivité des déchets et la durée de celle-ci.



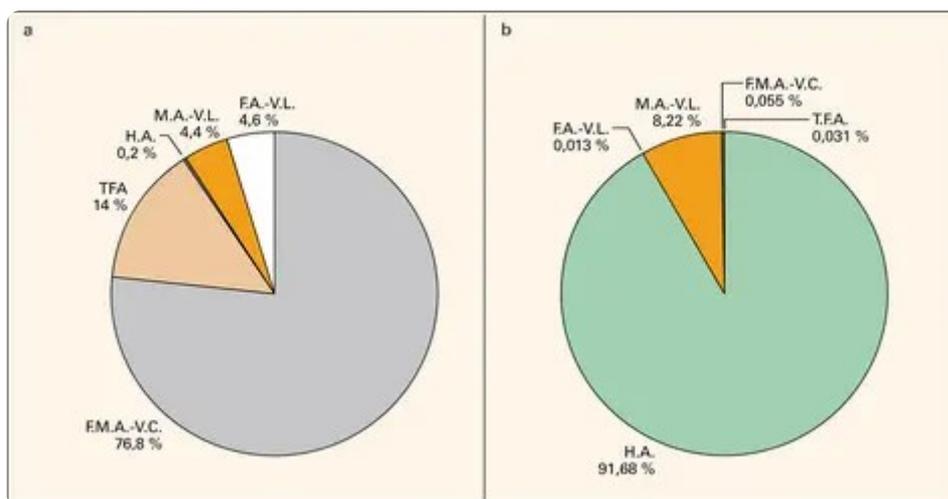
Stockage de déchets nucléaires

Matthew McVay/ Getty Images

- L'*entreposage*. Il consiste, aux diverses étapes des filières de gestion, à placer les déchets, à titre temporaire, dans une installation, en surface ou à faible profondeur, ce qui doit garantir leur sûreté dans l'attente de les récupérer pour procéder à l'étape suivante.

Déchets et filières

Quelques définitions



Déchets nucléaires : volumes et radioactivité

Encyclopædia Universalis France

La définition des déchets radioactifs est délicate. La *radioactivité* résulte de la désintégration de radionucléides, c'est-à-dire d'isotopes instables, naturels ou artificiels, d'un élément chimique ; elle s'accompagne de

l'émission d'un rayonnement dit, suivant les cas, α , β ou γ . La radioactivité naturelle est présente par exemple dans les roches granitiques, dans l'air (radon), dans les eaux minérales, ainsi que dans le corps humain qui contient une activité de l'ordre de 8 000 becquerels (Bq), soit 0,1 Bq par gramme. Toutefois une substance – qu'il s'agisse d'une matière ou d'un déchet – n'est dite radioactive que lorsqu'elle ne peut être négligée du point de vue de la radioprotection, c'est-à-dire lorsque des conséquences sont possibles pour la santé d'une personne placée à proximité ou au contact de cette substance.

Les substances radioactives peuvent constituer des *matières* si elles sont valorisables. Les déchets radioactifs, qu'on qualifie parfois d'*ultimes*, sont au contraire des substances dont on ne prévoit ni n'envisage aucune utilisation ultérieure. Cette distinction entre matières et déchets est relative à la stratégie de gestion retenue par un pays à un moment donné.

Les matières et les déchets radioactifs peuvent être caractérisés par leur activité massique, leur période et leur radiotoxicité. L'*activité massique* est le nombre de désintégrations par seconde et par gramme, mesurée en becquerels par gramme (Bq/g). Elle peut être haute (HA, pour haute activité), moyenne (MA), faible (FA) ou très faible (TFA). Elle décroît au cours du temps. La *période* ou *demi-vie* d'un radionucléide est le temps nécessaire pour que son activité soit divisée par deux. On parle de vie courte (VC) ou vie longue (VL) suivant que la période est inférieure ou supérieure à 31 ans. On distingue aussi les déchets à vie très courte, dont la période est inférieure à 100 jours. Ces derniers sont gérés par décroissance naturelle : leur activité se réduit naturellement en six ans par un facteur d'au moins un million. La *radiotoxicité* est une notion plus complexe. Le risque peut résulter d'une exposition externe ou interne – dans ce dernier cas, par inhalation ou ingestion. Pour l'apprécier, on doit corriger l'énergie que les rayonnements déposent dans les organes du corps (mesurée en gray, ou joule/kg) par divers facteurs qui prennent en compte la nature des rayonnements, des radionucléides et des organes affectés. Pour une exposition du corps entier, on effectue une moyenne pondérée qui fournit la dose « *efficace* », exprimée en millisievert (mSv). En France, la radioactivité naturelle engendre un débit de dose efficace moyen de 2,4 mSv/an. Les recommandations internationales fixent pour le public à 1 mSv/an la dose efficace qui peut être reçue du fait de la somme des expositions à la radioactivité artificielle, hors traitement médical ; mais un principe général est de limiter le risque au plus bas niveau possible.

activité \ demi-vie	vie très courte < 100 jours	vie courte (V.C.) < 31 ans	vie longue (V.L.) > 31 ans
très faible activité (T.F.A.)	déchets gérés en laissant décroître la radioactivité sur place, puis filière de gestion de déchets conventionnels	stockage en surface : site de Morvilliers (Aube)*	
faible activité (F.A.)		stockage en surface : site de Soulaines (Aube), filière à l'étude pour les déchets tritiés	filière à l'étude (déchets radifères, déchets graphites)
moyenne activité (M.A.)			filière à l'étude : stockage profond réversible envisagé par la loi de 2006
haute activité (H.A.)		filière à l'étude : stockage profond, réversible envisagé par la loi de 2006	

* Il s'agit d'un stockage pour les déchets hors résidus de traitement du minerai d'uranium pour lesquels des stockages spécifiques à proximité des sites de production sont mis en œuvre.

Nucléaire : types de déchets et filières de gestion

Encyclopædia Universalis France

	électronucléaire	recherche	défense**	industrie non électronucléaire	médical	total
H.A.	1 462	150	239	0	0	1 851
M.A.-V.L.	27 766	11 710	5 917	125	0	45 518
FA.-V.L.	10 780	19 808	625	15 891	20	47 124
F.M.A.-V.C.	550 350	160 731	66 519	14 276	1 850	793 726
T.F.A.*	55 656	56 396	30 505	1 941	0	144 498
total	646 014	248 795	103 805	32 233	1 870	1 032 717

* lorsque les producteurs déclarent leurs déchets T.F.A. en tonnes, les volumes correspondants sont calculés sur la base de ratios définis par l'Andra.
** le secteur économique Défense regroupe les déchets relevant de la Direction des applications militaires du Commissariat à l'énergie atomique (C.E.A./D.A.M.) et ceux qui sont issus des activités liées à la défense nationale (D.G.A., S.S.A., armées, terre, air, mer, gendarmerie).

Nucléaire : production annuelle de déchets radioactifs en France

Encyclopædia Universalis France

Du point de vue de la *gestion* des déchets radioactifs, d'autres données que celles de la physique nucléaire et de la radioprotection entrent en ligne de compte : la forme des déchets, leur toxicité chimique éventuelle, la capacité des radionucléides à migrer vers l'environnement et des considérations telles que la solvabilité des propriétaires, ou même leur ignorance du caractère radioactif des substances qu'ils détiennent. Ce sont donc, pragmatiquement, les *filières de gestion* qui distinguent les familles de déchets. Une filière de gestion comporte un tri, un conditionnement et un mode d'entreposage, suivi à terme d'un stockage. Le conditionnement vise à réduire le volume des déchets et à empêcher la dispersion des substances radioactives. Celles-ci sont en général solidifiées s'il y a lieu, enrobées de ciment ou de résine et coulées dans des fûts métalliques ou en béton. Pour leur part, les déchets HAVL, issus du traitement des combustibles usés dans les réacteurs des centrales nucléaires, sont vitrifiés et coulés dans des conteneurs en acier. Ces colis de déchets dits primaires (c'est-à-dire conditionnés à la sortie de l'usine de traitement) sont alors entreposés dans des installations conçues et gérées par les producteurs de déchets (E.D.F., Cogema, Areva).

On distingue usuellement en France cinq filières de gestion correspondant à cinq catégories de déchets (tabl. 1 et 2 ; fig. 1), une sixième catégorie étant les déchets à vie très courte (période inférieure à 100 jours) gérés par décroissance naturelle.

– Les déchets *FMA-VC*, également appelés déchets *A* par les exploitants, proviennent des installations nucléaires (filtres, matériels usagés, blouses, gants, résines), des laboratoires de recherche et de divers utilisateurs des radioéléments (hôpitaux, laboratoires d'analyse, industries minière, agroalimentaire et métallurgique). Pour cette catégorie, qui représente l'essentiel du volume total et une faible activité massique (en général de 10^2 à 10^6 Bq/g), des solutions définitives sont d'ores et déjà mises en œuvre par l'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (Andra). Le centre de la Manche, ouvert de 1969 à 1994, a accueilli 527 000 m³ de déchets. Il est maintenant en phase de surveillance. Sa conception, qui n'était pas sans défaut, a fourni un retour d'expérience pour le centre de Soulaines (Aube), ouvert depuis 1992 et dont la capacité est de l'ordre du million de m³. Dans ce type d'ouvrage, les colis de déchets sont stockés en surface puis les installations de stockage sont protégées par une couverture d'argile lors de leur fermeture. On considère qu'au-delà de 300 ans la radioactivité a suffisamment décliné pour qu'aucune surveillance ne soit plus nécessaire. Une filière est à l'étude pour le cas particulier des déchets issus des activités de défense contenant du tritium.

– Les déchets *TFA* (leur activité massique est en général inférieure à 10^2 Bq/g) proviennent principalement du démantèlement des installations nucléaires (gravats, ferrailles, bétons, terres) ou d'industries classiques qui utilisent des matériaux naturellement radioactifs. Un site a été mis en service en 2003 à Morvilliers (Aube) pour les accueillir.

– Les déchets *FA-VL* sont constitués essentiellement de déchets radifères et de déchets graphites. Les premiers, dont l'activité massique est de 10 à quelques 10^3 Bq/g, sont notamment des résidus de l'utilisation, pour l'extraction de terres rares, de minerais naturellement radioactifs qui contiennent une quantité notable de ^{226}Ra , ^{232}Th ou ^{235}U ; mais ils comprennent aussi des peintures luminescentes, des têtes de paratonnerres etc. Ils sont entreposés par le C.E.A. et divers industriels qui les ont produits. Les déchets graphites, quant à eux, ont une activité massique qui peut atteindre quelque 10^5 Bq/g. Ils proviennent du démantèlement en cours des centrales de l'ancienne filière U.N.G.G. (uranium naturel-graphite-gaz) maintenant arrêtées et dans lesquelles ils sont entreposés. La loi de 2006 demande qu'un centre de stockage soit

ouvert en 2013 pour l'ensemble de ces déchets.

– Les déchets *MA-VL* (leur activité étant de 10^6 à 10^9 Bq/g), aussi appelés déchets *B* par les exploitants, proviennent majoritairement des éléments de structure de combustibles usés (coques et embouts) ou proviennent du traitement des effluents et de divers équipements utilisés pendant le recyclage.

– Les déchets *HA* (leur activité massique est de plusieurs fois 10^{10} Bq/g), aussi appelés déchets *C*, ont généralement pour origine les produits de fission et les actinides mineurs conditionnés au cours des opérations de traitement des combustibles usés.

Ces deux dernières catégories représentent un faible volume (en 2003, $300 \text{ m}^3/\text{an}$ et $110 \text{ m}^3/\text{an}$, respectivement, à comparer à un volume total de $50\,000 \text{ m}^3/\text{an}$) mais l'essentiel de l'activité. Ils sont entreposés sur les sites des usines de traitement et dans les centres de recherche du C.E.A. La loi de 2006 a fait du stockage profond réversible la solution de référence pour ces déchets.

Cadre législatif, réglementaire et industriel

À toute matière radioactive doit être associé un mode d'entreposage ; à tout déchet doit être associé un mode de stockage, complété par un mode d'entreposage qui a une fonction d'attente avant le stockage. Le terme stockage est aujourd'hui consacré (ayant été préféré à celui d'enfouissement), mais il est un peu impropre puisque, dans le cas des déchets radioactifs, l'opération a vocation à être définitive, même si elle peut rester réversible pendant une certaine période. Le principe du stockage est la concentration de déchets solides en un petit nombre de lieux ; il s'oppose à la dilution dans de très grands volumes d'eau ou d'air, option aujourd'hui abandonnée sauf pour un petit nombre d'effluents relâchés dans l'air ou dans l'eau (par exemple tritium liquide et ^{129}I , rejetés notamment en mer à l'usine de La Hague).

Le cadre législatif a été fixé par la loi du 30 décembre 1991 puis par la loi de programme du 28 juin 2006. L'Andra est chargée d'établir l'inventaire national des déchets radioactifs et des matières valorisables, d'assurer l'information du public et de concevoir, réaliser et gérer des centres d'entreposage et de stockage comme ceux qui existent déjà pour les déchets TFA et FMA-VC. Les études et recherches relatives à la gestion des déchets radioactifs font l'objet d'un rapport annuel, transmis au Parlement, de la Commission nationale d'évaluation (C.N.E.). L'Autorité de sûreté nucléaire (A.S.N.), autorité administrative indépendante, est

chargée d'élaborer la réglementation et de contrôler, au nom de l'état, toutes les activités nucléaires civiles. Un apport important de la loi de 2006 est le plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs (P.N.G.M.D.R.). Sa préparation, organisée par l'A.S.N., rassemble les administrations concernées, des producteurs de déchets, des gestionnaires de déchets dont l'Andra et des associations de protection de l'environnement. Ce plan, à visée exhaustive, révisé tous les trois ans, recense les modes de gestion des déchets existants et les besoins prévisibles en entreposage et stockage en précisant leur durée et leur capacité ; il détermine les objectifs à atteindre et fixe les échéances à respecter quand un mode définitif de gestion n'est pas encore établi.

Déchets et matières : le cas du traitement des combustibles usés

La France a fait, pour les combustibles usés des centrales nucléaires, le choix du traitement ou recyclage qui détermine une répartition particulière des substances radioactives produites entre déchets et matières. Des 8 000 tonnes d'uranium naturel utilisées chaque année pour fabriquer le combustible, 1 000 tonnes sont enrichies en isotope fissile ^{235}U , le reste contribuant au stock d'uranium appauvri. L'uranium enrichi est mis sous forme d'oxyde (Uox, oxyde d'uranium enrichi) qui constitue, avec une quantité plus faible de combustible Mox (mélange d'oxyde de plutonium et d'oxyde d'uranium appauvri) issu du recyclage (115 tonnes), le combustible nucléaire des 58 réacteurs à eau pressurisée (R.E.P.) du parc électronucléaire français. Après quatre à cinq ans le combustible usé (1 150 tonnes/an) est retiré des réacteurs et placé en piscine pour refroidissement. La plus grande part de l'Uox usé (850 tonnes/an) est recyclée, le reste (200 tonnes/an) constitue un stock avec les Mox usés (100 tonnes/an) dont le plutonium qu'ils contiennent n'est pas recyclé une seconde fois. Le traitement de l'Uox usé commence par la séparation, par procédés chimiques, des matières qu'il contient : : l'uranium, dit de retraitement ; le plutonium ; les produits de fission résultant de la désintégration de l'uranium dans le réacteur (^{239}I , ^{135}Cs , ^{99}Tc pour les éléments à vie longue) ; et les actinides mineurs (Am, Np, Cm), produits de la capture de neutrons par l'uranium et le plutonium (cf. NUCLÉAIRE - Le cycle du combustible). Les actinides mineurs et les produits de fission sont incorporés dans une matrice de verre coulée dans un conteneur en acier inoxydable ; les matériaux de structure du combustible sont compactés et les effluents liquides sont incorporés dans du bitume ou encore, avec les produits de fission, dans du verre. La totalité du plutonium séparé (8,5 tonnes/an) sert, avec de l'uranium

appauvri, à fabriquer le combustible Mox, qui est brûlé avec de l'Uox dans 20 des 58 réacteurs R.E.P. du parc français. Au total, l'ensemble du processus génère, d'une part, des *déchets* HA (actinides et produits de fission) et MA-VL (matériaux et effluents liquides convenablement conditionnés) qui sont tous destinés au stockage profond après un entreposage à sec, dans des puits ventilés sur les sites des usines de traitement, où se poursuit leur refroidissement ; et, d'autre part, des *matières* considérées comme valorisables : le stock d'uranium appauvri, le combustible Mox usé, la part non recyclée du combustible Uox et le stock d'uranium de retraitement.

Cette distinction entre déchets et matières est relative à la stratégie de gestion dite du cycle *fermé*, retenue par plusieurs pays, dont la France, le Japon et la Russie. Les matières sont mises en attente dans la perspective d'une utilisation, dans un parc futur de surgénérateurs, du plutonium contenu dans la fraction d'Uox non recyclé et dans le Mox usé. À l'intérieur de cette stratégie, des variantes sont envisageables. En France, la loi de 2006 demande d'étudier l'option d'une séparation plus complète des combustibles usés à produire, qui permettrait la transmutation des actinides mineurs, faisant disparaître ainsi une partie de ce qui est aujourd'hui considéré comme des déchets (cf. 3 *La transmutation*). On a suggéré aussi de surseoir à la vitrification, difficilement réversible, pour ménager la possibilité d'une séparation ultérieure des combustibles usés déjà produits, mais l'entreposage d'attente en serait rendu plus compliqué. Différer les choix est évidemment une option présente à toutes les étapes de la gestion des déchets. Elle doit être discutée en mesurant la vraisemblance de progrès futurs décisifs, l'ampleur du transfert aux générations futures de coûts et responsabilités que nous pourrions assumer et les risques supplémentaires pris en différant la mise en œuvre d'une solution pérenne.

D'autres pays ont adopté la stratégie du cycle *ouvert* : les combustibles usés, n'étant pas traités, sont des déchets. Le cycle fermé présente des avantages du point de vue du stockage profond : les déchets occupent un volume moindre et dégagent moins de chaleur. Les États-Unis y ont renoncé jusqu'à ce jour, estimant que le recyclage envoie un mauvais signal du point de vue du risque de prolifération, puisque le plutonium, une fois séparé, s'il n'est pas incorporé dans un Mox, peut servir à la fabrication d'armes nucléaires. Enfin, aux yeux des opposants à l'énergie nucléaire, le cycle fermé a le défaut de s'inscrire dans la perspective d'une utilisation pérenne de celle-ci, puisque les matières mises en réserve n'ont pas vocation à être utilisées avant 2040.

Stockage profond des déchets

Principe de fonctionnement d'un stockage

La loi de 2006 a retenu le stockage profond réversible comme solution de référence pour la gestion des déchets HA-MA-VL. Il s'agit d'isoler les déchets des activités humaines courantes, de les mettre à l'abri des effets de l'érosion, de limiter les circulations d'eau au voisinage des colis pour ralentir leur dégradation et leur dissolution, puis retarder ou atténuer la migration des radionucléides. Un stockage profond comporte des puits verticaux ou une descenderie qui permettent d'accéder, à plusieurs centaines de mètres de profondeur, à la « couche hôte », appartenant à une formation géologique stable, et choisie parce que les circulations d'eau y sont extrêmement faibles et lentes. Un ensemble de galeries sont creusées. L'emprise horizontale de l'ouvrage peut être de plusieurs centaines d'hectares. Les galeries permettent d'accéder aux alvéoles, de plusieurs dizaines de mètres de longueur, où sont placés les colis de déchets, dits de stockage. Les vides résiduels des alvéoles sont progressivement comblés par de l'argile gonflante, l'accès des alvéoles est scellé, puis on comble les galeries d'accès et les puits. Un à quelques siècles après sa création, le stockage peut être fermé. Il est conçu pour qu'aucune surveillance ultérieure ne soit nécessaire.

Le fonctionnement du stockage repose donc sur des barrières successives : la matrice et son conteneur, produits de l'industrie humaine, susceptibles d'être caractérisés de façon détaillée, mais dont les performances à très long terme ne peuvent être prouvées par l'expérience directe ; les argiles gonflantes remaniées, mises en place pour combler les vides résiduels ; le massif rocheux, que l'on ne connaît que par sondage, mais qui a été choisi pour avoir, pendant plusieurs dizaines de millions d'années, subi l'épreuve de sollicitations mécaniques, thermiques, hydrauliques et géochimiques, dont on peut évaluer les effets. Ces barrières sont de natures différentes, ce qui est un avantage, car les moyens de les connaître et la démonstration de leurs qualités ne reposent pas sur une seule discipline scientifique ou une seule famille de techniques d'investigation.



Centre de stockage des déchets nucléaires de Soulaïnes, Aube

Alticolor

Dans le cas du projet de stockage dans le Callovo-Oxfordien de l'est de la France, la couche hôte, qui paraît présenter une grande continuité horizontale, est composée d'environ 40 p. 100 d'argile, 30 p. 100 de calcaire et 30 p. 100 de quartz et feldspath. Elle a été étudiée au voisinage du village de Bure, à la limite de la Meuse et de la Haute-Marne, par des méthodes géophysiques de surface, plusieurs dizaines de forages profonds et des expériences conduites dans un laboratoire souterrain, à 500 mètres de profondeur, accessible depuis 2004.

La période pendant laquelle le stockage est ouvert dans une telle couche est marquée par l'introduction dans le sous-sol de matériaux exogènes qui perturbent son état naturel : colis, acier, argiles, béton et air de ventilation. Ce dernier introduit des bactéries nouvelles, engendre des conditions provisoirement oxydantes, désature la roche dans le voisinage des galeries déjà affecté par un endommagement consécutif au creusement. Certains colis dégagent de la chaleur. L'augmentation de la température déplace les équilibres physiques et chimiques, accélère la cinétique des réactions, engendre des contraintes thermiques dans le massif ou les colis.

La fermeture du stockage marque le début d'un lent retour au quasi-équilibre antérieur, pourtant durablement ralenti par la poursuite du dégagement de chaleur, dont les effets restent sensibles pendant quelques millénaires, et par la génération de gaz de corrosion (hydrogène) quand de l'eau commence à être disponible au voisinage des colis ou des parties métalliques des soutènements. Les matrices cimentaires dégradées relâchent des éléments alcalins qui créent un environnement chimique de pH élevé, et le fer des conteneurs interagit de manière complexe mais très locale avec les argiles. Toutefois pendant

une période initiale de quelques milliers d'années, l'apport d'eau reste très faible, ou très inégal suivant les zones considérées, en raison de la désaturation initiale du massif. Lorsque l'eau est disponible, les argiles naturelles remaniées gonflent et assurent leur fonction de scellement ; mais l'eau permet aussi la dégradation des enveloppes des colis et la dissolution des matrices qui contiennent les déchets. On a établi, par des expériences de laboratoire, que le début de la dissolution des verres se fait avec des vitesses de quelques micromètres par an ; le verre forme ensuite avec l'eau une pellicule superficielle d'hydroxydes qui réduit de plusieurs ordres de grandeur les vitesses initiales.

La dissolution du verre rend possible la migration des radionucléides. On pense que cette migration sera extrêmement lente, la couche hôte étant très peu perméable, mais on doit analyser les effets possibles de courts-circuits : fractures naturelles conductrices ; anneau de roches derrière les parois qui court le long des galeries, mécaniquement endommagé et rendu plus perméable pendant l'excavation, dont on peut interrompre la continuité hydraulique en disposant judicieusement des scellements. La perméabilité de la couche hôte intacte paraît même être si faible (les déplacements naturels de l'eau sont inférieurs au décimètre par 100 000 ans) que le transport des radionucléides hors de la zone de stockage se ferait essentiellement par diffusion dans l'eau contenue dans les pores de l'argile. Les actinides, très peu solubles dans cette eau réductrice, ne se déplaceraient que de quelques mètres en 100 000 ans. Les feuilletts d'argile, chargés électriquement, présentent une très grande surface d'échange avec l'eau et les ions qu'elle contient : des cations sont fixés sur la surface ; les anions sont repoussés de sorte qu'ils ne disposent pour diffuser que d'une fraction réduite de la porosité totale. Ainsi seuls quelques radionucléides solubles et non retenus par l'argile (^{239}I , ^{36}Cl , produits d'activation) atteindraient en quantité appréciable les limites de la couche, puis, à la surface du sol, les exutoires des nappes d'eau souterraines, après une durée de l'ordre de 100 000 ans.

Spécificités du problème du stockage profond

La conception d'un système de cette nature, caractérisé par l'intervention d'un grand nombre de phénomènes, éventuellement couplés, et par la coexistence au sein d'un massif naturel de matériaux exogènes variés, doit être inspirée par quelques principes généraux.

Le premier est la *redondance* : il est souhaitable que la même fonction puisse être remplie par plusieurs composants aussi indépendants que possible les uns des autres. Certaines fonctions toutefois sont assurées par plusieurs barrières ensemble : le caractère réducteur de la barrière

géologique, par exemple, crée des conditions favorables à la pérennité des conteneurs. Le rôle des barrières évolue au cours du temps : à chacune d'elle doivent pouvoir être allouées une performance attendue et une estimation de la durée pendant laquelle cette dernière sera assurée.

Le second principe est la *robustesse* : le système doit être peu sensible aux perturbations. On choisit ainsi une profondeur largement suffisante pour rester à l'abri de l'érosion. De même, le stockage et son évolution sont représentés par un ensemble de relations mathématiques qui décrivent les phénomènes attendus ; ils fournissent des estimations du débit de dose aux exutoires des eaux souterraines et d'autres grandeurs intermédiaires utiles (température, contraintes, débit d'eau, vitesses de diffusion). Ce système doit être stable : les valeurs atteintes par les grandeurs les plus significatives du point de vue de la sûreté du stockage doivent être peu sensibles aux modifications des hypothèses faites, au choix des paramètres, au choix des modèles eux-mêmes et, sur un autre plan, aux techniques de résolution numérique.

Le troisième principe est la *prudence* : elle conduit à se doter de marges, par exemple dans l'épaisseur des matériaux ou le nombre de scellements ; à choisir pour les calculs, en cas d'incertitudes, les valeurs les plus défavorables ; et à examiner, au moins à titre de variante, les effets d'un choix systématiquement pessimiste de ces valeurs ou de scénarios extrêmes tels que l'intrusion humaine involontaire.

Le quatrième principe est la *simplicité*, qui facilite la *démonstrabilité*. Ainsi des réticences ont pu être formulées à l'égard du stockage dans le granite en France, malgré les avantages génériques de cette roche, car il pourrait exiger la mise au point de techniques de reconnaissance et de modélisation non encore disponibles, ou le choix d'architectures compliquées (dans les pays scandinaves, dont le sous-sol est granitique, le système de stockage est rééquilibré par le choix d'un sur-conteneur en cuir de très longue durée de vie). Le cinquième est la *flexibilité*, qui sera évoquée à propos de la *réversibilité*.

Le caractère exceptionnel du problème posé par le stockage des déchets radioactifs – que ceux-ci partagent avec les déchets toxiques chimiques – tient à la durée très longue pendant laquelle la protection des personnes et de l'environnement doit être assurée, et notamment, pendant laquelle la concentration en radionucléides des eaux aux exutoires doit rester nulle ou très faible. Quelque longue qu'elle soit, cette durée n'est toutefois pas indéfinie – au contraire du cas des déchets chimiques – en raison de la décroissance naturelle de l'activité. Dans la pratique, les

calculs sont conduits pour une période d'un million d'années mais, après 10 000 ans, l'activité a déjà très substantiellement diminué. Ces durées n'en sont pas moins presque incommensurables avec celles qui intéressent ordinairement les activités humaines. Elles soulèvent la question de l'extrapolation. On dispose de cas d'ouvrages et de matériaux élaborés par l'homme il y a plusieurs milliers d'années et qui ont survécu malgré des conditions parfois sévères ; mais l'ingénieur n'envisage pratiquement jamais des ouvrages dont la durée de vie soit supérieure au siècle. La géologie permet d'expliquer, souvent dans le détail, la genèse et l'évolution des formations naturelles ; mais il s'agit, comme pour l'Histoire, d'une analyse à rebours. Les phénomènes qui résultent des évolutions astronomiques, comme le retour des périodes glaciaires, peuvent être prévus avec une très grande précision ; ceux qui résultent de l'activité humaine sont beaucoup plus difficiles à prédire.

Ces difficultés peuvent être abordées de diverses manières. L'une consiste à rechercher, pour évaluer les propriétés des matériaux du stockage, une qualité expérimentale exceptionnelle. Les données obtenues ne se prêtent toutefois à l'extrapolation que lorsqu'elles sont complétées par la compréhension des mécanismes qui régissent l'évolution des matériaux à l'échelle microscopique. On peut aussi tirer parti des phénomènes analogues historiques ou géologiques (un réacteur nucléaire naturel a fonctionné à grande profondeur à Oklo, au Gabon, il y a deux milliards d'années : la migration ultérieure des actinides formés a été très limitée). De plus, une connaissance parfaite de la totalité des phénomènes n'est pas toujours absolument nécessaire : on peut vérifier que certains d'entre eux ne jouent qu'un rôle mineur ; ou bien on peut en encadrer les effets d'une façon suffisamment certaine pour obtenir un majorant ou un minorant qui suffiront aux calculs. On peut aussi, lorsqu'une incertitude importante subsiste sur les performances d'un composant particulier, se doter de marges de sécurité plus grandes sur un autre composant qui remplit une fonction analogue.

L'assemblage des connaissances est assuré, à un moment donné, par l'*analyse de sûreté*. Il s'agit d'un exercice, conduit périodiquement, dans lequel l'ensemble des connaissances scientifiques et techniques, l'inventaire des déchets à stocker et la conception envisagée des ouvrages sont rassemblés d'une manière critique, en les accompagnant d'une estimation des incertitudes qui les affectent encore. L'analyse de sûreté comporte des calculs numériques de l'évolution du stockage et du massif dont les résultats permettent de repérer les incertitudes les plus pénalisantes et d'orienter les études ultérieures vers leur réduction. L'Andra a réalisé dans le « Dossier Argile 2005 » un exercice de ce type

pour un stockage qui serait réalisé dans une couche d'argilite du Callovo-Oxfordien ; les estimations de débit de dose obtenues sont très inférieures à la valeur de 0,25 mSv/an retenue par les règles de sûreté.

La question de l'acceptabilité

En France, la question des déchets radioactifs a longtemps été discutée par les seuls experts. À la suite des réactions, dans les années 1980, des populations concernées par la recherche de sites favorables au stockage, la question a été placée dans le seul cadre adéquat pour un pays démocratique, en confiant à la représentation nationale l'organisation du débat et la responsabilité des choix majeurs. La loi du 30 décembre 1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs, dite loi Bataille du nom de l'un de ses rapporteurs, a fixé les orientations générales des recherches et un calendrier. Une seconde loi, loi de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs, a été adoptée par le Parlement le 28 juin 2006, dans les délais prévus en 1991.

La fin du ^{xx}e siècle a vu des évolutions profondes des mentalités marquées par la critique radicale des fonctionnements reposant sur la seule autorité – même légitimée par la compétence – ; l'essor de l'environnementalisme ; l'aspiration des citoyens à une participation plus directe et décentralisée au débat démocratique, notamment pour les décisions qui les concernent directement. Sont posées les questions d'une juste contrepartie aux inconvénients locaux d'une décision conforme à l'intérêt collectif national ; d'une information claire, complète et objective ; et de l'étendue des marges que les projets peuvent laisser à des inflexions d'initiative locale. La loi de 2006 a veillé à apporter des réponses à ces préoccupations.

Ce sont des domaines où les démocraties du nord de l'Europe ont souvent montré l'exemple. La *réversibilité* du stockage pourrait être l'occasion d'une contribution française. La réversibilité prévoit que, même si le stockage doit être conçu pour être définitif, on doit ménager au cours de sa construction des étapes à l'occasion desquelles il peut être décidé de revenir en arrière, d'attendre ou au contraire de passer à l'étape suivante. Elle implique une grande flexibilité, la mise en œuvre d'une surveillance qui permette de fonder les décisions successives et une conception du stockage qui autorise un retrait des colis avec une facilité proportionnée à l'étape atteinte. La réversibilité est inscrite dans la loi de 2006. Le vote d'une loi qui en précise les conditions accompagnera le choix éventuel d'un site de stockage profond qui pourrait être mis en service en 2025. Le début de réalisation d'un

stockage profond apparaîtrait alors comme la meilleure solution qu'ait trouvée notre génération au problème des déchets radioactifs les plus dangereux ; après en avoir assumé sa part de contraintes et de coûts, elle proposerait à la génération suivante, parmi d'autres, l'option de poursuivre sa mise en oeuvre.

— *Pierre BEREST*

la transmutation des déchets

La transmutation est une méthode qui vise à réduire la très longue durée des risques associés aux corps radioactifs artificiels formés dans les réacteurs nucléaires (plutonium et autres actinides) en transformant ceux-ci en un ou plusieurs noyaux radioactifs de périodes courtes (typiquement quelques décennies). Elle implique une séparation chimique préalable non seulement du plutonium (comme c'est le cas actuellement avec le traitement des combustibles usés) mais des autres corps à vie longue. En l'état actuel des techniques, cette opération devrait produire des déchets peu contaminés par des corps à vie moins longue, assez longue cependant pour nécessiter une forme de stockage profond. Malgré cette réserve, la gestion des déchets à vie longue devrait être rendue beaucoup plus aisée et moins incertaine : la transmutation devrait permettre en principe de ramener la plus grande partie des nuisances, qui s'étendent sur des échelles de temps géologiques, à des échelles de temps « historiques », compatibles avec des durées crédibles de surveillance institutionnelle.

Engagées depuis le début des années 1970 aux États-Unis, les études sur la transmutation n'en sont, pour une large part, qu'au stade conceptuel et sans application industrielle, si ce n'est le monorecyclage d'une partie du plutonium produit dans les réacteurs à eau pressurisée actuels (R.E.P.).

Données de base

La formation des noyaux radioactifs à l'intérieur des combustibles usés

Les corps à vie longue visés par la transmutation sont créés par interaction des neutrons avec les noyaux lourds (uranium, plutonium) constituant le combustible de départ ou créés lors de son irradiation dans le réacteur. Ils se répartissent suivant deux catégories : les produits de fission et les actinides.

Les premiers sont des fragments de masse atomique comprise entre 80

et 150 environ, qui résultent de la fission induite par un neutron dans un noyau lourd fissile (par exemple uranium 235, plutonium 239 et 241) du combustible. La grande majorité d'entre eux sont caractérisés par des périodes courtes inférieures à celle, qui est de l'ordre de trente ans, des deux plus importants : le césium 137 et le strontium 90. Le reste est constitué des produits de fission à vie longue (P.F.V.L.), par exemple le technétium 99, l'iode 129 et le césium 135, qui représentent environ 6 p. 100 du poids total des résidus de fission.

Dans un réacteur, l'interaction d'un neutron avec un noyau lourd conduit également, par le jeu de captures neutroniques et d'émissions β^- successives, à la formation de noyaux plus lourds appartenant à la famille des actinides. La capture d'un neutron par l'uranium 238 est responsable de l'apparition du plutonium, puis de l'américium et du curium, tandis que la capture par l'uranium 235 conduit à la formation du neptunium 237 puis du plutonium 238 ainsi que des deux isotopes 234 et 236 de l'uranium. On classe ces actinides en deux catégories : les actinides majeurs (uranium, plutonium) et les actinides mineurs (neptunium, américium et curium).

Le tableau 3 fournit la liste des corps à vie longue et leur bilan en masse dans le cas des réacteurs de 900 MWe du parc d'E.D.F. utilisant un combustible standard Uox (oxyde d'uranium, UO_2) ou recyclant du plutonium dans un combustible Mox (oxyde mixte, UO_2 et PuO_2).

Les risques radiologiques à long terme induits par les déchets

Les corps à vie longue des combustibles usés présentent des risques radiologiques pour l'homme, liés aux rayonnements nucléaires qu'ils émettent. Comme la transmutation vise à réduire des effets à très long terme, on ne considérera ici que le risque par ingestion, la voie la plus probable de retour vers l'homme de produits radioactifs stockés en couches géologiques profondes et qui auraient été transportés par des circulations d'eau venant au contact des déchets. (cf. 2 *Stockage profond des déchets*).

Le risque peut être appréhendé de deux manières. Dans la première, on s'intéresse au risque intrinsèque : celui résultant de l'ingestion pure et simple d'une certaine quantité d'un corps radioactif. C'est le risque potentiel qui est mesuré par la radiotoxicité R, c'est-à-dire l'engagement de dose efficace exprimée en Sievert (Sv) durant une période de cinquante ans pour un adulte qui ingérerait une masse M de ce corps radioactif. Cet engagement de dose est proportionnel à $M(g)$, et à un

facteur de dose F (Sv/g) qui regroupe tous les autres paramètres dont dépend la radiotoxicité (forme chimique, métabolisme, période, nature et énergie des rayonnements). La figure 2 indique les durées géologiques nécessaires à la décroissance du risque potentiel ainsi que l'importance relative de la contribution des actinides par rapport à celles des P.F.V.L. Elle montre également que le plutonium doit être traité en priorité.

Dans la seconde approche, on s'intéresse au risque réel (ou résiduel) qui prend en compte les différentes barrières interposées entre les déchets et l'homme pour éviter, ou du moins réduire et retarder le retour de la radioactivité à la biosphère. Ce type de risque est évalué à l'aide de scénarios d'évolution normale ou accidentels qui peuvent survenir dans un site de stockage profond comme par exemple l'intrusion humaine lors du creusement d'un puits profond. Les analyses de risque résiduel pour de tels scénarios ont recours à des modélisations complexes des phénomènes de relâchement, de migration et de rétention dans les stockages profonds et indiquent qu'en général ce sont les produits de fission à vie longue, comme l'iode 129 ou le césium 135, qui ont l'impact radiologique le plus important en raison d'une mobilité dans l'environnement bien plus grande que celle des actinides. La transmutation de certains P.F.V.L. peut donc être également envisagée sous cet angle.

Physique de la transmutation

La transmutation d'un noyau atomique ne peut être accomplie qu'au cours d'une réaction nucléaire induite par une particule. Étant donné les quantités de produits à traiter, la transmutation ne peut s'envisager aujourd'hui qu'en utilisant les flux importants de neutrons existant dans les réacteurs à fission. Compte tenu du spectre en énergie des neutrons dans ces réacteurs, la fission et la capture (suivie en général de l'émission d'un photon) constituent les deux principales interactions conduisant à la transmutation.

Caractéristiques principales de la transmutation

Il existe divers indicateurs pour caractériser la transmutation et les performances atteintes.

La vitesse de transmutation d'un corps donné et la quantité finale atteinte sont les deux premiers. Pour simplifier, l'évolution de la masse M d'un corps à vie longue soumis à l'irradiation neutronique dans un réacteur est décrite à l'aide d'une équation comportant un terme de disparition par décroissance naturelle, caractérisée par la constante radioactive λ_{nat} négligeable pour les corps à vie longue, auquel se

superpose la disparition due à la transmutation, et un terme de production p que l'on suppose à taux constant. C'est le cas par exemple des P.F.V.L. pour lesquels on prend en compte leur production dépendante de la puissance thermique constante du réacteur ou celle du plutonium à partir de l'uranium 238 du combustible. On a ainsi la relation suivante : (1) $dM/dt = (\lambda_{nat} + \sigma\Phi) M + p = -\sigma\Phi M + p$, où Φ est le flux de neutrons en $n/cm^2/sec$ et σ la section efficace d'absorption en cm^2 . La solution simple de cette équation $M(t) = M_{eq} + (M_0 - M_{eq})e^{-\sigma\Phi t}$, où $M_{eq} = p/\sigma\Phi$, montre que l'inventaire initial M_0 évolue vers une valeur d'équilibre M_{eq} avec une constante de temps $\tau = 1/\sigma\Phi$ de l'ordre de plusieurs dizaines d'années (tabl. 4), selon les trois régimes d'évolution suivants :

- le régime incinérateur pour $M_0 > M_{eq}$ caractérisé par une décroissance exponentielle ;
- le régime à l'équilibre pour $M_0 = M_{eq}$;
- le régime surgénérateur pour $M_0 < M_{eq}$ caractérisé par une croissance asymptotique.

Le régime incinérateur est celui des R.E.P. dont une partie est chargée à une concentration supérieure à la concentration d'équilibre (environ 2 p. 100) avec du plutonium ; une partie de celui-ci est effectivement incinéré lors d'un premier recyclage. Si l'on pouvait poursuivre ce recyclage, on atteindrait une valeur d'équilibre (en fait, on ne peut guère aller au-delà de deux recyclages, pour des raisons de sûreté). En revanche, le mode surgénérateur correspondrait au recyclage homogène de la totalité du plutonium dans les R.E.P. qui l'ont produit (à 1 p. 100 de concentration) et permettrait d'atteindre une concentration d'équilibre après 5 ou 6 recyclages, réalisables du point de vue de la sûreté.

Le calcul complet de l'évolution des corps à transmuter en réacteur tient compte en fait de tous les couplages entre les divers noyaux composant le combustible par filiation radioactive et réactions neutroniques. On doit alors généraliser la relation (1) à partir des sections efficaces moyennes et du flux moyen calculés au préalable à l'aide de codes de transport de neutrons appliqués à la configuration exacte du cœur (composition, géométrie). Les régimes d'évolution de l'inventaire des noyaux sont plus complexes mais présentent qualitativement les mêmes caractéristiques que celles décrites ci-dessus.

Le rendement de transmutation Y en régime incinérateur, exprimé par rapport à l'inventaire initial M_0 , est proportionnel au temps d'irradiation

Δt . Il se déduit de la solution de (1) : (2) $Y = \Delta M/M_0 = (1 - M_{eq}/M_0) \sigma \Phi \Delta t$ (si $\sigma \Phi \Delta t \ll 1$).

Compte tenu des valeurs de section efficace et de flux, on peut obtenir des rendements de l'ordre de quelques pour-cent à quelques dizaines de pour-cent par an. Le rendement de transmutation des actinides peut aussi être exprimé par rapport à l'énergie produite par le réacteur. On ne peut en effet détruire plus de 46 kg d'actinides par TWh thermique ($T = 1 \text{ tera} = 10^{12}$), limite qui serait atteinte si toute l'énergie thermique (200 MeV par fission) provenait de la fission des actinides destinés à la transmutation. Un des objectifs majeurs de la transmutation vise à se rapprocher de cette limite, grâce à des combustibles contenant peu de matières fissiles autres que celles qu'on cherche à transmuter et ne régénérant que très peu les actinides à détruire durant l'irradiation ($\rho \approx 0$). On observe que la destruction des actinides dans un réacteur est limitée par la puissance thermique du réacteur et s'opère à partir d'un inventaire initial d'autant plus faible que le produit $\sigma \Phi$ est élevé : c'est le cas des réacteurs à neutrons thermiques, qui nécessitent un inventaire initial plus faible que celui des réacteurs à neutrons rapides.

Le gain en radiotoxicité globale peut être connu en évaluant la quantité des déchets ultimes produits durant la transmutation (c'est le cas où plusieurs recyclages des corps en réacteur sont nécessaires) et l'inventaire résiduel des produits en réacteur mis au déchet en fin de transmutation.

Mode de transmutation des actinides

La fission constitue le moyen le plus efficace pour transmuter un actinide à vie longue, puisque environ 94 p. 100 des résidus de fission sont des noyaux stables ou le deviennent plusieurs années après l'arrêt de l'irradiation en réacteur. L'interaction d'un neutron avec un actinide peut également conduire à la formation d'autres actinides de masse plus élevée par le jeu de captures successives et de désintégration β^- . Ces nouveaux actinides sont à leur tour en partie fissionnés durant l'irradiation, que l'on peut prolonger jusqu'à ce qu'une fraction donnée (par exemple 90 p. 100) de noyaux lourds aient été détruits par fission cumulée. Le tableau 4 donne les durées d'irradiation nécessaires à la disparition et à la destruction par fission cumulée de certains actinides mineurs (sans tenir compte de leur production concomitante dans le réacteur).

Deux modes de transmutation sont envisageables pour les actinides. On peut les diluer dans le combustible de base du réacteur à des teneurs de

quelques pour-cent (< 5 p. 100) généralement supérieures aux concentrations d'équilibre : c'est le mode d'insertion homogène dans lequel les actinides à transmuter suivent le cycle de base (irradiation en réacteur, retraitement, refabrication de combustible) qui permet, grâce à plusieurs recyclages, d'atteindre éventuellement un inventaire d'équilibre. La réduction de radiotoxicité par rapport au cycle ouvert sans recyclage et le temps pour l'atteindre dépendent :

- des pertes au retraitement et à la fabrication du combustible lors des recyclages ;
- de la durée d'un cycle d'irradiation en réacteur, c'est-à-dire du taux de combustion ;
- du temps mort passé hors réacteur lors des opérations de retraitement (nécessité de laisser refroidir plusieurs années) et de fabrication des combustibles ;
- des actinides qui sont recyclés (par exemple le recyclage du plutonium seul augmente d'un facteur 10 environ la production d'actinides mineurs si ceux-ci ne sont pas également recyclés).

On peut également les détruire par fission cumulée en les plaçant à des teneurs nettement plus fortes (de 20 à 50 p. 100) dans des cibles spécifiques introduites dans certains assemblages du cœur ou constituant des assemblages placés dans le cœur ou à sa périphérie : c'est le mode d'insertion hétérogène, qui permet d'irradier en continu des cibles pendant une durée importante (dix-vingt ans) indépendamment des cycles de chargement et déchargement propres aux combustibles de base. À la fin de l'irradiation, ces cibles sont généralement mises au déchet. La réduction de radiotoxicité par fission cumulée dépendra :

- de la résistance des matériaux de gainage de ces cibles à la pression exercée par les produits de fission volatils et à l'irradiation neutronique qui induit des dommages structuraux limitant la durée d'irradiation ;
- du nombre de cibles que l'on peut introduire dans le réacteur et de la composition standard du cœur (bilan global production/destruction).

Mode de transmutation des produits de fission à vie longue

En ce qui concerne les produits de fission à vie longue (P.F.V.L.), la capture de neutrons (n) suivie de désintégration β^- est le seul processus

susceptible de les transformer en corps stables. On a par exemple les chaînes suivantes dans le cas du technétium 99 et de l'iode 129 :
technétium 99 (2×10^5 ans) + $n \rightarrow$ technétium 100 (15,8 s) $\rightarrow \beta^- +$
ruthénium 100 (stable) ; iode 129 ($1,6 \times 10^7$ ans) + $n \rightarrow$ iode 130 (12,4 h)
 $\rightarrow \beta^- +$ xénon 130 (stable).

La transmutation est optimisée en se plaçant dans une zone d'énergie des neutrons correspondant à des maxima de sections efficaces, c'est-à-dire dans la région dite épithermique (de quelques électronvolts à quelques kiloélectronvolts). Cela pourrait être réalisé en ralentissant localement les neutrons autour de cibles chargées en P.F.V.L. dans des réacteurs à neutrons rapides, profitant ainsi de leur flux élevé.

Contraintes limitant les performances de la transmutation

L'insertion d'actinides ou de P.F.V.L. dans un réacteur a des effets sur sa réactivité, son fonctionnement et sa sûreté ainsi que sur les opérations du cycle du combustible associé.

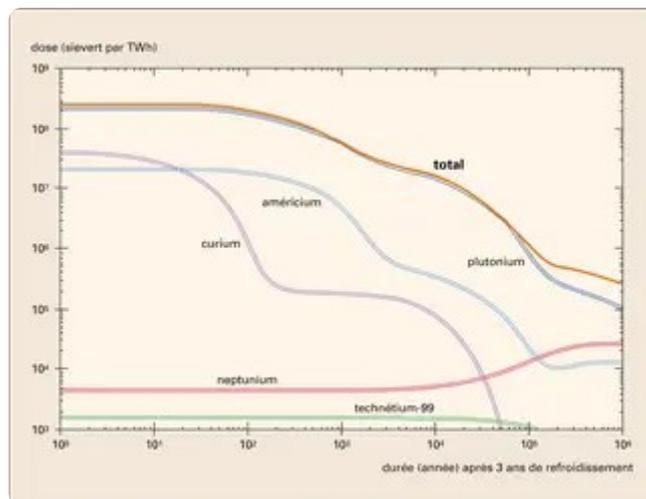
L'effet de l'insertion d'un noyau à transmuter sur la réactivité dépend de l'importance, pour ce noyau et les noyaux lourds créés, de la fission vis-à-vis de la capture et du nombre moyen de neutrons libérés lors de la fission. Comme le rapport fission/capture et le nombre de neutrons émis par fission augmentent avec l'énergie des neutrons, les réacteurs à neutrons rapides (R.N.R.) présentent de meilleures caractéristiques pour la transmutation des actinides que les réacteurs à neutrons thermiques (R.E.P.), en termes d'économie de neutrons. Comme l'indique le tableau 2, les actinides mineurs contribuent dans tous les cas à la réactivité dans un R.N.R., contrairement au cas d'un R.E.P. où un surenrichissement en matière fissile peut être nécessaire. En revanche, l'insertion d'un P.F.V.L. absorbe au moins un neutron par transmutation et a donc un effet négatif sur la réactivité dans tous les cas.

L'introduction d'actinides a un effet généralement pénalisant sur le fonctionnement et la sûreté du réacteur. Par exemple, l'utilisation dans un réacteur à neutrons thermiques d'assemblages fortement chargés en actinides a pour effet d'augmenter l'énergie des neutrons (on dit que le spectre en énergie se durcit), ce qui oblige à augmenter le nombre de barres de contrôle. Elle a également pour effet de réduire les capacités de contre-réaction du cœur vis-à-vis de situations accidentelles conduisant à une augmentation de la température des combustibles (effet Doppler) ou à la création de vides liés à la formation de bulles ou à une perte du fluide caloporteur (effet de vidange). Enfin, le nombre

moyen de neutrons retardés (β_{eff}) émis lors d'une fission de plutonium, mais surtout d'américium et de curium, est plus faible que dans le cas de l'uranium 235 ; cela a pour conséquence que le pilotage du réacteur, qui utilise ces neutrons retardés pour maintenir la criticité, devient beaucoup plus délicat. L'ensemble de ces contraintes requiert de fait la présence stabilisatrice d'uranium, enrichi ou non, ou de plutonium, contradictoire avec l'optimisation de la transmutation qui suppose de réduire le taux de régénération ($p \approx 0$). On verra plus loin que l'utilisation de réacteurs sous-critiques pourrait concilier ces deux exigences.

Lorsqu'elle suppose des recyclages, la transmutation en réacteur s'accompagne nécessairement d'opérations qui constituent un cycle spécifique dont les deux étapes principales sont le traitement des assemblages usés, contenant les actinides ou les P.F.V.L., et la refabrication de nouveaux assemblages pour continuer l'irradiation dans un nouveau cycle. La manipulation du plutonium et des actinides mineurs nécessite en général des protections biologiques renforcées (boîtes à gants, cellules blindées avec télé-manipulation) vis-à-vis de l'irradiation gamma et neutron. Parmi les émetteurs gamma on peut citer le neptunium 237 (310 keV émis par le protactinium 233 en équilibre), le plutonium 236 (2,6 MeV émis par un descendant, le thallium 208) et surtout l'américium 241 (15 et 60 keV en cascade). L'émission neutronique provient essentiellement des neutrons de fission spontanée d'actinides supérieurs (curium et traces de californium). Il y a enfin des problèmes accrus avec le dégagement de chaleur (plutonium 238, curium), les dommages par auto-irradiation hors réacteur des pastilles de combustible et l'activation éventuelle de nouveaux éléments chimiques dans les combustibles. Toutes ces contraintes se traduiront in fine par des surcoûts et des limitations de concentration des actinides dans les diverses phases liquides ou solides manipulées lors des opérations du cycle.

Le recyclage des actinides et la destruction du plutonium



Nucléaire : actinides

Encyclopædia Universalis France

Le plutonium est le plus important des actinides à considérer pour la transmutation, en raison de sa radiotoxicité et des quantités produites dans les réacteurs. Se pose également le problème de l'élimination au plan mondial du plutonium des armes nucléaires (environ 230 tonnes en 1994, selon l'Agence internationale de l'énergie atomique [A.I.E.A.]). Aujourd'hui, une partie du plutonium, séparé par traitement des combustibles usés, est recyclé une seule fois dans certains réacteurs en Europe de l'Ouest et au Japon (30 réacteurs dans le cas de France). Dans ces réacteurs, seulement un tiers du cœur est chargé avec des assemblages Mox dans lesquels la consommation élevée de plutonium (essentiellement plutonium 239) compense sa production dans les autres assemblages Uox. Cela s'accompagne d'une production accrue d'actinides mineurs. Le multirecyclage dans les R.E.P. imposerait une augmentation de la concentration de plutonium à chaque nouveau cycle pour compenser la perte de réactivité due à l'enrichissement progressif du plutonium en isotopes pairs absorbants de neutrons. On se heurte alors à un problème de sûreté, le coefficient de vidange devenant positif. Ces opérations de recyclage seraient d'autant plus efficaces vis-à-vis du plutonium que les temps d'irradiation sont longs (taux de combustion élevés) ou que l'on modifie le cœur des réacteurs de façon à produire globalement moins d'actinides.

Nucléaire : actinides et principaux produits de fission

Encyclopædia Universalis France

Comparé au cycle ouvert, le recyclage (en R.E.P. ou en R.N.R.) du seul plutonium réduit la radiotoxicité des déchets d'un facteur de l'ordre de 3 ; si l'on recycle en plus les actinides mineurs, la réduction de radiotoxicité peut atteindre un facteur 80-100 par rapport au cycle ouvert.

filière	²³⁷ Np	²⁴¹ Am	²⁴³ Am	²⁴⁴ Cm	²⁴⁴ Cm
réacteur à eau légère R.E.P.					
90 p. 100 des noyaux initiaux disparus	6,4	1,7	4,2	2,6	14,2
90 p. 100 détruits par fissions cumulées	15	15	30	9	27
consommation cumulée de neutrons ³	+ 1,12	+ 1,12	+ 0,82	- 1,19	- 0,53
réacteur à neutrons rapides R.N.R.					
90 p. 100 des noyaux initiaux disparus	11	9	11	6	19
90 p. 100 détruits par fissions cumulées	24	30	30	15	27
consommation cumulée de neutrons ³	- 0,59	- 0,62	- 0,60	- 2,13	- 1,39

1. Réf. : thèse de A. Giacometti, université d'Orsay, mai 1978.
 2. Réf. : M. Salvatores et al., *Nuclear Science and Engineering*, 116, 1-18 (1994).
 3. Pour transmuter un noyau : + indique une consommation, - une production.

Nucléaire : durées de transmutation d'actinides mineurs

Encyclopædia Universalis France

Différentes solutions permettant d'augmenter substantiellement les performances d'incinération sont à l'étude, en jouant sur la composition des combustibles. L'utilisation d'assemblages Mox à faible teneur en plutonium et à uranium enrichi ouvrirait la voie au multirecyclage homogène en R.E.P., conduisant à une stabilisation effective du plutonium au bout d'une cinquantaine d'années. Des conceptions de crayons d'assemblages à forte concentration en plutonium, voire sans uranium, sont également étudiées pour les R.E.P. et les R.N.R. (programmes APA et Capra du C.E.A.). L'utilisation de thorium au lieu d'uranium est probablement la solution la plus efficace pour détruire le

plutonium avec peu de production d'uranium 233, une nouvelle matière fissile artificielle formée à partir de la capture de neutrons par le thorium.

L'utilisation de réacteurs sous-critiques

Certaines contraintes évoquées plus haut pourraient être levées avec des réacteurs sous-critiques. En effet, ces derniers permettraient en principe de se rapprocher de la limite de 46 kg/TWh thermique grâce à des combustibles sans uranium pour la destruction du plutonium et des actinides mineurs, sur support inerte ou encore sur support thorium, avec substitution progressive de l'uranium 233 au plutonium. La sous-criticité joue ici un rôle essentiel puisqu'elle devrait permettre précisément de s'affranchir en partie des contraintes de sûreté (notamment celle qui est relative aux neutrons retardés), qui limitent, dans un réacteur classique, l'emploi de tels combustibles « exotiques ».

Les composantes d'un système sous-critique assisté par accélérateur

Le fonctionnement d'un réacteur classique est fondé sur les réactions de fission en chaîne maintenues à la criticité, c'est-à-dire avec un coefficient de multiplication des neutrons k égal à 1. Une configuration sous-critique $k < 1$ ne peut fonctionner que si des neutrons sont injectés en permanence de l'extérieur. Ceux-ci sont fournis dans la pratique par une source dite de spallation, constituée d'un matériau de nombre de masse élevé (par exemple du tungstène ou du plomb) bombardé par un faisceau intense de protons délivré par un accélérateur d'intensité I (en A). Le nombre ν_s de neutrons émis par proton incident au cours de ces processus augmente avec l'énergie incidente et la masse atomique de la cible ; il est de l'ordre de 20 pour une cible épaisse de plomb bombardée par un proton de 1 000 MeV.

Le potentiel d'incinération d'un tel réacteur, que l'on peut considérer comme un système sous-critique assisté par accélérateur, est défini par la puissance thermique P (en MW thermique) dégagée par l'ensemble sous-critique (ou réacteur sous-critique), soit : $P = E_f I (\nu_s/\nu) (k/(1 - k))$, où E_f (en MeV) est l'énergie libérée par fission (≈ 200 MeV) et ν le nombre moyen de neutrons émis par fission. On constate que l'intensité de faisceau I , nécessaire pour obtenir une puissance de réacteur donnée, est d'autant plus faible que l'on s'approche de la criticité $k = 1$. Typiquement, $I = 70$ mA pour $k = 0,95$ et $P = 3\,000$ MW thermiques (réacteur actuel). Cela nécessite de développer des accélérateurs linéaires de très haute intensité (de 10 à 100 mA).

Un tel système, pour l'incinération des déchets, présente deux avantages par rapport au réacteur critique équivalent : la disponibilité d'un surplus de neutrons $S = (v/k) - v$, utile pour transmuter des P.F.V.L. et une marge de criticité prompte plus importante.

État actuel des systèmes sous-critiques

Divers laboratoires (États-Unis, Japon, le Cern à Genève) ont présenté des modèles de systèmes sous-critiques depuis la fin des années 1980. Le concept de base actuel est dérivé en partie de celui proposé par [Carlo Rubbia](#) en 1994 au Cern : un réacteur à neutrons rapides et à combustible solide, utilisant le plomb (ou un eutectique Pb-Bi) comme cible de spallation, bombardée par un faisceau de protons de 600 à 1 000-MeV délivré par un accélérateur linéaire de haute intensité.

Des études théoriques et expérimentales portant sur les sous-ensembles d'un tel système (accélérateur linéaire, cible de spallation, réacteur sous-critique) ont été menées, pour la plupart dans le cadre de programmes financés par l'Union européenne. Faisant l'objet d'un bilan en 2008, elles indiquent l'importance de certains verrous technologiques relatifs pour l'essentiel au comportement des matériaux (résistance à l'irradiation et à la corrosion), à la fabrication de nouveaux types de combustibles et à des questions de sûreté. Cette situation a ramené au devant de la scène les réacteurs à neutrons rapides (de type Superphénix), revus actuellement dans le cadre plus général des réacteurs du futur dits de génération IV (cf. *Réacteurs*).

Les perspectives offertes par la transmutation

Quelles que soient les modalités de la transmutation, celle-ci suppose un parc de réacteurs comprenant des réacteurs dédiés à la production d'électricité, la destruction des actinides étant réalisée soit dans ces mêmes réacteurs, soit dans des réacteurs spécifiques. Dans un tel parc à double fonction, l'évolution des matières nucléaires (actinides, P.F.V.L.) suit les trois phases décrites plus haut (cf. *Caractéristiques principales de la transmutation*). La première est la phase de mise en équilibre, qui prend en général une cinquantaine d'années, la deuxième est la phase de régime à l'équilibre, qui doit durer au moins une centaine d'années jusqu'à ce que l'on décide d'arrêter la production nucléaire ; on entre alors dans une phase de décroissance lente, caractérisée par la destruction progressive des inventaires importants atteints à l'équilibre (par exemple, plusieurs centaines de tonnes de plutonium dans un parc comme celui de E.D.F.). Cette troisième phase peut prendre de 100 à 300 ans selon les cas. Outre que la mise en œuvre industrielle de la

transmutation suppose une industrie nucléaire performante dans des domaines comme le recyclage, les réacteurs dédiés, elle suppose également une durée très longue pour avoir un effet visible.

Ces contraintes temporelles proviennent essentiellement du choix des combustibles solides qui imposent des recyclages multiples avec de longs temps morts. D'autres concepts comme ceux qui sont fondés sur des réacteurs thermiques utilisant des combustibles liquides à sels fondus pourrait conduire à des durées plus courtes (absence de recyclage) et à des inventaires réduits (utilisation de spectres à neutrons thermiques). Il n'en reste pas moins que, dans tous les cas, les techniques de transmutation ne verront vraiment le jour que si le nucléaire est amené à se développer d'une manière très significative et pour longtemps. En dehors d'un tel contexte énergétique qui inclurait une forte option nucléaire, le stockage géologique profond de l'ensemble des déchets à vie longue restera la seule option à laquelle on aura recours ; c'est d'ailleurs la situation pour l'ensemble des pays de l'O.C.D.E. qui, à part la France et le Japon, ne manifestent actuellement guère d'intérêt pour la transmutation comme mode de gestion de leurs déchets.

— **Jean-Paul SCHAPIRA**

Bibliographie

L. H. BAETSLÉ, « Séparation et transmutation des radionucléides à vie longue dans la gestion des déchets nucléaires », in *Contrôle*, n° 134, 2000

C. BIRRAUX, *Le Projet de réacteur hybride du Pr. Carlo Rubbia*, Contrôle de la sûreté et de la sécurité des installations nucléaires, rapport de l'Office parlementaire d'évaluation des choix scientifiques et technologiques n° 3491, chap. 3, 1996

P. BONCHE et al., *Le nucléaire expliqué par des physiciens*, Éditions Lavoisier, 2002

C. D. BOWMAN, *Accelerator-driven Systems for Nuclear Waste Transmutation*, Ann. Rev. Nucl. Part. Sci., 1998, 48

C. D. BOWMAN et al., *Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation using an Accelerator-Driven Intense Thermal Neutron Source*, Nuclear Instruments and Methods, A320, 1992

S. DAVID et al., *Capacité des réacteurs à sels fondus pour l'incinération des*

déchets et la production d'énergie, rapport C.N.R.S

PACE/DIR, 2005

Les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue ; recherche et résultats sur la séparation et la transmutation des radionucléides à vie longue, rapport C.E.A

DEN/DDIN, 2005

H. NIFENECKER, O. MEPLAN & S. DAVID, *Accelerator Driven Subcritical Reactors*, Institute of Physics Publishing, Dirac House, Bristol, 2003

C. RUBBIA et al., *Fast Neutron Incineration in the Energy Amplifier as Alternative to Geologic Storage : the Case of Spain*, rapport Cern

LHC

97-01 (EET), 1997

M. SALVATORES et al., *Nuclear Science and Engineering*, 120, 18-39, 1995

J. P. SCHAPIRA, *Long-Term Nuclear waste Management : Present Status and Alternatives*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A280, 1989.

CLASSIFICATION

Techniques

Énergie

Énergie nucléaire

Cycle du combustible nucléaire

Déchets nucléaires

Environnement

Protection et gestion de l'environnement

Traitement des déchets

Traitement des déchets nucléaires

Techniques

Géologie appliquée

Géologie de l'ingénieur et de l'environnement

Physique

Physique nucléaire

Réactions nucléaires

Pierre BEREST, Jean-Paul SCHAPIRA, « **NUCLÉAIRE** - Déchets », *Encyclopædia Universalis* [en ligne], consulté le 28 septembre 2023.

URL :

<https://www-universalis-edu-com.ezproxy.normandie-univ.fr/encyclopedie/nucleaire-dechets/>