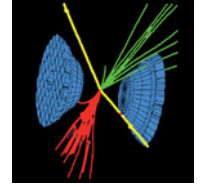


# La gestion des déchets nucléaires



La gestion des déchets nucléaires constitue pour le public un problème majeur et inquiétant bien que pour la majorité des acteurs du nucléaire, le stockage géologique soit une solution appropriée qui répond parfaitement aux légitimes exigences de sécurité. La loi de 1991 relative à la gestion des déchets nucléaires définit un cadre législatif qui a organisé pendant 15 ans les recherches sur ce sujet, et qui a pris soin d'y associer la société civile. Au vu des résultats obtenus, le parlement a voté en juin 2006 une nouvelle loi permettant de poursuivre et finaliser les recherches, avec pour objectif de proposer au parlement une solution industrielle pérenne à l'horizon 2015.

Après avoir appréhendé la complexité du sujet, les principaux acquis de la loi de 1991 seront présentés. Ils permettront d'une part de mieux comprendre les nouveaux enjeux des recherches actuelles et d'autre part de situer les solutions de gestion possible par rapport aux différents scénarios concernant la poursuite de l'utilisation de l'énergie nucléaire.

## Qu'est-ce qu'un déchet nucléaire ?

### Une définition ambiguë

L'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) définit un déchet radioactif comme *toute matière pour laquelle aucune utilisation n'est prévue et qui contient des radionucléides<sup>1</sup> en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissible dans les matériaux propres à une utilisation sans contrôle*. Cette définition très générale contient cependant trois ambiguïtés qui dépendent des politiques de chaque état. Prenons à titre d'exemple le cas des Etats-Unis d'Amérique et celui de la France. Les premiers ont fait le choix de stocker le combustible usé des centrales nucléaires sans aucun retraitement ; ainsi celui-ci, et tout ce qu'il contient est, selon cette définition, un déchet nucléaire. En France, nous avons choisi de retraiter le combustible et d'en extraire la majeure partie du plutonium et de l'uranium (dite « *matières valorisables* ») afin de les réutiliser : dans ce cas, ce combustible n'est plus (en intégralité) un déchet. Le plutonium extrait des combustibles usés est utilisé pour fabriquer des combustibles MOX ; mais si nous décidions d'arrêter le nucléaire, il deviendrait alors un « *déchet ultime* ».

La seconde ambiguïté concerne les limites supérieures admissibles des concentrations en radionucléides. Dans la plupart des pays les déchets de Très Faible Activité (TFA) sont considérés comme des déchets conventionnels ; cependant, en France, ils correspondent à une filière spécifique et il sont stockés dans un centre dédié (Centre de Stockage de Morvillier).

1. Isotope radioactif.

Enfin, la troisième ambiguïté concerne les effluents liquides ou gazeux qui sont rejetés directement dans l'environnement (mer, atmosphère) à partir d'une installation : la dilution de ces effluents permet de considérer l'environnement comme « utilisable sans contrôle ». Ces rejets de faible radioactivité doivent répondre à des normes d'émission très strictes mais ce ne sont donc pas des « déchets » au sens de cette définition.

Ainsi, la définition officielle rend souvent difficile une approche claire du problème, alors que le débat est déjà très passionné.

### Nature, origine et catégories des déchets

Les déchets ont des natures physiques très différentes demandant des traitements et des entreposages/stockages particuliers. Les déchets solides sont essentiellement composés des produits de fission et des actinides mineurs contenus dans les verres, de pièces métalliques (éléments de structure du combustible...), de matériaux incinérables (accessoires de protection, résine échangeuse d'ion...) et de déchets technologiques (câbles, appareillages...). Les effluents<sup>2</sup> (gazeux ou liquides) sont principalement les produits de fissions gazeux ou en solution et les liquides organiques (notamment le TriButyl Phosphate, TBP, qui sert de solvant de retraitement).

Les déchets radioactifs sont classés en différentes catégories, suivant leur niveau de radioactivité et la

2. Certains effluents radioactifs sont rejetés et dilués dans l'environnement et ne font donc pas partie des déchets : c'est le cas du krypton 85 (produit de fission gazeux, 11 ans de période), d'une partie du tritium (12 ans de période), de l'iode 129 (15 millions d'années de période, qui se mélange à son isotope stable <sup>133</sup>I dans la mer) et du carbone 14 (formé par réaction sur l'azote et l'oxygène, 5 700 ans de période).



Tableau 1 – Classification des catégories de déchets.

	Vie courte (VC) ( $T_{1/2} < 30$ ans)	Vie longue (VL) ( $T_{1/2} > 30$ ans)
<b>Très Faible Activité (TFA)</b>	10 à 100 Bq/g (~ radioactivité naturelle) Gravats issus du démantèlement et résidus miniers Stockage au centre TFA de Morvillier (capacité 650 000 m <sup>3</sup> , flux actuel : 30 000 m <sup>3</sup> /an)	
<b>Faible Activité (FA)</b>	100 à 10 <sup>5</sup> Bq/g Principalement exploitation, maintenance et démantèlement des installations nucléaires. Stockage de la Manche (jusqu'en 1995) puis Centre de l'Aube <sup>(a)</sup> (capacité 10 <sup>6</sup> m <sup>3</sup> , flux actuel : 18 000 m <sup>3</sup> /an)	Déchets radifère (minerais) et Graphite (réacteur UNGG) <sup>(b)</sup> (volume : 11 400 m <sup>3</sup> ). Pourraient être stockés en subsurface.
<b>Moyenne Activité (MA)</b>		10 <sup>5</sup> à 10 <sup>8</sup> Bq/g Origine variée (coques et embouts provenant surtout du retraitement, déchets de maintenance et exploitation, boues de traitement des effluents) <sup>(c)</sup> (flux actuel : 530 m <sup>3</sup> /an)
<b>Haute Activité (HA)</b>	plus de 10 <sup>8</sup> Bq/g Produits de Fission et Actinides Mineurs <sup>(c)</sup> (flux actuel : 120 m <sup>3</sup> /an)	

(a) Radioactivité proche de la radioactivité naturelle après 300 ans.  
 (b) 1<sup>re</sup> génération de réacteur, Uranium-Naturel-Graphite-Gaz. Stockage à l'étude.  
 (c) Filière à l'étude.

période radioactive des radionucléides qu'ils contiennent. Ils sont dits à vie longue lorsque leur période dépasse 30 ans, à vie courte dans le cas contraire. Le [tableau 1](#) donne la classification française des catégories de déchets.

## Gestion des déchets en France

Actuellement, la gestion des déchets radioactifs dans le monde s'organise selon deux options : le choix de retraiter le combustible avant un entreposage et/ou un stockage ou bien le choix de l'entreposage/stockage sans retraitement. Quelle que soit la politique choisie, il est nécessaire de laisser refroidir les assemblages de combustibles usés en piscine pour laisser décroître les radionucléides à vie courte afin qu'ils perdent ainsi une partie de leur puissance résiduelle (au moins 5 à 10 ans).

La France <sup>3</sup> a choisi d'extraire le Pu et l'U du combustible usé et de conditionner les déchets avant de les stocker. Ce retraitement se fait pour l'essentiel à La Hague et à Marcoule. Le combustible usé est séparé des gaines qui le contiennent ; celles-ci sont alors compactées (déchets MA-VL). Ensuite l'uranium et le plutonium, « matières valorisables », sont extraits du combustible (soit environ 96 % en masse) pour être en partie recyclés, alors que les produits de fission (~ 4 %) et les Actinides Mineurs (AM ~ 0,1 %), « déchets ultimes », sont vitrifiés pour être entreposés. Cette gestion aboutit à une réduction importante des volumes de déchets (mais pas de leur quantité), permettant ainsi un stockage sur une surface d'autant plus faible que le

plutonium a été retiré. Ce dernier est réutilisé en partie pour fabriquer du combustible neuf : le MOX, dont l'utilisation permet d'économiser aujourd'hui 10 % d'uranium. L'inconvénient vient du fait que la vitrification est pratiquement irréversible, fermant la porte à tout traitement ultérieur. Notons que la séparation du plutonium pose aussi des problèmes de prolifération.

*La situation française en quelques chiffres*

La [figure de l'encadré 1](#) donne les chiffres clefs de la situation française. Seuls les verres issus du retraitement des UOX usés, qui contiennent produits de fission et actinides mineurs (AM), sont considérés sans ambiguïté comme déchets. Les MOX usés constituent une réserve de plutonium, et sont pour l'instant considérés comme matière valorisable, même s'ils contiennent des produits de fission et des AM, eux-mêmes non valorisables. Le [tableau 2](#) montre l'évolution des volumes de production des déchets selon la catégorie, en supposant une

 Tableau 2 – Estimation de l'évolution des volumes (en m<sup>3</sup> équivalent conditionné) de déchets.

	Volumes (m <sup>3</sup> ) fin 2004	Prévision des volumes (m <sup>3</sup> )	
		pour 2010	pour 2020
<b>HA (Haute Activité)</b>	1 851	2 500	3 600
<b>MA-VL (Moyenne Activité, Vie Longue)</b>	45 518	49 500	54 900
<b>FA-VL (Faible Activité, Vie Longue)</b>	47 124	48 400	105 000
<b>FMA-VC (Faible et Moyenne Activité, Vie Courte)</b>	793 726	929 000	1 200 000
<b>TFA (Très Faible Activité)</b>	144 498	300 000	581 000

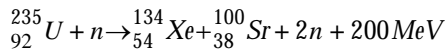
3. A part la France, seuls le Royaume-Uni (Sellafield) et le Japon (Rokkasho-Mura) retraitent leur combustible ; d'autres pays comme l'Allemagne, la Suisse... font retraiter leur combustible à La Hague et à Sellafield.



Encadré 1

Principe de fonctionnement d'un réacteur

Un réacteur nucléaire a pour objectif de récupérer l'énergie de fission (environ 200 MeV par fission) : en absorbant un neutron, certains noyaux lourds ( $A > 230$ ), dits *fissiles*, se divisent en deux noyaux de masse environ deux fois plus faible, les *produits de fission (PF)*. Ces derniers émettent des neutrons qui peuvent à leur tour induire de nouvelles fissions, entretenant ainsi une réaction en chaîne. La fission de l' $^{235}\text{U}$  conduit par exemple à

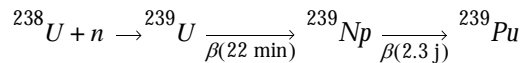


La chaleur produite par l'arrêt des PF est extraite du cœur du réacteur par un caloporteur (eau, sodium...). Les réacteurs sont dits thermiques (*Réacteur à Eau sous Pression, REP*) lorsque les neutrons de fission (dont l'énergie est environ 2 MeV) sont ralentis (par de l'eau par exemple) jusqu'à des énergies de l'ordre de 1eV et ils sont dits rapides (*Réacteur à neutron Rapide [RNR]* comme SuperPhenix) lorsque leur énergie moyenne est de l'ordre de 100 keV.

La réaction en chaîne est caractérisée par le *facteur de multiplication k* qui donne en moyenne le nombre de nouvelles fissions induites par une fission. Si  $k < 1$ , la réaction en chaîne s'arrête très rapidement ; on dit que le réacteur est sous critique (c'est le cas des réacteurs pilotés par accélérateur [ADSR] où une source externe de neutrons entretient la réaction) ; si  $k > 1$ , la réaction en chaîne diverge et le réacteur est sur-critique ; enfin si  $k = 1$ , la réaction en chaîne est auto-entretenu : on dit que le réacteur est critique. Les réacteurs actuels sont tous critiques ; pour maintenir exactement la valeur de  $k = 1$ , on utilise des *barres de pilotage*, constituées d'un absorbant neutronique (typiquement le bore) qui, en fonction de leur enfoncement dans le cœur du réacteur, vont absorber plus ou moins de neutrons. Cependant la cinétique de la réaction en chaîne est très rapide (par exemple, si  $k = 1.001$ , la puissance est mul-

tipliée par 2 en 0,07s) et le mouvement des barres est "lent" (~ 1 s). Heureusement, bien que la plupart des neutrons de fission (99,3 % pour l'uranium 235) soient émis instantanément (en ~  $10^{-14}$  s), certains PF vont émettre, après désexcitation par radioactivité  $\beta$ , quelques neutrons, les *neutrons retardés*. Ceci permet de contrôler la réaction en chaîne avec des temps de l'ordre de la dizaine de secondes. Notons enfin que des contre-réactions physiques sont nécessaires à la stabilité du cœur : une augmentation de la température doit provoquer une diminution de k, et une dilatation (ou perte) du caloporteur doit également provoquer une telle diminution.

Ceci impose de fortes contraintes sur le choix du combustible qui doit avoir de bonnes caractéristiques à la fois pour les neutrons retardés et pour les contre-réactions. Actuellement seul l'uranium et le plutonium sont utilisés : dans les REP, le combustible est soit un oxyde d'uranium (**UOX**) enrichi en  $^{235}\text{U}$ , le seul fissile naturel, à hauteur de 3 à 4 %, soit un oxyde mixte d'uranium et plutonium (**MOX**) ; le plutonium provient du retraitement des combustibles UOX usés (l'utilisation des MOX est limitée à 1/3 d'un cœur en raison de la baisse d'efficacité des barres de contrôle due au durcissement du spectre neutronique et de la plus faible proportion de neutrons retardés). Pour les RNR, le fissile est  $^{239}\text{Pu}$ , qui est mélangé à de l' $^{238}\text{U}$  : ce dernier, naturellement abondant, est dit *fertile* car après capture d'un neutron et une double décroissance  $\beta$ , il produit du  $^{239}\text{Pu}$ ,



ce qui permet de régénérer le fissile. Notons enfin qu'un combustible à forte teneur (~ 5 %) en *actinides mineurs (AM)* (Np, Am, Cm) rend le pilotage d'un réacteur critique beaucoup trop nerveux, à cause du peu de neutrons retardés émis.

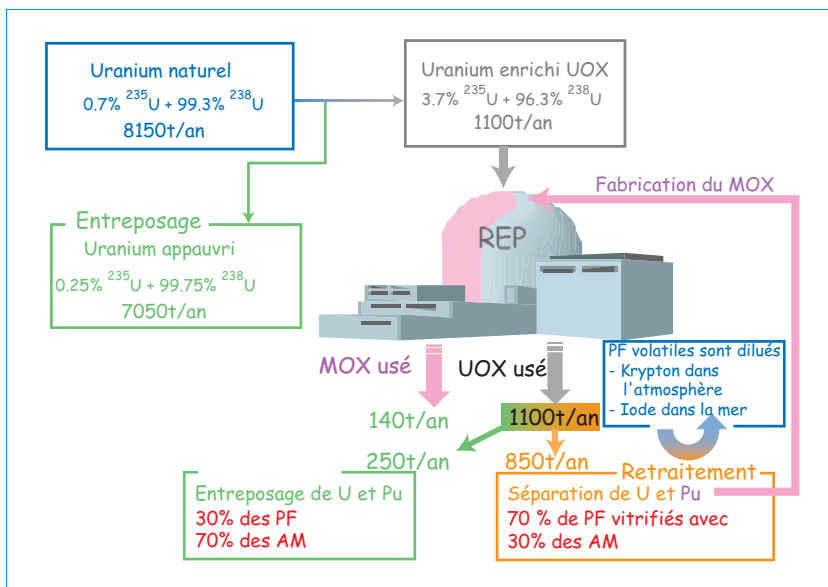


Figure – Parc de REP français. L'uranium naturel extrait de la mine est enrichi pour fabriquer le combustible UOX (représenté en gris) laissant de côté l'uranium appauvri, matière valorisable ; après un passage en réacteur, le retraitement d'une partie de l'UOX usé permet d'extraire du Pu pour fabriquer le combustible MOX (en rose). Après avoir été utilisé dans une partie des REP, ce dernier ainsi que l'autre partie de l'UOX usé, sont entreposés comme matières valorisables (encadrés verts). Lors du retraitement, une partie des PF volatiles sont rejetés dans l'environnement. Les déchets ultimes sont représentés en rouge.



continuation du nucléaire au niveau actuel ; la très forte augmentation du volume de déchets TFA est due au démantèlement des installations nucléaires anciennes. La relativement faible augmentation des autres déchets vient du fait que d'une part le reconditionnement des déchets anciens a généré des volumes importants, et que d'autre part, les progrès accomplis depuis 1990 ont permis de réduire les volumes.

## La loi de 1991 et son contexte

Au début des années quatre-vingts, il a été décidé par l'industrie nucléaire en accord avec les pouvoirs publics, que les déchets nucléaires devaient être stockés ; mais devant les oppositions fortes tant des populations locales que des politiques, le gouvernement décida d'un moratoire sur la procédure de recherche d'un site de stockage géologique. Le 30 décembre 1991, une loi connue sous le nom de *loi Bataille*<sup>4</sup>, est adoptée : elle proposait un cadre législatif sur la gestion des déchets radioactifs et organisait la recherche sur les déchets HA-VL autour de 3 axes :

- recherche de solutions concernant la séparation et la transmutation des déchets à vie longue ;
- étude des possibilités de stockage réversible ou irréversible en formations géologiques profondes avec réalisation de deux laboratoires souterrains ;
- étude des procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée en surface (ou subsurface) des déchets.

Cette loi était accompagnée d'un moratoire de 15 ans sur toute décision concernant le devenir à long terme des déchets et imposait un rendez-vous en 2006 devant le parlement afin que des décisions puissent être prises. Le pilotage des axes 1 et 3 ont été confiés au CEA, et l'axe 2 à l'ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs).

Il faut noter que les combustibles irradiés et non retraités (une partie des combustibles UOX et la totalité des combustibles MOX) ne sont pas concernés par cette loi, même s'ils contiennent une quantité importante d'AM et de produits de fission. Pour les déchets actuellement vitrifiés, la solution implicitement retenue est un stockage définitif.

## Les grands axes de recherche

### Conditionnement - Entreposage - Stockage

#### *Conditionnement*

Les études concernant le conditionnement portent, d'une part sur l'amélioration de procédé (réduction des volumes, plus faible production de déchets secondaires...) pour prendre en compte l'évolution de la compo-

sition des déchets produits (taux de combustion plus élevé) et d'autre part, sur la caractérisation du colis et de son comportement à long terme. La reprise et le reconditionnement de déchets anciens sont également étudiés.

La diminution des volumes de déchets est, pour une grande part, obtenue grâce au zonage des ateliers, au tri, au recyclage et à une amélioration des méthodes de mesure et caractérisation des colis (méthodes non destructives). Actuellement, le volume de déchets après traitement des combustibles est réduit d'environ un facteur 4. Notons enfin qu'en 10 ans, le rejet des effluents liquides de La Hague a été divisé par presque 10.

#### *La Vitrification des HA-VL*

Les produits de fissions et les actinides mineurs (soit environ 99 % de la radioactivité des déchets) sont homogénéisés dans un verre borosilicaté puis coulés dans un Conteneur Standard de Déchets (CSD). La principale source de dégradation à long terme du verre est l'irradiation par les actinides mineurs et par les PF, qui se traduit par une production de chaleur d'environ 2 kW par colis. Des études expérimentales (irradiations, lixiviation...) et numériques, ainsi que l'étude d'analogues archéologiques (l'obsidienne, verre volcanique, est très proche du verre utilisé pour la vitrification) montrent les très bonnes capacités de confinement de ce type de conteneur. Bien que ce procédé industriel soit bien maîtrisé, des études continuent afin de pouvoir augmenter la teneur en déchets (15 % en masse actuellement) en utilisant des procédés de vitrification par induction directe en creuset froid qui permettent d'aller jusqu'à 22 % en masse.

#### *Le Compactage*

Les gaines contenant le combustible et les pièces de structure sont découpées, lavées dans un bain d'acide nitrique, puis compactées en galette avant d'être mises dans des CSD. Ces déchets MA-VL représentent environ 1 % de la radioactivité des déchets (produits d'activation suite aux captures neutroniques).

#### *La Cimentation et le Bitumage des FMA*

Ces procédés consistent à bloquer les déchets (liquides ou solides) dans une matrice de ciment ou de bitume. Le volume des colis cimentés étant environ deux fois celui du déchet brut, de nouveaux ciments (sulfo-alumineux, béton-fibre) ont été développés afin d'incorporer de plus grandes quantités et variétés de déchets. Le bitumage<sup>5</sup> a montré des problèmes de gonflement (dégagement de gaz dû au rayonnement). Récemment, il a été montré que le dopage de ces bitumes avec des sels de cobalt réduit sensiblement ce gonflement.

#### *Entreposage*

Par définition un entreposage est temporaire. Dans le cadre de la loi de 1991, des études génériques ont été

4. Du nom de son rapporteur, C. Bataille.

5. Il n'est actuellement réservé que pour les effluents soudés incompatibles avec la vitrification ou la cimentation.



menées sur un entreposage longue durée (100 à 300 ans) en surface ou en subsurface.

Un entreposage demande une maintenance et suppose donc que la société en assure le contrôle pendant des siècles. Comme la stabilité de la société ne peut être supposée sur de telles périodes, il faut prendre en compte le cas où cette maintenance serait interrompue pendant des périodes assez longues (10 ans) sans diminuer la sûreté de l'entreposage. Ceci implique que les déchets entreposés soient conditionnés et que les composants soient aussi simples et passifs que possible. Concernant les HA-VL, les études ont retenu l'utilisation de conteneurs en acier pouvant accueillir 6 CSD ; les assemblages de combustible usé<sup>6</sup> seraient mis dans des étuis individuels étanches, eux-mêmes placés dans un conteneur analogue. La corrosion de ces conteneurs est estimée (dans les conditions normales) à 0,8 % de leur épaisseur en 350 ans. Les colis ne produisant pas ou peu de chaleur (MA-VL) seraient placés dans un conteneur en béton. L'entreposage se ferait alors en surface ou en subsurface.

#### Stockage

Par opposition à l'entreposage, le stockage en couche géologique a vocation à être définitif. Cependant, et c'est sans conteste l'un des apports de la loi de 1991 avec les débats citoyens, il est maintenant admis par tous les acteurs qu'un stockage doit être réversible : le site de stockage sera fermé par étapes successives, chaque étape rendant plus difficile la réversibilité ; il s'agit donc d'un passage graduel du réversible à l'irréversible (fermeture du site).

Un stockage géologique doit limiter le relâchement des radionucléides, retarder et atténuer le temps de migration pour les éléments qui pourraient en sortir, et empêcher la circulation d'eau, principal vecteur de la radioactivité, qui dégrade les colis.

Un certain nombre d'études basées sur la modélisation des processus gouvernant l'évolution à long terme du stockage (comportement des barrières ouvragées, comportement des radionucléides...) ont été menées en prenant des hypothèses conservatives et en étudiant divers scénarios (évolution normale, défaillance des colis, évolutions climatiques...) ; elles englobent de très vastes aspects qui concernent la physique, la chimie et la mécanique. Les matériaux doivent avoir de bonnes propriétés thermo-hydro-mécaniques pour éviter que les évolutions temporelles de température, de teneur en eau ou de composition chimique ne les détériorent. Des expérimentations de terrain doivent fournir des données

6. Bien que n'étant pas au sens de la loi un déchet, les combustibles usés ont été considérés dans l'étude.

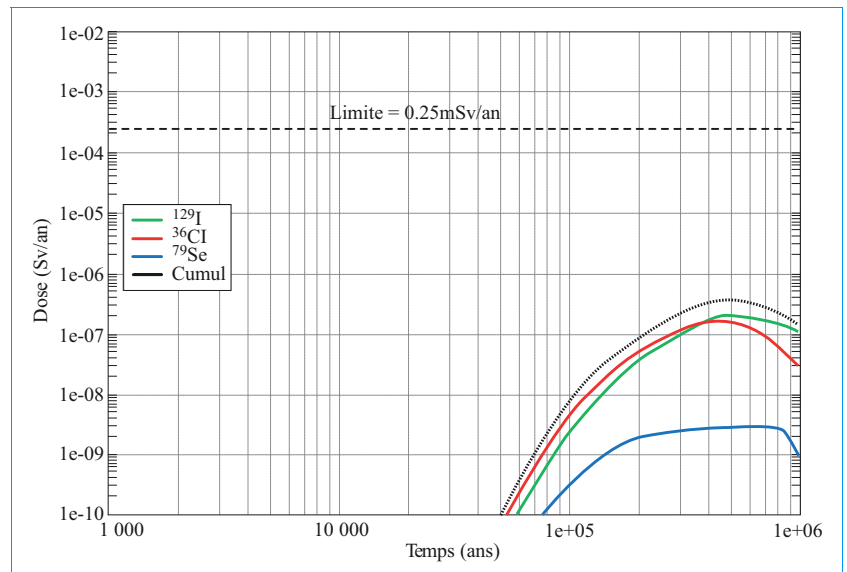


Figure 1 – Evolution (dans des conditions normales) de la dose en fonction du temps à l'exutoire pour un site de stockage (type Bure) contenant des déchets vitrifiés.

pour ces modèles et éventuellement confirmer ou infirmer certaines hypothèses ; c'est pour cela que dans le cadre de la loi Bataille, deux laboratoires souterrains devaient être construits pour étudier un site de stockage dans l'argile, et un autre dans le granit. Concernant ce dernier, suite aux oppositions rencontrées, aucun site n'a pu être choisi et seules des études génériques ainsi que des expérimentations dans des laboratoires étrangers (Suède, Suisse, Canada et Finlande) ont été menées sans aboutir à la faisabilité d'un centre de stockage en France. Pour les études dans l'argile, le laboratoire souterrain de Bure a été construit (couche d'argile dure à – 500 m).

Les résultats des études ont montré la faisabilité scientifique sur ce site du stockage des déchets HA-VL (faible perméabilité, homogénéité de la couche, absence de faille, sismicité très faible, circulation d'eau très faible et lente...). Des données concernant la mobilité et la rétention de certains radionucléides ont pu être obtenues ; il a été montré, comme cela avait été constaté avec des analogues naturels<sup>7</sup>, que les actinides, dont la mobilité est très faible, restent sur le site de stockage (migration de quelques mètres en un million d'années), même après dégradation de celui-ci ; les conclusions des études de l'ANDRA montrent que l'impact sur l'environnement est dû au chlore 36, à l'iode 129 et au sélénium 79<sup>8</sup> (voir [figure 1](#)).

Même dans le cas où tous les étuis de combustibles usés non retraités seraient stockés et défaillants, la dose reste inférieure d'un facteur dix au seuil de 0,25 mSv/an

7. En 1972 des réacteurs nucléaires naturels ont été découverts à Oklo (Gabon), qui ont fonctionné il y a 2 milliards d'années. Les conditions géologiques, et notamment la teneur du minerai en <sup>235</sup>U ont provoqué une réaction en chaîne spontanée. Cette découverte a notamment permis d'étudier la migration des actinides dans la roche.

8. Ces études ont montré que les mobilités du Cs et du Tc avaient très largement été surestimées.



fixé comme limite admissible que pourrait recevoir le public en plus de la radioactivité naturelle (~ 2,4 mSv/an en France).

### Séparation

Comme nous l'avons déjà dit, l'objectif du retraitement des déchets est basé sur leur concentration dans un volume plus faible ; l'uranium et le plutonium des combustibles usés sont quant à eux extraits (procédé Purex, *figure 3a*), en tant que matière valorisable. Il a été montré que le procédé Purex, basé sur la dissolution des combustibles usés dans de l'acide nitrique, pouvait extraire des quantités significative de Np, Tc et I (près de 99 % de l'iode peut être récupéré).

Les AM dominent la radiotoxicité à long terme (cf. *figure 2*) ; de plus, ils sont les principaux responsables du dégagement de chaleur qui est un facteur limitant pour le dimensionnement d'un stockage géologique.

De nouveaux extractants sélectifs ont donc été mis au point pour extraire les actinides mineurs dominants (Am et Cm) ainsi que le Cs : le principe de cette *séparation poussée* est basé sur deux procédés, Diamex et Sanex (*figure 3b*), qui opèrent sur le substrat du procédé Purex.

Les tests effectués sont très concluants et une extraction a été réalisée sur 13 kg de combustible irradié dans des conditions proches des conditions industrielles avec des taux de perte de l'ordre de 0,1%.

Le césium doit être séparé par des calixarènes, molécules permettant de le piéger (taux de récupération de l'ordre de 99,9 % en laboratoire). Les recherches continuent pour essayer de trouver des extractants qui soient très sélectifs, donnant des taux de récupération élevés<sup>9</sup> en des temps compatibles avec les exigences industrielles, résistants aux radiations, régénérables et incinérables afin de minimiser la production de déchets secondaires.

Parallèlement à cette voie hydrométallurgique, des recherches prospectives sont menées sur la pyrochimie qui pourrait s'appliquer aux combustibles des réacteurs de 4<sup>e</sup> génération. Le principe général de cette méthode est la mise en solution des éléments à séparer dans un bain de sels fondus (halogénures alcalins et alcalino-terreux) à haute température. Ces sels sont mis en

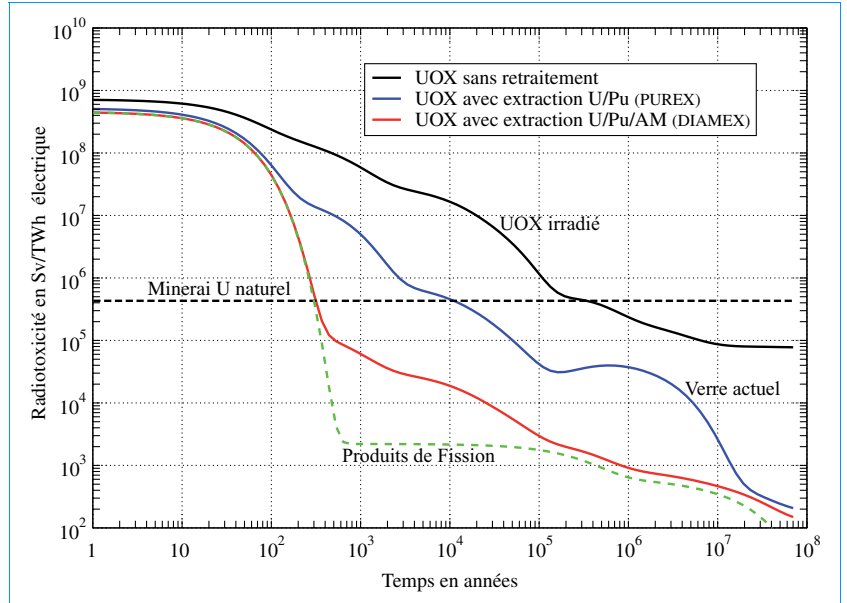


Figure 2 – Radiotoxicité d'assemblages UOX et MOX en fonction du retraitement choisi.

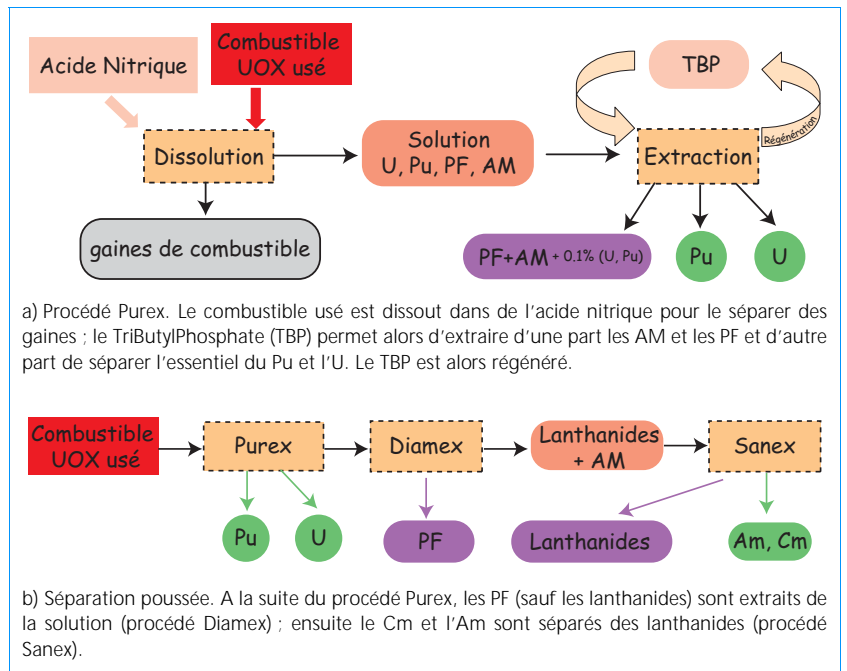


Figure 3 – Procédés de séparation chimique.

contact avec des alliages à bas point de fusion. La récupération sélective des éléments se fait par les métaux fondus, électrodeposition et précipitation (mécanismes d'oxydo-réduction). L'intérêt de cette technique réside d'une part dans sa faible sensibilité à la radiolyse, qui fait qu'il n'est pas nécessaire de laisser décroître le combustible usé, et d'autre part dans l'augmentation des concentrations en matière fissile<sup>10</sup> entraînant donc, en principe, une compacité du dispositif. Il serait également possible d'extraire ensemble tous les transuraniens.

9. Ce taux de récupération est un paramètre très sensible sur la radiotoxicité des déchets générés.

10. Pour que les procédés aqueux soient efficaces, la concentration doit être assez faible.



Par contre les sels fondus sont très corrosifs, les taux de séparation sont actuellement assez bas et la mise en œuvre technologique n'est pas prouvée.

## Transmutation

La transmutation permet, par réaction nucléaire, de transformer un corps en un autre. Le but recherché est de transformer des isotopes radioactifs à vie longue en isotopes stables ou à vie courte. Pour ce faire, on les placeraient en réacteur (dédié ou non), afin de profiter de hauts flux de neutrons. Cela n'est pas sans impact sur la conduite du réacteur dont le nombre de neutrons disponibles pour entretenir son fonctionnement (réaction en chaîne de fission) est généralement limité. En théorie, la transmutation des produits de fission – qui se désintègreront en corps stables après capture de neutrons – ou des actinides mineurs – dans ce cas la transmutation consiste à les faire fissionner, on parle alors d'incinération – est possible.

Les produits de fission à vie longue sont le césium 135, l'iode 129 et le technétium 99. La transmutation du césium requiert une séparation isotopique lourde qui la rend impossible de façon significative. Pour l'iode 129 et le Tc 99, il serait possible de réaliser des cibles placées dans un réacteur, mais d'une part cela nécessite plusieurs recyclages en raison de faibles rendements de transmutation et d'autre part, pour l'iode, aucune cible de stabilité suffisante n'a pu être fabriquée.

Ainsi, seule la transmutation des AM est actuellement réellement envisagée. Elle nécessite donc leur séparation préalable. Deux solutions sont alors possibles : soit la transmutation homogène (les AM sont mélangés au combustible du réacteur électrogène) soit hétérogène (des crayons ou cibles spécifiques sont placés dans le réacteur). Il est ensuite possible de gérer le combustible ou la cible en un ou plusieurs cycles de combustion : le mono-recyclage (un passage en réacteur) ou le multi-recyclage (plusieurs passages pour augmenter le taux de transmutation). Le spectre des neutrons est aussi important : il peut être thermique (neutrons lents) comme dans les REP actuels ou rapides comme dans les RNR. Enfin, la transmutation peut être faite dans des réacteurs électrogènes ou dans des réacteurs dédiés, qui seraient alors des réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur ou ADSR pour Accelerator-Driven Subcritical Reactors.

Dans les réacteurs critiques, la transmutation homogène ne permet pas de mettre trop d'AM en raison des paramètres de sûreté contrôlant le pilotage<sup>11</sup> du réacteur (au maximum 5 % en masse). Les taux d'incinération sont assez faibles (30 %) et il faut donc un multi-recyclage du combustible.

La transmutation hétérogène permet d'atteindre en principe des taux de transmutation plus élevés (de l'ordre de 90 %) en mono-recyclage en raison des plus fortes concentrations d'AM qui peuvent être introduites dans le cœur du réacteur, soit quelques dizaines de pourcents. Cependant, il se pose des problèmes de fabrication des cibles de combustible (gonflement, thermique...). Ce mode de transmutation repose sur le procédé de séparation poussée (Diamex et Sanex).

La transmutation en réacteur dédié (ADSR) permet de lever une part des contraintes sur la sûreté : le pilotage d'un réacteur sous-critique est assuré par une source externe de neutrons (et non plus par les neutrons retardés). La source externe de neutrons est constituée d'un accélérateur de protons (1 GeV) de forte intensité (~ 10 mA) ; les protons viennent frapper une cible de métal lourd (Pb, Pb-Bi, ...), la *cible de spallation*, pour produire des neutrons en cassant les noyaux du métal. De nombreuses études sont en cours pour démontrer la faisabilité et la sûreté de ce type de réacteur ; les principaux problèmes résident dans la très grande fiabilité requise de l'accélérateur, dans la fabrication de la cible de spallation, dans les contraintes thermiques et mécaniques à proximité du faisceau et dans la fabrication de combustibles très riches en AM. Notons qu'un autre avantage des ADSR est de pouvoir initier la transmutation sans attendre la mise en place d'une éventuelle quatrième génération de réacteurs.

## 2006 et après ?

### Bilan pluridisciplinaire de la loi de 1991

Le premier bilan qu'on peut faire à l'issue de cette rétrospective est technique. L'axe 3 (entreposage et conditionnement) est relativement abouti ; certes, il y a encore de la recherche et du développement à poursuivre, mais des avancées significatives ont été obtenues.

Le bilan de l'axe 1 (séparation et transmutation) est plus mitigé : concernant la séparation poussée des progrès importants ont été réalisés, avec démonstration à l'échelle industrielle. La pyrochimie est bien moins avancée mais des études sont en cours. A propos de la transmutation, de nombreuses études d'incinération de Pu + AM par multirecyclage en RNR ont confirmé les avantages de cette solution. Outre l'extension significative des ressources en combustible nucléaire, ces RNR permettraient de stabiliser les stocks de Pu et AM, moyennant une concentration de ces derniers dans le cycle. Parallèlement à ces études, des progrès importants ont été réalisés quant à la conception et la compréhension des ADSR. Ces réacteurs dédiés à l'incinération des AM pourraient être démarrés, après des efforts de recherche et de développement et à la condition d'une volonté politique forte, indépendamment de l'arrivée des RNR.

11. En raison de la plus faible proportion de neutrons retardés (voir encadré 1).



Le bilan de la recherche sur le stockage géologique (axe 2) est également plus mitigé : peu de résultats sur un stockage dans du granit ont vu le jour compte-tenu de l'impossibilité de trouver un site d'étude. Pour le stockage dans l'argile, le laboratoire de Bure a permis de compléter de façon significative les bases de données utilisées par les modèles de simulation et une faisabilité de stockage est presque acquise ; cependant, en raison de retards dans la construction du laboratoire, tous les résultats escomptés n'ont pu être obtenus et les études doivent se poursuivre. Il est à noter que les études de faisabilité sont basées sur des modèles et des hypothèses conservatrices mais, étant donné les échelles de temps considérées, il est possible que certains événements non explorés puissent avoir des conséquences dépassant les marges de sûreté.

Après 15 ans de recherches, le bilan de la loi de 1991 s'établit bien au-delà des seules avancées techniques que nous venons d'évoquer. Elle a permis à la recherche académique (CNRS et universités) de s'investir dans ce domaine. Celle-ci a ainsi gagné une légitimité indéniable sur le sujet qui a permis au débat technique de sortir de son cadre initial essentiellement industriel. A travers les différents groupements de recherche, de nombreuses disciplines se sont réunies et ont travaillé ensemble. Cet investissement a également eu un impact sur la perception du public qui ne considère pas que le CNRS et les universités fassent partie d'un « lobby nucléaire ». L'intervention des sciences humaines a permis de donner un éclairage sur l'acceptabilité sociale ; il faut souligner aussi l'importance du débat public à cet égard.

Cependant, on peut regretter que la loi se limite aux déchets à vie longue et de haute activité, sans prendre en compte les autres matières (combustibles irradiés, TFA...).

Au terme fixé par la loi de 1991, le 28 juin 2006, le parlement a décidé de poursuivre les recherches pour 10 ans, en insistant principalement sur la finalisation d'un dossier sur le stockage géologique des déchets à Bure. Il a été souligné que des recherches pour la séparation/transmutation devaient continuer jusqu'en 2012 afin de préparer l'arrivée des réacteurs de 4<sup>e</sup> génération.

### Scénarios pour le futur du nucléaire et recherches associées

Pour établir un bilan complet des recherches menées depuis 1991, il est nécessaire de mettre en perspective leurs résultats avec les différentes évolutions possibles de la production d'électricité nucléaire en France. En effet, selon le type de scénario retenu pour les prochaines décennies, la gestion des déchets nucléaires actuels et à venir ne sera pas basée tout à fait sur les mêmes technologies et ne posera pas non plus les mêmes problèmes.

#### *Arrêt ou poursuite du nucléaire, sans rupture technologique*

Le scénario d'arrêt le plus simple consiste à ne pas renouveler le parc actuel, en abandonnant tout retraitement. Les déchets sont alors constitués des verres mais également de tous les éléments de combustibles usés qui s'accumulent après l'arrêt du retraitement. Dans le cas d'un simple remplacement des REP par des EPR<sup>12</sup>, se pose la question de la poursuite du recyclage MOX du plutonium, permettant d'éviter son accumulation (à hauteur de 1 000 tonnes en 2100 en cycle ouvert). Le multirecyclage du plutonium serait même envisageable en REP, à condition d'utiliser un support uranium enrichi (MOX UE).

#### *Poursuite durable avec ruptures technologiques*

Les scénarios de poursuite durable du nucléaire sont basés sur des technologies innovantes. Il s'agit dans ce cas d'assurer la transition des réacteurs actuels vers des réacteurs de 4<sup>e</sup> génération capables de régénérer leur inventaire fissile à partir de leur chargement en noyaux fertiles (U-238 ou Th-232) qu'ils tendent ainsi à utiliser à 100 %. C'est le cas des RNR, réacteurs rapides à combustible U/Pu, qui présentent également l'avantage de pouvoir multirecycliser à la fois plutonium et actinides mineurs, réduisant fortement leur présence dans les déchets. Tous ses scénarios supposent ainsi un net développement des technologies de séparation, notamment basées sur la pyrochimie. La régénération est également possible à partir de thorium, à la fois en réacteurs thermiques et en réacteurs rapides. Cependant elle est plus difficile à obtenir (du point de vue de la neutronique) que dans les RNR U/Pu. Du fait du nombre de masse plus bas du Th-232, la production d'actinides mineurs est drastiquement réduite par rapport au cycle U/Pu, générant des radiotoxicités de déchets inférieures de un à deux ordres de grandeur. L'intérêt de scénarios basés sur un cycle Th/U-233 justifie par exemple les études actuelles de production d'U-233 en réacteurs existants.

### De nouvelles priorités de recherche pour la gestion des déchets

A la lumière des deux grandes catégories de scénarios que nous venons de distinguer, il est possible de dresser le bilan des recherches à poursuivre ou à initier selon la priorité qu'on leur accorde. Si l'on se contente d'un arrêt ou d'un simple prolongement du parc français actuel, le bilan des 15 dernières années de recherche centrées sur la gestion des déchets actuels est satisfaisant, avec des études qui restent à concrétiser, en particulier sur le stockage profond, mais sans grande innovation supplémentaire réellement nécessaire.

12. Il s'agit de la version améliorée des REP.





Si, au contraire, un consensus se forme pour une poursuite durable de la production d'énergie nucléaire en France, il faut poursuivre la plupart des recherches initiées de façon plus poussée et plus rapide. Les motivations possibles sont multiples, depuis le maintien nécessaire d'un certain savoir-faire technologique jusqu'aux pressions économiques et écologiques exercées par les énergies fossiles. Deux domaines de recherche à privilégier seraient alors la chimie du retraitement et la physique des réacteurs innovants. Les procédés de séparation poussée doivent être mis en œuvre le plus tôt possible, afin de n'hypothéquer aucune option pour le futur. En

complément, les études de réacteurs doivent compléter le panel des recyclages envisageables d'une part, et préparer la venue éventuelle d'une nouvelle génération de réacteurs d'autre part.

#### POUR EN SAVOIR PLUS

**Clefs CEA**, Déchets radioactifs, des solutions en progrès continu, n° 53, Hiver 2005-2006.

**Cahiers du CNRS n° 5**, Recherche et déchets nucléaires, une réflexion interdisciplinaire. MSH-Alpes, Février 2006.

#### RAPPEL SUR LES UNITÉS

**Becquerel (Bq) :**

unité de mesure de la radioactivité  
1 Bq = 1 désintégration par seconde

**Gray (Gy) :**

mesure de la dose absorbée, c'est-à-dire de la quantité d'énergie déposée.  
1 Gy = 1 Joule/kg de matière irradiée.  
On ne connaît pas d'effet biologique en dessous de 250 mGy.

**Sievert (Sv) :**

mesure de la dose équivalente (ou efficace), c'est-à-dire des effets biologiques des rayonnements auxquels un organisme est exposé.  
1 Sv = 1 Gy x (facteur de pondération) propre à chaque rayonnement et organe.  
L'unité la plus courante est le mSv (millisievert).  
La radioactivité moyenne en France induit une dose équivalente annuelle par habitant de 2,4 mSv.