

Les différents aspects du cycle actuel, de l'extraction de l'uranium au stockage des déchets

J.P. Schapira

▶ **To cite this version:**

J.P. Schapira. Les différents aspects du cycle actuel, de l'extraction de l'uranium au stockage des déchets. École thématique. Ecole Joliot Curie "Production d'énergie nucléaire et traitement des déchets : des filières d'aujourd'hui aux solutions innovantes", Maubuisson, (France), du 9-14 septembre 1996 : 15ème session, 1996. cel-00651959

HAL Id: cel-00651959
https://cel.hal.science/cel-00651959

Submitted on 14 Dec 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

LES DIFFERENTS ASPECTS DU CYCLE ACTUEL, DE L'EXTRACTION DE L'URANIUM AU STOCKAGE DES DECHETS

J.P. SCHAPIRA

Institut de Physique Nucléaire, 91406 Orsay cedex

RESUME:

L'ensemble des opérations du cycle du combustible est décrit, dans le cadre de la filière à uranium enrichi et à eau pressurisée adoptée aujourd'hui en France. L'accent est mis sur la production de déchets et les flux de matières nucléaires aux diverses étapes du cycle, dans le cadre du retraitement et du recyclage du plutonium. Les données présentées sont normalisées à l'électricité produite par un réacteur du palier 900 MWé. On décrit, dans une deuxième partie, les politiques de gestion des combustibles usés en France et à l'étranger, fondées sur le retraitement et le monorecyclage du plutonium ou sur l'entreposage, suivi éventuellement du stockage définitif en l'état.

ABSTRACT:

The nuclear fuel cycle, related to the actual pressurized reactor used in France, is presented. Emphasis will be put on the amount of nuclear wastes produced and nuclear material fluxes at each step of the fuel cycle, in the framework of the reprocessing and plutonium recycling scheme adopted so far in France. These data will be normalized to the amount of electricity produced by one 900 MWe reactor. In a second part, spent fuel management and nuclear waste policies in France and other countries will be described and compared.

1. INTRODUCTION

Un certain nombre d'activités industrielles, médicales ou de recherche portent sur des matières contenant des corps radioactifs ou mettent en oeuvre des rayonnements nucléaires. Elles engendrent des déchets dits radioactifs, qui peuvent être sous forme gazeuse, liquide ou solide. L'Agence de l'énergie nucléaire de l'OCDE en a donné une définition, communément adoptée:

> *"Toute matière contenant des radionucléides en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles dans les matériaux propres à une utilisation sans contrôle et pour laquelle aucun usage n'est prévu".*

Le terme déchet nucléaire est souvent employé pour désigner les déchets radioactifs engendrés par la mise en oeuvre de l'énergie de fission (ou de fusion) nucléaire (production d'énergie, armes nucléaires).

Cette définition renvoie à deux idées, celle de nocivité, qui nécessite un contrôle, et celle d'absence d'usage. Aussi, la notion de déchet est-elle essentiellement contingente. En effet, la nocivité est évidente dès lors que l'on a affaire à des matériaux très contaminés ou irradiants, comme le sont par exemple pratiquement tous les déchets issus des réacteurs nucléaires. Du côté des faibles et très faibles activités, la limite est plus difficile à établir, et dépend très largement du contexte socio-économique et de la perception des risques. C'est ainsi que, par mesure de précaution, des matériaux soupçonnés de contamination peuvent être considérés comme des déchets. Par ailleurs, la référence à un usage (ou à une valorisation) est également sujette à variation et renvoie à des critères essentiellement économiques qui tiennent compte, par exemple, de la situation énergétique. C'est le cas du plutonium qui est considéré comme une matière nucléaire précieuse dans un contexte de développement fort du nucléaire pouvant conduire à des risques de raréfaction de l'uranium, ou, au contraire, comme un simple déchet lorsque l'on envisage, comme c'est le cas aujourd'hui aux Etats-Unis ou en Suède, de le laisser dans les combustibles usés pour être stocké définitivement en couches géologiques profondes. En d'autres termes des matières nucléaires nocives, comme le plutonium ou l'uranium irradié, peuvent voir leur statut changer et devenir de fait des déchets. La

politique de gestion de ces matières provenant des combustibles usés déchargés des réacteurs nucléaires reflète dans une large mesure des choix énergétiques d'un pays, qui peuvent ainsi conditionner indirectement tout un pan de la politique des déchets nucléaires.

Le problème des déchets nucléaires est devenu aujourd'hui un enjeu très important : il en va, pour une large part, de la crédibilité des promoteurs et exploitants de l'énergie nucléaire, ainsi que des pouvoirs publics, et, au-delà, de la possibilité de poursuivre, voire entreprendre, un programme électronucléaire. La mise en oeuvre d'une politique de gestion des déchets nucléaires, rigoureuse, ouverte et débattue démocratiquement s'impose aujourd'hui aux décideurs. En France notamment, une loi, votée par le Parlement le 30 décembre 1991, stipule les conditions pour la mise en oeuvre d'une telle politique, et définit à cette occasion les trois axes autour desquels les recherches (séparation-transmutation, stockage profond, conditionnement et entreposage) devront être simultanément conduites en vue d'une décision à prendre en 2006 pour une gestion définitive des déchets de haute activité et à vie longue issus des réacteurs.

Un sondage récent, réalisé en France, montre que les déchets nucléaires sont considérés comme la première cause de risque pour l'environnement. La perception que le public a de la nocivité des déchets nucléaires ne saurait se réduire à la seule manifestation d'une peur irrationnelle, fondée sur l'ignorance de données scientifiques; elle résulte également de la connaissance diffuse, parfois déformée, de faits et situations réelles, notamment :

- la présence dans certains déchets de corps radioactifs hautement radiotoxiques et à vie très longue, qui nécessite un confinement par rapport à la biosphère pendant des durées dépassant largement celles des sociétés humaines et pouvant se chiffrer en milliers de siècles ;
- l'existence d'un passif résultant de pratiques anciennes, peu soucieuses de la préservation de l'environnement, qui laissent aujourd'hui quelques situations peu satisfaisantes. Citons la contamination de l'environnement par des rejets radioactifs et déchets de toute sorte, en provenance des programmes nucléaires militaires qui se mirent en place à l'époque de l'après guerre, essentiellement aux Etats-Unis et dans l'ex-Union Soviétique. Dans une moindre mesure, cela est également le cas de l'entreposage en vrac de déchets très irradiants à Marcoule et la Hague provenant du retraitement passé de combustibles de la filière graphite-gaz, et notamment des premiers réacteurs plutonigènes de Marcoule. Récemment, une controverse est apparue à propos de la fermeture de l'ancien Centre de Stockage de la Manche (CSM) dont le remplissage a débuté au début des années 60, à l'occasion du rapport de la Commission Turpin [1].

- plus généralement, le constat d'un certain déficit démocratique pour ce qui concerne l'information et les décisions dans le domaine nucléaire, alimentant une méfiance du public vis-à-vis des acteurs concernés par la production ou la gestion des déchets nucléaires, soupçonnés souvent de cultiver le secret en la matière .

Cela étant, il convient de souligner que, tant que l'on raisonne sur des échelles de temps court, qui permet toujours un certain degré de réversibilité, la gestion des déchets nucléaires ne pose pas en principe de problèmes techniques insurmontables, et se présenterait même sous un jour plutôt favorable :

- contrairement au cas de la plupart des déchets industriels toxiques, les déchets nucléaires peuvent en effet être classés en un nombre limité de catégories bien définies, comme nous le verrons plus loin en détail ; mis à part les résidus de l'extraction de l'uranium, les quantités mises en jeu (environ 80 fois plus faibles que celles des déchets classés toxiques) occupent des volumes et des emprises au sol limités, même si certains d'entre eux présentent des nuisances bien plus importantes que celles des déchets industriels ; elles peuvent enfin être facilement corrélées à la production d'électricité d'origine nucléaire, et donc prévisibles ;

- les producteurs de déchets nucléaires (électriciens, industriels du cycle) sont également peu nombreux, identifiés et souvent dotés d'un statut public ou parapublic. L'exercice du contrôle technique de leurs activités devrait de ce fait être plus aisé que dans le cas d'une myriade de producteurs, dès lors que le principe de séparation des responsabilités est clairement appliqué entre producteurs, gestionnaires des déchets et autorités réglementaires ;

- les connaissances scientifiques et techniques concernant les déchets sont aujourd'hui très développées et font l'objet d'efforts importants au sein des organismes nationaux et internationaux en charge de ces problèmes, très supérieurs à ce qui est consenti dans d'autres secteurs industriels présentant également un

impact sur l'homme et l'environnement. Par exemple, les effets biologiques des rayonnements, étudiés depuis les années 20, font l'objet d'une mise à jour permanente de la part de la CIPR (Commission Internationale de Protection radiologique), qui recommande des normes de protection, généralement adoptées par les Etats.

Aussi devrait-il être possible de gérer techniquement les déchets, du moins sur le moyen terme, c'est à dire sur une durée pendant laquelle une organisation de la société devrait permettre une surveillance et l'application, le cas échéant, de mesures correctives. C'est le domaine typique de l'entreposage surveillé de longue durée, ou encore celui du stockage définitif en surface, comme celui qui a été récemment mis en activité à Soulaines dans l'Aube. Dans ce dernier cas, la sûreté à long-terme repose essentiellement sur une limitation de l'inventaire en corps à vie longue dans les fûts de déchets stockés, telle qu'une banalisation devient possible après une période de surveillance de 300 ans. La qualité d'une telle gestion repose pour l'essentiel sur la capacité politique d'appliquer effectivement les concepts techniques sur le terrain. On observe, malgré tout, des limites à cette qualité en raison des contraintes économiques.

En revanche, la gestion à long-terme des déchets nucléaires à vie longue pose des problèmes d'une autre dimension. On doit en effet apporter la preuve que l'on est capable de neutraliser l'action nocive de ces déchets durant des périodes de temps durant lesquelles on ne peut raisonnablement compter sur une surveillance institutionnelle. Ceci pose des problèmes majeurs à la fois scientifiques (matériaux, géologie), techniques et éthiques. Ces problèmes du long-terme apparaissent surtout pour les déchets hautement radioactifs et à vie longue produits dans les réacteurs, pour lesquels le stockage en couches géologiques profondes est partout envisagé dans le monde.

Nous allons tenter dans ce dossier d'identifier dans un premier temps les caractéristiques de production des déchets nucléaires et les options de gestion envisagées, en s'appuyant sur celles mises en oeuvre en France, puis dans un deuxième temps de décrire des données géopolitiques relatives aux principaux pays concernés par ce problème.

2. PRODUCTION ET GESTION DES MATIERES NUCLEAIRES ET DES DECHETS EN AMONT DU REACTEUR

2.1. Généralités et risque liés aux déchets

Pour fonctionner, un réacteur nucléaire utilise un combustible qui contient la matière fissile nécessaire à l'entretien des réactions en chaîne. La fabrication d'un tel combustible n'est pas triviale et nécessite la mise en oeuvre de toute une série d'opérations industrielles en amont du réacteur. D'autre part, la gestion des mêmes combustibles, une fois irradiés pendant un temps de séjour plus ou moins long en réacteur, implique, en aval du réacteur, une autre série d'opérations industrielles.

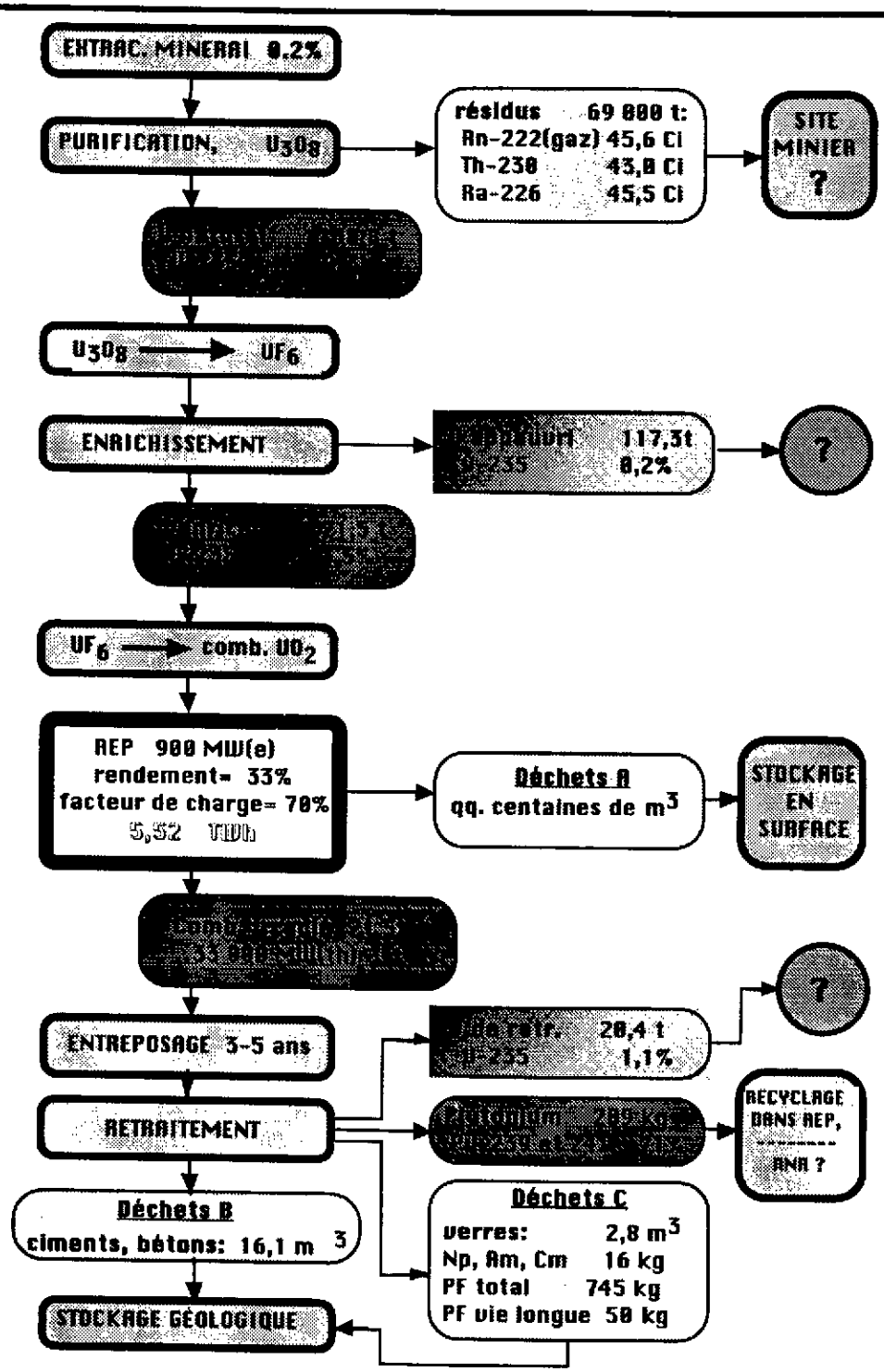
La mise en oeuvre de l'ensemble de ces opérations est complexe. Elle porte sur les matières nucléaires nécessaires à la fabrication des combustibles et s'accompagne d'une production de déchets et de nouvelles matières nucléaires, en principe utilisables.

Il est naturel de comparer les flux de matières nucléaires et de déchets au service rendu, ce qui peut être fait en les normalisant à la production d'électricité. Cette normalisation dépend évidemment des caractéristiques de la filière utilisée (type de réacteur et de combustible), du cycle associé, ainsi que des performances des diverses opérations (notamment taux d'irradiation en réacteur, durée des entreposages intermédiaires, facteur de décontamination des divers déchets produits). Compte tenu de ce que la filière à eau est la plus répandue au plan mondial, et notamment en France, on prendra comme cas de référence:

celui d'un réacteur à eau pressurisée REP de 900 MWé du parc E.D.F. qui fonctionnerait avec un facteur de charge de 70%, produisant donc 5,52 milliard de kWhé (ou 5,52 TWhé) par an.

Le tableau 1 résume la succession des opérations de la mine au stockage et indique les flux de déchets et matières nucléaires associés au fonctionnement annuel d'un tel réacteur, dans le cas de référence retenu en France, qui est celui du retraitement tel qu'il est pratiqué aujourd'hui à l'usine de la Hague.

Tableau 1: Les diverses opérations du cycle fermé



STRATÉGIE DU RETRAITEMENT DES COMBUSTIBLES USÉS (LA HAGUE, 1995)

(Pertes U, Pu = 0,12 % dans tous les déchets)

Les flux de matières ne suffisent pas pour caractériser les risques que peuvent présenter les déchets ou les matières nucléaires. Ces risques peuvent être de nature différente:

- risques liés aux effets biologiques des rayonnements qu'émettent les corps radioactifs contenus dans ces matières - c'est le risque radiologique;

- risques liés aux effets biologiques ou physiques (par exemple explosion) liés à la nature chimique de certains corps contenus dans ces matières - c'est le risque chimique;

- risques liés à certaines propriétés physiques, dont la plus importante est la chaleur que dégagent par exemple les déchets de haute activité ou encore, dans certaines conditions de mélange isotopique, le plutonium.

Tous les déchets produits par le cycle électronucléaire ne présentent pas les mêmes risques. On a été amené à les classer en fonction de deux critères principaux: le niveau d'activité, essentiellement β,γ, et la teneur en corps à vie longue, émetteurs α. C'est ainsi que l'on classe les déchets radioactifs en trois grandes catégories A ,B et C, une quatrième, aujourd'hui à l'étude, se réfère aux grandes quantités, mais à vie longue (résidus miniers, certains déchets de démantèlement). Cette classification figure au tableau 2.

Tableau 2: Classification des déchets adoptée en France

CATEGORIE A	Déchets de faible et moyenne activité ne renfermant que les émetteurs $\beta\gamma$ à vie courte et moyenne (< 30 ans) et $\alpha < 0{,}01$ Ci/tonne
CATEGORIE B	Déchets de faible et moyenne activité renfermant des émetteurs de longue période $\alpha > 0{,}01$ Ci/tonne
CATEGORIE C	Déchets de haute activité renfermant des quantités importantes de produits de fission, d'activation et d'actinides, et générant souvent une énergie thermique notable (déchets vitrifiés, combustibles irradiés non retraités)
CATEGORIE TFA	Déchets de très faible activité α, mais à vie longue (résidus miniers et certains déchets de démantèlement)

Dans ce dossier nous nous référons au risque radiologique, que l'on peut appréhender à l'aide de deux indicateurs :

- le risque potentiel, qui est celui encouru par l'incorporation d'une quantité donnée de radionucléides. On l'exprime aujourd'hui à l'aide du facteur de dose par ingestion ou inhalation, associé à un radionucléide donné. Il mesure la dose engagée sur 50 ans suite à l'incorporation d'un becquerel de ce radionucléide et s'exprime en sievert/becquerel (Sv/Bq) (voir la contribution de M. Métivier). La radiotoxicité d'un produit donné, qui est la somme pondérée des facteurs de dose de ses constituants, varie avec le temps, en raison de la décroissance radioactive.

- le risque résiduel (ou réel) qui est celui effectivement encouru lorsque des mesures de protection sont adoptées pour éviter (ou réduire au maximum) le contact entre l'homme et les déchets. C'est le cas du

stockage géologique profond, dont les barrières jouent un rôle de rétention et de retard à la migration des radionucléides contenus dans les déchets stockés. Comme la radiotoxicité, le risque résiduel varie avec le temps, non seulement en raison de la décroissance radioactive mais également de la cinétique des phénomènes de migration.

Il existe en amont du réacteur essentiellement deux opérations de transformation de matières nucléaires qui sont génératrices de déchets:
- la production de l'uranium naturel au niveau de la mine;
- l'enrichissement isotopique

2.2. La production de l'uranium naturel au niveau de la mine

Dès le début de l'ère nucléaire, l'uranium a été choisi comme combustible de base des réacteurs nucléaires, car il est le seul élément chimique possédant un isotope fissile à l'état naturel. Cet isotope, ^{235}U, se trouve dans la nature à un faible teneur de 0,71%, l'autre isotope ^{238}U étant donc le plus abondant. Cet isotope joue également un rôle dans les réacteurs, car il est fertile, c'est à dire susceptible de se transformer, sous irradiation neutronique à l'intérieur d'un réacteur, en l'isotope fissile 239 d'un élément chimique artificiel, le plutonium.

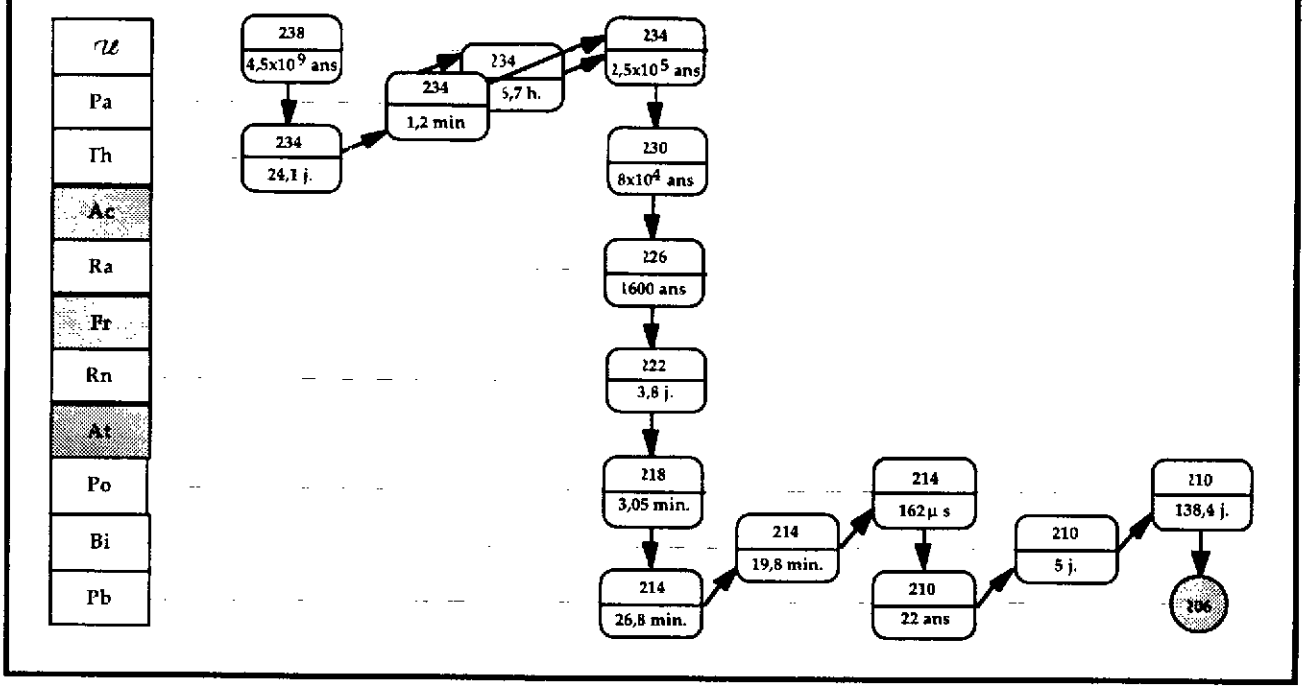
L'uranium est l'élément naturel le plus lourd et se trouve répandu dans la croûte terrestre à une teneur en masse de 3 à 4 ppm (parties par millions). Il apparaît dans plus de 150 minerais, que l'on peut classer en deux grandes catégories: les espèces réduites à la valence IV (par exemple pechblende, uraninite, silicates) et les espèces oxydées à la valence VI (par exemple les phosphates comme les monazites) [2]. Il s'ensuit des teneurs très variables, les espèces à la valence IV possédant les teneurs les plus élevées, mais étant aussi plus rares.

Les ressources connues, à un coût d'extraction inférieur à 130 $/kg, sont à ce jour de l'ordre de 5 millions de tonnes (ressources raisonnablement assurées et ressources supplémentaires estimées). Ces ressources sont classés en minerais dits riches (2000 à 5000 ppm), minerais dits pauvres (200 à 1000 ppm) et minerais exceptionnels (au delà du %) dont les gisements découverts récemment au Canada (Cigar Lake, 135 000 tonnes à 8%). A part ces minerais, exploités aujourd'hui, il y a des ressources de mêmes teneurs, dites spéculatives (entre 7 et 15 millions de tonnes) résultant d'extrapolation géologique. On connaît enfin d'autres ressources à des teneurs nettement plus faibles, telles que les phosphates (10 à 150 ppm), certains charbons (10 à 100 ppm), les schistes bitumineux (60-80 ppm), les résidus de l'exploitation des monazites (15 à 50 ppm), les boues noires des fonds de mer (< 20 ppm) et, enfin, un réservoir de l'ordre de 4,5 milliard de tonnes représenté par l'eau de mer (de l'ordre de $3\ 10^{-3}$ ppm). Rappelons pour mémoire que la consommation annuelle mondiale d'uranium naturel est actuellement comprise entre 50 000 et 60 000 tonnes.

Dans le cas courant de l'extraction de l'uranium d'un minerai dit riche, celui-ci, une fois concassé et broyé, est attaqué, dans la plupart des usines, à l'acide sulfurique en vue de solubiliser préférentiellement l'uranium. La solution uranifère qui en résulte (de l'ordre de quelques centaines de mg d'uranium par litre) est ensuite concentrée à une teneur en uranium de l'ordre de 70% et conduit à ce que l'on appelle le "yellow cake" destiné aux usines de raffinage et de conversion de l'uranium. L'uranium non extrait (quelques %) et la totalité des descendants se retrouvent dans les résidus solides de cette solubilisation du minerai d'uranium et du traitement des effluents liquides; stockés sur place, ils représentent les premiers déchets nucléaires du cycle du combustible. Citons également le cas de minerais dits pauvres (entre 0,02 et 0,1 % en uranium) qui sont directement lixiviés en tas par l'acide sulfurique qui se charge en uranium; le minerai, après lixiviation, constitue le déchet, appelé "résidu de lixiviation".

Rappelons que l'uranium est en équilibre séculaire dans le minerai avec ses descendants (voir tableau 3), et que cet équilibre est rompu au cours de l'extraction sélective de l'uranium, portant sur les trois isotopes 238, 234, appartenant à la série 4n+2, et 235 à la série 4n+3. L'isotope 238 étant le plus abondant (99,3 %), la décroissance de la radioactivité des résidus est gouvernée par la période de 77 000 ans du ^{230}Th qui devient la tête de la série 4n dans les résidus.

Tableau 3: Les descendants de ^{238}U (famille 4n+2)



Par ailleurs, dans une tonne d'uranium, l'activité de ^{238}U représente 0,336 Curies; il en résulte que l'activité par émission alpha des descendants de ^{238}U correspondant à l'extraction d'une tonne d'uranium est 6 fois plus importante, soit de l'ordre de 2 Curies (en supposant négligeable l'exhalation du radon, ^{222}Rn). Cette activité se retrouve dans les résidus d'extraction de l'uranium. A titre d'exemple, la mine d'uranium de l'Ecarpière a produit, si l'on écarte les 1500 tonnes produits par lixiviation statique, près de 13 500 tonnes d'uranium de 1957 à 1991, qui ont généré environ 7,6 millions de tonnes de résidus (source: Inventaire National des Déchets Radioactifs, ANDRA, 1996), contenant en moyenne une activité alpha de 27 000 Curies maximum (en supposant que le radon est maintenu sur place). Ce chiffre correspond à une activité spécifique moyenne de 3,5 mCi par tonne, soit dix fois moins que celle des déchets de faible activité stockable en surface. Ce chiffre tombe à 1 mCi par tonne, si l'on ne considère que la présence de ^{230}Th et ^{226}Ra, ascendants de ^{222}Rn (exhalation totale du radon).

En conclusion, les déchets liés à l'extraction de l'uranium sont caractérisés par:

- des volumes très importants, liés à la faible teneur des minerais (ils représentent actuellement environ 50 millions de tonnes en France);
- une très longue durée de vie (celle du ^{230}Th);
- et donc par une très faible activité spécifique.

Le principal risque radiologique est lié à l'exhalation permanente du gaz Radon (^{222}Rn) dont les descendants peuvent être fixés dans les poumons suite à son inhalation (risques aux mineurs et, le cas échéant, à des personnes du public). Il existe également un risque dû au transport du radium par l'eau. Dans la nouvelle classification proposée par la DSIN (Direction de la Sûreté des Installations Nucléaires), ces déchets appartiennent à ceux de très faible activité et à vie longue, pour lesquels un mode de gestion adapté aux caractéristiques de ces déchets (volumes importants, radon) consiste essentiellement à surveiller, stabiliser le site et à le recouvrir avec un matériau de faible perméabilité (argile par exemple) et suffisamment

épais (environ 1 mètre) pour stopper les émanations de radon . Le risque résiduel qui en résulterait peut être estimé à partir de scénarios plausibles d'évolution physique du site et d'intrusion humaine. L'impact de tels scénarios pourrait, selon des premières estimations effectuées à l'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, dépasser limite 1 mSv par an, recommandée dans la CIPR-60 pour le public. Une telle valeur est à comparer aux impacts long terme, apparemment plus faibles, des autres activités du cycle nucléaire sur le public.

Le concentré d'uranium est successivement transformé en dioxyde d'uranium puis fluoré pour l'étape importante de l'enrichissement de l'uranium.

2.3. L'enrichissement isotopique de l'uranium

Le fonctionnement des réacteurs à eau nécessite un combustible d'oxyde d'uranium, enrichi en son isotope 235, entre 3 et 5 % selon le taux d'irradiation que l'on veut atteindre. Ainsi, dans le cas de référence considéré ici, un enrichissement de 3,5 % est nécessaire pour atteindre un taux de combustion de 33 000 MWj/t.

Il existe à ce jour deux procédés d'enrichissement utilisés industriellement au plan mondial : la diffusion gazeuse et l'ultracentrifugation, la première étant la plus importante, comme l'indique le tableau 4. C'est en France sur le site de Tricastin que fonctionne la plus importante usine d'enrichissement par diffusion gazeuse, et nous ne considérerons ici que ce procédé.

Tableau 4: Les principales usines d'enrichissement en fonctionnement dans le monde [3]

Pays	Site	Exploitant	Procédé	Capacité [million UTS]
France	Tricastin	Eurodif	diffusion gazeuse	10,8
Etats-Unis	Paducah	DOE	diffusion gazeuse	11,3
	Portsmouth	DOE	diffusion gazeuse	7,9
Russie	Sibérie		diffusion gazeuse ultracentrifugation	> 10
Royaume-Uni	Capenhurst	Urenco	ultracentrifugation	1,0
Pays-Bas	Almelo	Urenco	ultracentrifugation	1,0
Japon	Rokashomura	JNFI	ultracentrifugation	1,5

Du point de vue des déchets, une usine d'enrichissement peut rejeter de faibles quantités de produits chimiques intervenant dans le procédé. A ce stade il n'y a cependant pas de production de déchets nucléaires, si ce n'est indirectement ceux liés à l'importante consommation d'énergie électrique, lorsque celle-ci est d'origine nucléaire, comme c'est le cas sur le site de Tricastin. En revanche la plus grosse partie de l'uranium naturel entrant dans une telle usine sous forme d'hexafluorure d'uranium, se retrouve sous forme d'uranium appauvri en ^{235}U. Cet uranium dit "de rejet" peut être réutilisé comme support dans des combustibles chargés en plutonium (cas des combustibles MOX) ou comme matière fertile placée dans les couvertures des surgénérateurs. Mais aujourd'hui, ces usages ne concernent que quelques pour-cent de la totalité de l'uranium de rejet, qui est "de facto" considéré comme une matière nucléaire en attente de valorisation ou de transformation à terme en déchet de très faible activité, mais à vie très longue ; on doit

dans cette dernière hypothèse tenir compte de cet uranium, comme d'ailleurs des résidus miniers, dans le bilan de radiotoxicité à très long terme, associé à la production électronucléaire.

La quantité d'uranium appauvri associée à celle d'uranium enrichi utilisé dans un réacteur se déduit aisément de relations de conservation entre la masse d'uranium naturel (M_n) et la somme des masses d'uranium enrichi (Me) et appauvri (Ma), ainsi qu'entre les masses de ^{235}U en entrée et sortie de l'usine. Désignant respectivement par e et a les pourcentages isotopiques de ^{235}U respectivement dans l'uranium enrichi et appauvri, on obtient les deux relations de conservation suivantes:

$$M_n = Me + Ma \qquad (1.a)$$

$$0{,}711\ M_n = e\ Me + a\ Ma \qquad (1.b)$$

On en déduit aisément le rapport R entre la masse d'uranium appauvri et la masse d'uranium enrichi, soit:

$$R = (e - 0{,}711) / (0{,}711 - a) \qquad (2)$$

Le choix du taux de rejet a dépend d'une optimisation économique entre le coût de l'uranium naturel (après conversion en UF_6) et le coût de l'enrichissement. Le premier est directement proportionnel à M_n et augmente avec le taux de rejet a, comme l'indique les équations 1.a et 1.b. En revanche, le coût de l'enrichissement est d'autant plus faible que a est élevé. Ce coût dépend essentiellement de l'énergie électrique dépensée dans la cascade d'enrichissement, et on démontre que, pour une cascade optimisée, cette énergie est proportionnelle à une quantité U, appelée UTS (Unité de Travail de Séparation), qui s'exprime en fonction des masses et enrichissements mis en jeu, par l'expression suivante, où les masses sont exprimées en kg:

$$U = Me\ V(e) + Ma\ V(a) - M_n\ V(0{,}711) \qquad (3)$$

où la fonction V(x) est définie par:

$$V(x) = (1 - 0{,}02\ x)\ Log(100/x - 1) \qquad (4)$$

L'optimisation actuelle, compte tenu du prix de l'uranium naturel, conduit à adopter dans les usines d'enrichissement un taux de rejet de l'ordre de 0,2 %. Dans ces conditions, on rejettera 5,458 tonnes d'uranium appauvri pour produire 1 tonne d'uranium enrichi à 3,5 %, et dépensera 5415 UTS. On voit que le fonctionnement annuel d'un réacteur nécessite environ 100 000 UTS, soit environ 0,24 milliard de kWh d'énergie électrique, sachant que l'on dépense environ 2400 kWh par UTS [4] Cette énergie représente une fraction de l'ordre de 4 % de l'énergie fournie par le réacteur et induit une augmentation globale de 4% des déchets produits dans le cycle, normalisés à l'énergie nette produite. Ceci peut être considéré comme négligeable. A cet égard, le procédé par ultracentrifugation est beaucoup plus économe en électricité.

L'impact de l'enrichissement sur les déchets peut à terme provenir de l'uranium appauvri, qui représente des quantités 5 à 6 fois plus importantes que celles d'uranium enrichi utilisé dans les réacteurs. A cela s'ajoute, pour le procédé par diffusion gazeuse, 4% environ des déchets associés en amont et en aval au fonctionnement des réacteurs que l'on alimente.

L'uranium enrichi sortant de l'usine d'enrichissement sous forme de UF_6 est transformé en dioxyde d'uranium qui constitue le combustible des réacteurs à eau.

3. PRODUCTION ET GESTION DES MATIERES NUCLEAIRES ET DES DECHETS EN AVAL DU REACTEUR

3.1. Les déchets et matières nucléaires produits par les réacteurs

Environ 21,5 tonnes de combustibles enrichi à 3,5 %, sont chargés chaque année dans le réacteur de référence (voir tableau 1). Celui-ci voit sa composition fortement modifiée suite à l'irradiation en réacteur qui dure 3 ans et s'arrête lorsque le taux de combustion a atteint 33 000 MWj/t. C'est dans le combustible usé, que l'on décharge alors du réacteur, que se trouve la quasi-totalité de la radioactivité engendrée dans le cycle. Par ailleurs, une centaine de m^3 de déchets de faible activité et ne contenant en principe pas de corps à vie longue sont produits par le réacteur (résines échangeuses d'ions, vannes, pièces mécaniques défectueuses, vêtements etc.). Le volume de ces déchets dits de catégorie A (peu actifs, faibles teneurs en corps à vie longue) tend aujourd'hui à diminuer. Ils sont destinés, en France, au centre de stockage en surface de Soulaines dans l'Aube.

Deux catégories de corps radioactifs, formés lors de l'irradiation, sont présents dans les combustibles usés au déchargement:

- les résidus de la fission, désignés improprement sous le nom de produits de fission (PF). Ils proviennent de la fission de l'uranium, puis du plutonium qui s'est formé. Leur masse totale est égale (à l'équivalent en masse de l'énergie de fission près) à la variation de masse des corps lourds durant l'irradiation. Cette masse peut également être calculée à partir de l'énergie produite, sachant qu'une fission libère 200 MeV environ, ce qui correspond à 46 kg de corps fissionnés par TWh thermique produit. Les PF se répartissent selon un spectre de masse allant de A=80 à A=150. Au bout de 3 ans de refroidissement, les PF présents dans le combustible sont pour la plupart des résidus stables, des PF à vie moyenne (PFVM), ^{137}Cs et ^{90}Sr d'environ 30 ans de période, et enfin des PF à vie très longue (PFVL), qui peuvent avoir un impact radiologique dans les stockages de déchets. Ce spectre dépend de la nature du noyau fissile (décalage en A des courbes de fission), du spectre en énergie des neutrons (degré d'asymétrie des courbes de fission) et du taux de combustion (transmutation interne et partielle de certains produits de fission à forte section efficace de capture). Les caractéristiques de spectre de PF sont données par isotope au tableau 6, dans le cas de la filière REP 900.

- les noyaux lourds formés par capture successive de neutrons à partir des isotopes 235 et 238 de l'uranium, et, dans une moindre mesure, par des réactions (n,2n), suivies, le cas échéant, par des désintégrations β^- (tableau 5). Ils sont classés en deux catégories:

  - les actinides *majeurs*: uranium (U) et plutonium (Pu)
  - les actinides *mineurs*: neptunium (Np), américium (Am) et curium (Cm).

Cette distinction entre actinides se justifie par les quantités bien plus importantes pour les actinides majeurs et le caractère fissile de certains de leurs isotopes (d'où la possibilité de les utiliser comme combustible nucléaire), alors que les actinides mineurs sont toujours considérés comme des déchets. Evidemment, comme ceci a été souligné plus haut, l'absence de valorisation économique des actinides majeurs peuvent conduire à les considérer comme des déchets, ou du moins comme des matières dont le statut est en attente de définition (voir §3.2).

Tableau 5: Chaîne de formation des noyaux lourds dans le cas des filières uranium-plutonium [5]

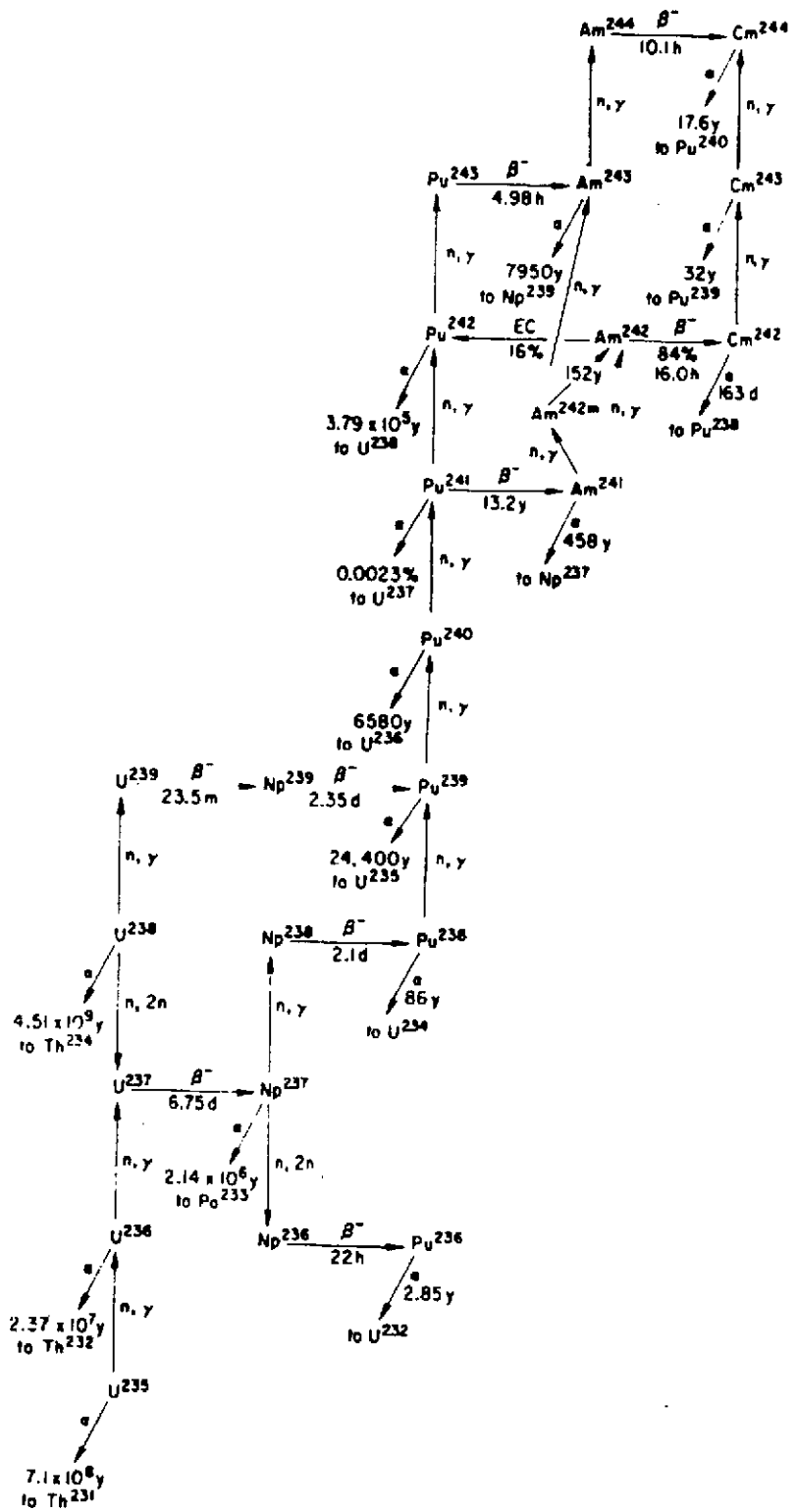


Tableau 6: Inventaire des matières au chargement et déchargement du réacteur [6]
Cas d'un REP 900, à un taux de combustion de 33 000 MWj/t et à 3,5 % d'enrichissement

RADIONUCLEIDES:	Période (année)	-----Chargement ---------- (kg/TWhé)	(kg/an)[b]	---Déchargement [a]-------- (kg/TWhé)	(kg/an)[b]
Uranium					
^{235}U	$7{,}08\ 10^{8}$	136(3,5 %)	751	40 (1,1 %)	221
^{236}U	$2{,}34\ 10^{7}$	/	/	16	88
^{238}U	$4{,}47\ 10^{9}$	3757	20734	3661	20204
Total Uranium:		3893	21485	3717	20425
Plutonium					
^{238}Pu	87,7			0,6	3,3
^{239}Pu	24119			22,3	123,1
^{240}Pu	6569			8,6	47,5
^{241}Pu	14,4			4,6	25,4
^{242}Pu	$3{,}7\ 10^{5}$			1,9	10,5
Total Plutonium:	/			38,0	209
Actinides mineurs					
^{237}Np	$2{,}14\ 10^{6}$			1,6	8,8
^{241}Am	432,2			0,8	4,4
^{243}Am	7380			0,4	2,2
^{243}Cm	28,5			≈0	≈0
^{244}Cm	18,1			0,09	0,5
^{245}Cm	8500			0,01	0,06
Total actinides mineurs:				2,9	16,0
PFVM[c]					
^{90}Sr	28			1,9	10,5
^{137}Cs	30			4,4	24,3
Total PFVM:				6,3	34,8
PFVL[c]					
^{79}Se	70 000			0,02	0,11
^{93}Zr	$1.5\ 10^{6}$			2,8	15,5
^{99}Tc	$2.1\ 10^{5}$			3,2	17,7
^{107}Pd	$6.5\ 10^{6}$			0,8	4,4
^{126}Sn	10^{5}			0,08	0,44
^{129}I	$1.57\ 10^{7}$			0,7	3,9
^{135}Cs	$2\ 10^{6}$			1,4	7,7
^{151}Sm	93			0,06	0,33
Total PFVL:				9,1	50,0
Total PF:				135	745

a) l'inventaire au déchargement est celui à 3 ans après le déchargement du réacteur
b) on a supposé un facteur de charge de 70 %, soit une production de 5,52 TWhé/an.
c) PFVM: principaux produits de fission à vie moyenne (≤ 30 ans) à 3 ans de refroidissement;
PFVL: produits de fission à vie longue (≥30 ans).

3.2. Les options de gestion des combustibles usés

Au moment de leur déchargement, les combustibles usés dégagent une importante quantité de chaleur et émettent un intense rayonnement β et γ. Aussi doit-on d'abord les laisser refroidir en piscine, pendant une période pouvant s'étendre sur plusieurs années (3 à 5 ans dans la pratique). Après une telle période de refroidissement, deux modes de gestion des combustibles irradiés sont actuellement envisagés au plan mondial.

Le premier consiste à retraiter (voir tableau 1 et §3.3) ces combustibles de manière à récupérer l'uranium et le plutonium qui représentent 96% de la masse du combustible usé, les 3 % restants étant conditionnés sous forme de colis de déchets destinés, pour la plupart, au stockage en profondeur. La voie du retraitement, mise en oeuvre actuellement en France (La Hague), Royaume-Uni (Sellafields), Japon (Tokaï-Mura, Rokasho) et en Russie, vise à recycler l'uranium et le plutonium ou à utiliser ce dernier comme combustible de base des futurs surgénérateurs. Elle s'inscrit donc dans une perspective de développement du nucléaire, avec une utilisation spécifique du plutonium.

Le deuxième mode de gestion, au contraire, consiste à ne pas retraiter les combustibles usés et à les stocker définitivement en couches géologiques profondes, après une période prolongée (une cinquantaine d'années environ) d'entreposage sous eau, voire ensuite à sec (voir tableau 7). Cette voie est suivie notamment aux Etats-Unis, au Canada et en Suède, et correspond soit à une politique d'attente, soit à un recours limité au nucléaire. Dans ce cas, le plutonium et l'uranium sont considérés comme des déchets et demeurent avec l'ensemble des produits de fission et actinides mineurs dans les combustibles usés. Ceux-ci constituent dans cette stratégie les déchets ultimes.

Du point de vue du risque potentiel le plutonium domine à long terme la radiotoxicité des combustibles usés, après que les produits de fission ^{90}Sr et ^{137}Cs aient décru (voir figure 1). Aussi, la stratégie du retraitement, dans la mesure où le plutonium extrait est effectivement utilisé, conduit-elle à terme à un risque potentiel plus faible que celui du stockage direct. L'importance de cette réduction dépend du mode d'utilisation du plutonium (recyclage dans les réacteurs à eau, incinération ou surrégénération dans les réacteurs à neutrons rapides).

S'agissant du risque résiduel, la comparaison entre les deux stratégies est plus difficile à mener; elle fait intervenir en effet les performances comparées des verres et des combustibles usés, le surconteneurage éventuel, la migration du plutonium et des autres corps à vie longue (notamment certains PF qui peuvent être solubles) dans le stockage etc.... Toutefois l'ensemble des calculs de migration montrent que le risque résiduel, en scénario d'évolution normale, reste dominé par deux PFVL (^{135}Cs, ^{129}I), dont l'impact radiologique éventuel ne se manifesterait en tout état de cause qu'au delà de plusieurs centaines de milliers d'années (voir l'exercice EVEREST de la CE). A cet égard, les deux stratégies devraient donc présenter des risque résiduels équivalents. Il n'en est pas de même cependant pour certains scénarios accidentels, tels que l'intrusion humaine dans un stockage profond dont on aurait perdu la mémoire, dont les conséquences radiologiques peuvent dépendre directement de l'inventaire présent dans le stockage.

Il existe évidemment une stratégie de gestion des combustibles qui s'appuie sur le retraitement d'une partie des combustibles usés, l'autre partie étant entreposée en attente de décisions futures. Cette stratégie mixte résulte de la prise en compte de données industrielles (par exemple les capacités de recyclage du plutonium) et du contexte énergétique (par exemple la disponibilité de l'uranium et de l'enrichissement à des coûts faibles). C'est le cas de la France aujourd'hui, comme on le verra plus loin (§3.4). En nous focalisant sur la situation présente, on décrira le retraitement et le recyclage du plutonium dans les réacteurs à eau.

Tableau 7: Les diverses opérations du cycle ouvert

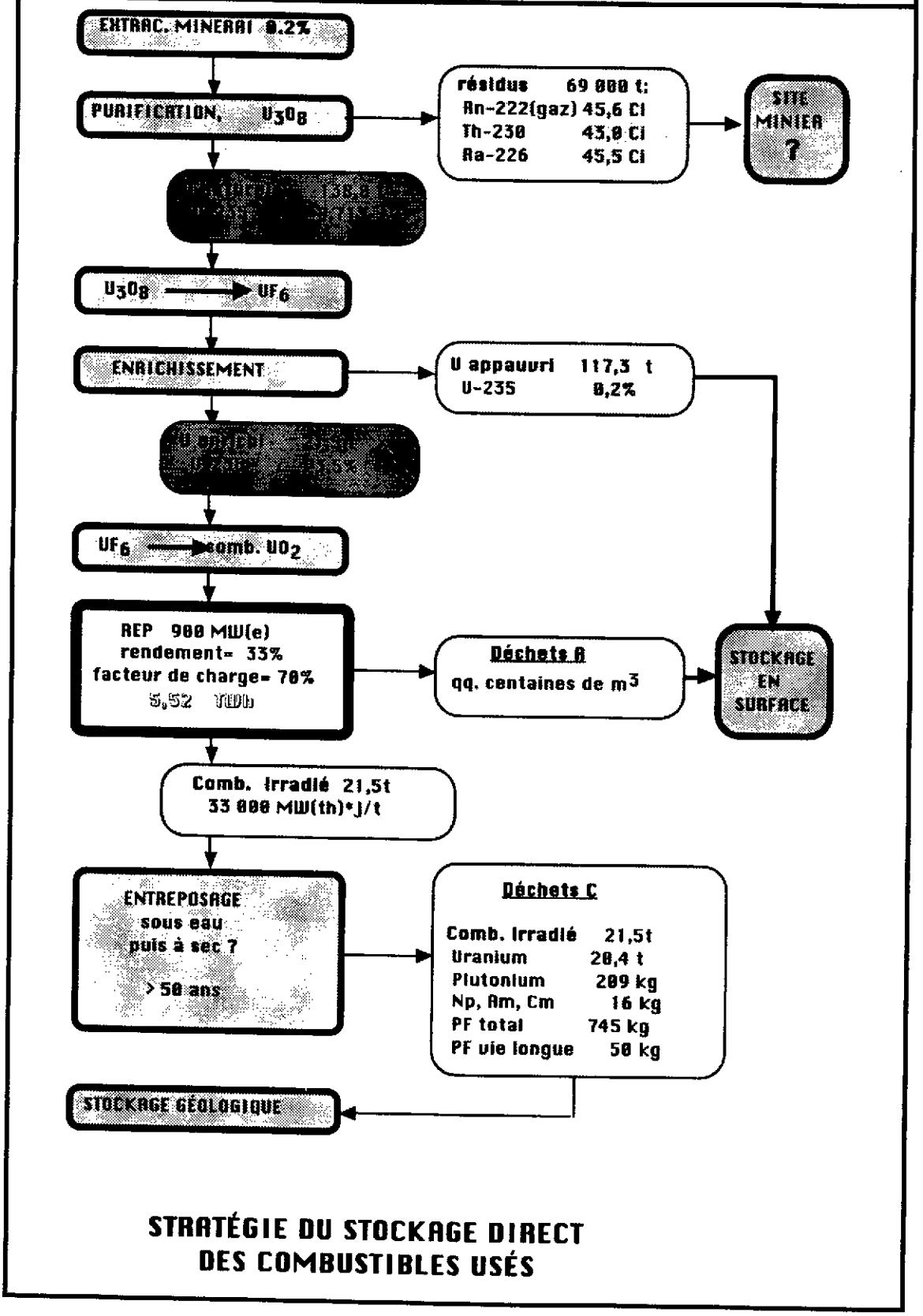
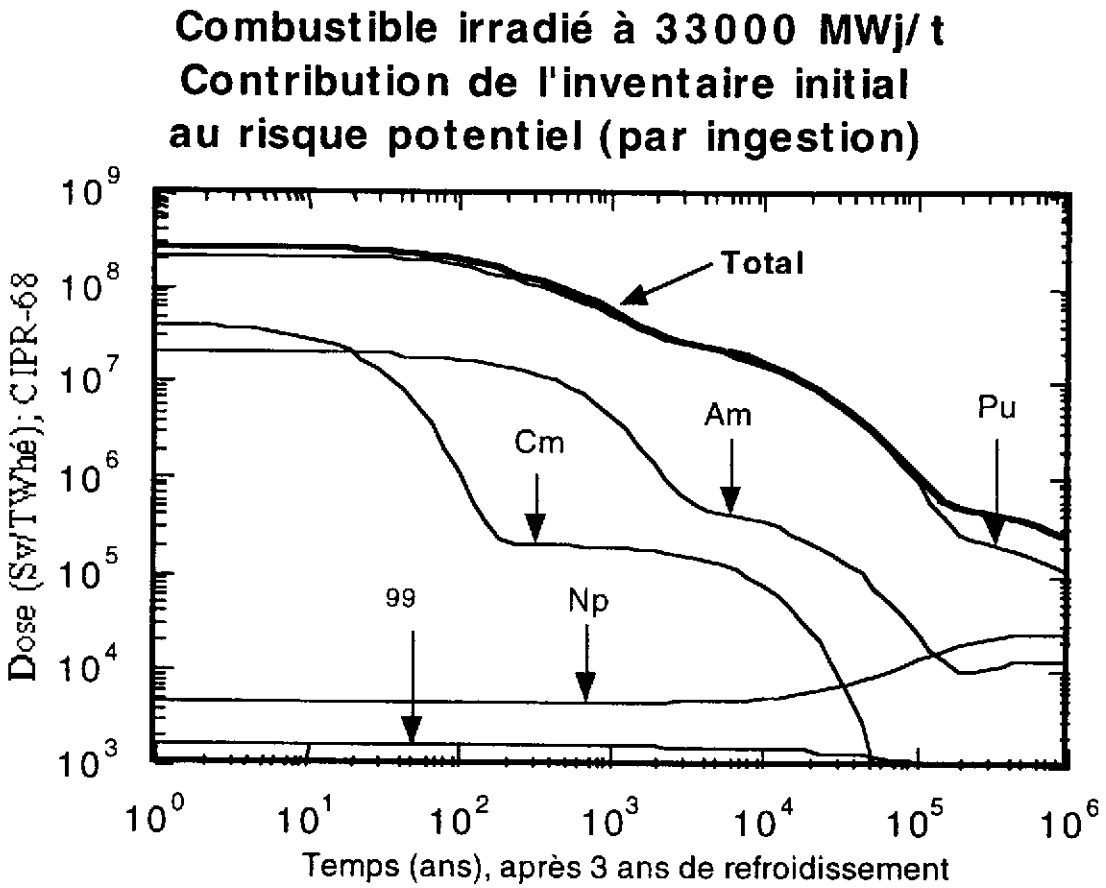


Figure 1 (référence 6)



3.3. Le retraitement des combustibles usés

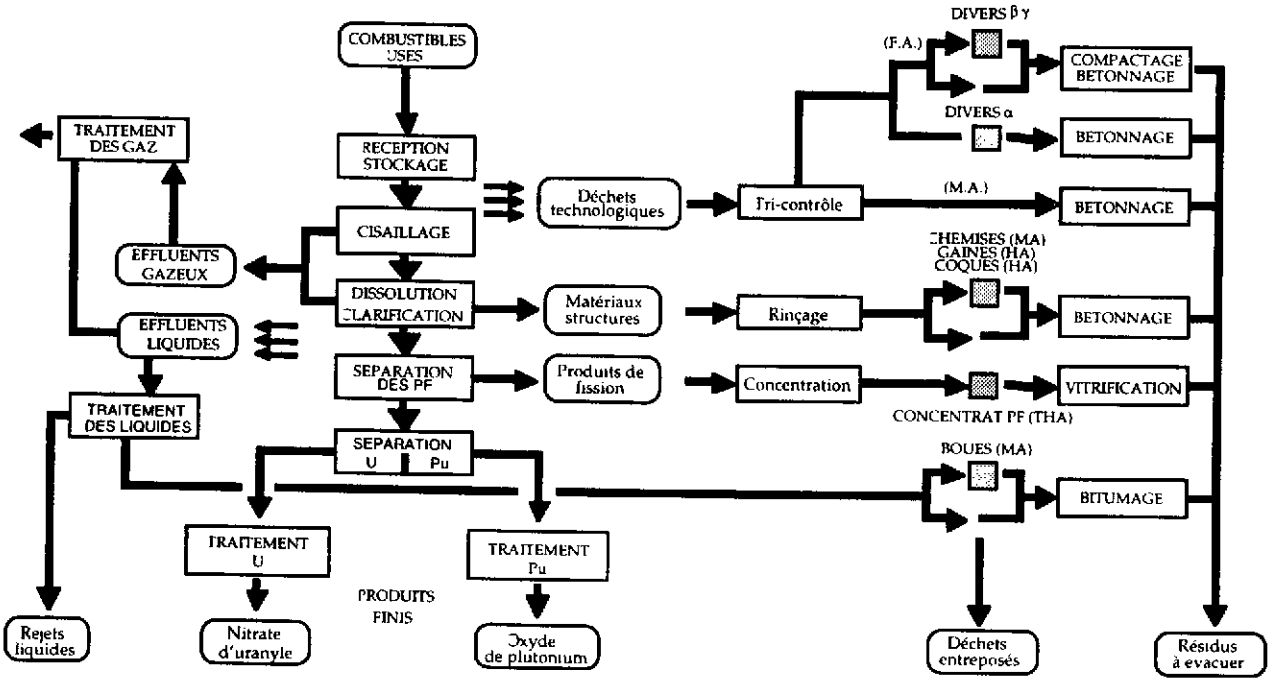
Le retraitement est une série d'opérations mécaniques et chimiques visant à séparer l'uranium et le plutonium des autres produits constituant le combustible usé, c'est à dire les produits de fission et actinides mineurs qui, conditionnés sous forme de verres borosilicates, constituent les déchets de haute activité et à vie longue de la catégorie C, selon la nomenclature adoptée en France. Ceux-ci sont destinés, après une période de refroidissement pouvant aller jusqu'à 50 ans, au stockage géologique profond. Le retraitement génère également d'autres déchets de procédés, suffisamment contaminés en corps à vie longue (déchets de la catégorie B), pour justifier également leur stockage en profondeur.

Toutes les usines de retraitement utilisent aujourd'hui la séparation chimique par voie aqueuse dont nous donnons ci-dessous une brève description. Après démantèlement et cisaillage des éléments de combustibles, l'oxyde d'uranium est dissout dans de l'acide nitrique concentré, et les coques (cylindres de gaine de zircaloy) et embouts (structure des assemblages) récupérés à part. Une fois débarrassée de ses fines de dissolution (clarification), la solution aqueuse est envoyée vers les cycles d'extraction, qui sont fondés sur le procédé PUREX. Celui-ci repose sur la propriété du tributyl-phosphate (TBP) de fixer préférentiellement l'uranium et le plutonium qui se trouvent respectivement à la valence 6 et 4 dans la solution aqueuse. On sépare ainsi, au cours du premier cycle d'extraction, les actinides majeurs de l'ensemble des PF et actinides mineurs, qui restent en solution nitrique pour être ensuite concentrés et vitrifiés, sous forme de verres borosilicatés. La séparation de l'uranium et du plutonium s'effectuent ensuite dans un deuxième cycle, après passage en solution nitrique (réextraction), puis réduction de Pu IV en Pu III. Dans ce deuxième cycle, le plutonium reste alors en phase nitrique puis est transformé en oxyde de plutonium, tandis que l'uranium, qui est passé en phase organique, est réextrait, pour être finalement stocké sous forme de nitrate

d'uranyle. Ces opérations ont lieu dans des appareillages de mise à contre courant des solutions aqueuse et organique, tels que les mélangeurs décanteurs, colonnes pulsées ou extracteurs centrifuges. Ce procédé d'extraction nécessite cependant des cycles de purification de l'uranium et du plutonium, dans la mesure où certains produits de fission (Zr, Tc), ainsi que le neptunium, sont partiellement sous une forme ionique extractible (par exemple une faible partie du neptunium, essentiellement à la valence V, est à la valence VI et est extrait avec l'uranium). En revanche l'américium, le curium et les lanthanides, qui sont à la valence III, ne sont pas extractibles par le procédé PUREX.

L'ensemble du procédé PUREX, tel qu'il est appliqué aujourd'hui à l'usine de la Hague, avec le traitement des effluents et la chaîne de production des déchets, est représenté au tableau 8.

Tableau 8: Schéma des opérations de retraitement à l'usine de la Hague (situation 1995) (d'après documentation COGEMA)



Ce procédé génère des déchets, dont les caractéristiques, rapportées à une tonne d'uranium retraitée, figurent au tableau 9:

- les coques et embouts, qui sont bloqués dans des liants hydrauliques (ciments) destinés au stockage en profondeur, en raison de la présence de corps lourds, émetteurs α à vie longue (essentiellement plutonium) à des concentrations telles qu'elles interdisent le stockage en surface (déchets B);
- les verres borosilicatés contenant la quasi-totalité de la radioactivité et les actinides mineurs, et qui constituent les déchets de haute activité et à vie longue (déchets C), destinés également au stockage en profondeur après une période de refroidissement de l'ordre d'une cinquantaine d'années;
- les déchets dits technologiques dont certains sont également compactés et bétonnés (déchets A et B), et dont d'autres, provenant du traitement des effluents liquides sous forme de boues de précipitation, sont destinées au bitumage. Ce dernier procédé a été récemment remplacé par un procédé d'évaporation avec envoi des concentrats vers la vitrification.

Au niveau des effluents liquides, la quasi totalité du tritium est rejeté à la mer, ainsi que l'iode, qui est libéré au moment de la dissolution. Il en est de même des gaz rares, dont la quasi-totalité est rejetée dans l'air (notamment ^{85}Kr).

Tableau 9: Caractéristiques des déchets issus du retraitement des combustibles usés, dans le cas de l'usine de la Hague (UP3-800) [7]

Contenus des déchets	PF, AM	coques et embouts	déchets technologiques		boues de précipitation
Forme physique:	Verres	Ciments	Bloc béton		Bitume
			⟨----------⟩		
Catégorie	C	B	A,	B	B
Volumes prévus[a] à la conception:	130	600	3800,	1700	630
Volumes actuels[b] (1995)	130	600	?,	≈150	0
Volumes prévus en 2000:	130	≈150	?,	≈150	0
Pertes en U dans tous les déchets:	⟨----------≈0,12% ----------⟩				
Pertes en Pu dans tous les déchets:	⟨----------≈0,12% ----------⟩				
% activité α	99,5	0,4	⟨---------- 0,1 ----------⟩		
% activité β, γ[b]	97,6	2,3	⟨---------- 0,1 ----------⟩		

a) les volumes sont en litre par tonnes d'uranium après conditionnement, mais sans surconteneur;
b) hors tritium

3.4. Le recyclage du plutonium

Initialement, le plutonium séparé dans les usines de retraitement devait servir de combustible d'une nouvelle filière, celle des surgénérateurs. C'est sur cette base que fut décidé dans les années 70 de construire Superphénix et les usines de retraitement à la Hague (UP2-800 puis UP3). En l'absence de programme surgénérateur significatif, capable d'utiliser les quantités importantes de plutonium séparées dans les usines de la Hague, EDF et COGEMA décidèrent en 1985 de recycler partiellement le plutonium dans des réacteurs à eau du parc EDF, dont 28 du palier 900 MWé sont techniquement adaptés à un tel recyclage. Parmi ceux-ci 9 ont l'autorisation et, entre 1987 et 1994, 7 réacteurs ont progressivement été chargés avec des combustibles à base de plutonium (St Laurent B1&B2, Gravelines B3&B4, Dampierre 1&2 et Le Blayais 1).

Tableau 10: Inventaire des matières au chargement et déchargement du réacteur: Cas d'un combustible MOX-REP 900, à un taux de combustion de 43 500 MWj/t[6]

RADIONUCLEIDES:	Période	-----Chargement -----		---Déchargement [a]---	
	(année)	(kg/TWhé)	(kg/an)[b]	(kg/TWhé)	(kg/an)[b]
Uranium:					
^{235}U	$7{,}08\ 10^{8}$	6,7	11,1	3,5	5,8
^{236}U	$2{,}34\ 10^{7}$			0,7	1,2
^{238}U	$4{,}47\ 10^{9}$	2704	4478	2573	4261
Total Uranium:		2710	4488	2577	4268
Plutonium:					
^{238}Pu	87,7	6,8	11,3	7,5	12,4
^{239}Pu	24119	126	209	63,5	105,2
^{240}Pu	6569	59,5	98,5	52,8	87,4
^{241}Pu	14,4	26,9	44,5	24,6	40,7
^{242}Pu	$3{,}7\ 10^{5}$	18,7	31,0	21,5	35,6
Total Pu	/	237,9	394,0	169,9	281,4
Actinides mineurs					
^{237}Np	$2{,}14\ 10^{6}$			0,5	0,8
^{241}Am	432,2			8,7	14,4
^{243}Am	7380			5,4	9,0
^{243}Cm	28,5			0,04	0,1
^{244}Cm	18,1			2,4	4,0
^{245}Cm	8500			0,3	0,5
Total actinides mineurs:				17,3	28,7
PFVM[c]					
^{90}Sr	28			0,9	1,5
^{137}Cs	30			4,3	7,1
Total PFVM				5,2	8,6
PFVL[c]					
^{79}Se	70 000			0,01	0,02
^{93}Zr	$1.5\ 10^{6}$			1,8	3,0
^{99}Tc	$2.1\ 10^{5}$			2,9	4,8
^{107}Pd	$6.5\ 10^{6}$			1,9	3,2
^{126}Sn	10^{5}			0,1	0,2
^{129}I	$1.57\ 10^{7}$			0,8	1,3
^{135}Cs	$2\ 10^{6}$			2,9	4,8
^{151}Sm	93			0,01	0,02
Total PFVL				10,4	17,4
Total PF				135	224

a) l'inventaire au déchargement est celui à 4 ans après le déchargement du réacteur
b) on a supposé un facteur de charge de 70 % ; ces valeurs se réfèrent à la partie du coeur qui est chargée en MOX, soit 30%. Le MOX produit donc 1,66 TWhé/an. La partie restante du coeur est constituée de combustibles standards (voir tableau 6) et produit 3,86 TWhé/an.

Le plutonium que l'on recycle dans les REP est introduit sous forme d'un combustible d'oxyde mixte uranium - plutonium, appelé MOX (Mixed Oxide). On utilise généralement dans ce_combustible de l'uranium appauvri, en provenance de l'usine d'enrichissement. La concentration en plutonium est ajustée pour obtenir, sans recours à de l'uranium enrichi, la réserve de réactivité initiale qui permettra d'atteindre un taux de combustion donné. Elle l'est également pour compenser l'anriréactivité due aux isotopes pairs du plutonium, 240 et 242, qui ne sont pas fissiles en neutrons thermiques. Avec un plutonium issu d'un réacteur standard à uranium enrichi, la proportion initiale de plutonium est par exemple de 8,2 %, si l'on veut atteindre un taux de combustion de 45 000 MWj/t, qui est l'objectif d'EDF pour les réacteurs chargés en MOX. Par ailleurs seulement 30% du coeur est actuellement chargé en combustible MOX, pour des raisons de sûreté. Un exemple d'inventaire des matières d'un combustible MOX avant et après irradiation est représenté au tableau 10. On constate qu'en fin d'irradiation la masse de plutonium a diminué de 68 kg/TWhé (ou 23 kg/TWhth). Cette "incinération" du plutonium est importante, représentant près de 50% de la valeur théorique de 46 kg/TWhth mentionnée au § 3.1, et porte pour l'essentiel sur l'isotope fissile ^{239}Pu. Elle est nettement plus élevée que ce que l'on peut aisément atteindre avec un réacteur à neutrons rapides (voir annexe 1).

Tableau 11: Quelques modes de recyclage du plutonium [8]

Scénario:	**Cycle ouvert**		**Recyclage hétérogène**		**Recyclage homogène**
Réacteur	REP N4	REP RMA	REP MOX	RNR CAPRA	REP MOX
Rapport de modération	2	3	2	/	2
TCT (MWj/t)	55 000	55 000	55 000	140 000	55 000
N° du cycle	1	1	1	Equilibre	Equilibre
Chargement:					
Teneur en plutonium (%)	0	0	10	54	2,0
Teneur en ^{235}U (%)	4,5	3,8	0,25	0,19	3,8
Bilan massique (variation à 5 années après déchargement, en kg/TWhé):					
Plutonium	+29	+21	- 66	- 87	+0
Neptunium	+2,1	+1,4	+0,2	+0,3	+1,6
Américium	+1,4	+1,4	+14	+16	+4,5
Total actinides mineurs	+3,8	+2,9	+17	+18	+8,3
Introduction dans un parc de 60 GWé:					
% dans le parc[a)]	100	100	13	24	100
Production AM[b)] (kg/TWhé)	+3,8	+2,9	+5,6	+6,9	+8,2
Production Pu (kg/TWhé)	+29	+21	+17	+0	+0
Inventaire cycle Pu (tonne)[c)]				310	200

a) dans tous les cas, les réacteurs de base du parc sont de type N4_UOX (voir première colonne)
b) AM: actinides mineurs (neptunium, américium et curium)
c) en supposant que ce parc produit 400 TWhé par an et un temps de refroidissement avant retraitement de 3 et 5 ans pour les combustibles RNR et REP respectivement

Le recyclage du plutonium en REP a pour effet de réaliser une économie d'uranium naturel et d'UTS. Elle est de l'ordre de 30% pour l'ensemble, au niveau d'un seul réacteur, chargé à 30% en MOX et n'utilisant que de l'uranium appauvri dans le MOX. Au niveau d'un parc de réacteur, s'autoalimentant en plutonium, cette économie se situe plutôt au voisinage de 15%.

Le recyclage hétérogène, tel qu'il se pratique aujourd'hui, conduit à deux limitations principales:

- la difficulté de recycler plusieurs fois le plutonium qui, suite à l'enrichissement progressif en isotopes pairs, devient de moins en moins fissile en neutrons thermiques, nécessitant un accroissement de sa teneur à chaque nouveau recyclage (limitations liées à la sûreté). A cela s'ajoute des contraintes dans le cycle associé ;

- la production accrue d'actinides mineurs, qui a pour effet de limiter les gains en radiotoxicité qu'indiquerait la figure 1, surtout si on ne se limite qu'à un seul recyclage (dans ce cas il y a augmentation de la radiotoxicité pendant les 100 premières années après déchargement du réacteur).

EDF n'envisage actuellement de recycler un seule fois, dans un nombre limité de réacteurs, le plutonium extrait de combustibles à uranium enrichi retraités. Comme il n'est pas question d'entreposer pendant des années du plutonium qui se dégraderait (décroissance de ^{241}Pu vers ^{241}Am), on limite aujourd'hui les quantités retraitées à la Hague aux seules possibilités de recyclage.

D'autres scénarios de recyclage que celui présenté ici, (recyclage hétérogène sur support d'uranium appauvri) sont envisageables. Ne faisant pas partie des options actuelles, ils ne sont pas discutés de manière détaillée dans ce cours (se reporter à celui de M. Delpech). On a cependant, à titre de comparaison, rassembler les caractéristiques essentielles des principaux scénarios susceptibles d'atteindre un inventaire d'équilibre (tableau 11 et voir annexe 1)

3.5. Le stockage géologique en profondeur des déchets B et C

Que ce soit la plupart de ceux issus du retraitement ou que ce soit les combustibles irradiés non retraités eux-mêmes, les déchets ultimes présentent des risques pour l'homme et l'environnement qui perdurent durant des milliers de siècles, en raison de la présence d'actinides ainsi que de certains produits de fission à vie longue dans leurs inventaires. Ceci est le cas des déchets C (verres, combustibles irradiés), qui concentrent la quasi-totalité de la radioactivité créée en réacteur et qui dégagent de ce fait de la chaleur, nécessitant un entreposage de refroidissement. C'est également le cas des déchets B, générés dans les opérations de retraitement et de recyclage du plutonium (fabrication de MOX), parce qu'ils contiennent des émetteurs α, à des concentrations très supérieures aux valeurs admises réglementairement pour un stockage en surface (soit 0,01 Ci par tonne en moyenne au centre de stockage en surface de Soulaines). Le stockage en couches géologiques profondes de ces déchets dits à vie longue (déchets B) et à haute activité et vie longue (déchets C) constitue aujourd'hui la solution de gestion définitive adoptée par l'ensemble des pays confrontés aux problèmes des déchets nucléaires. Aussi, cette option fait-elle l'objet d'études menées activement depuis de nombreuses années dans des cadres nationaux et internationaux (AIEA, OCDE, CE), souvent en coopération. Le tableau 12 résume le contexte de ces études pays par pays.

La sûreté d'un stockage géologique profond repose en principe sur la combinaison de trois barrières: le colis de déchet doté éventuellement d'un surconteneur, les matériaux de remplissage des structures artificielles dans lesquelles sont déposés ces colis et, enfin, la roche hôte elle-même. Celle-ci, constituée en général de granit, d'argile ou de sel, doit répondre à des critères tels que la faible circulation d'eau, la stabilité géologique, l'absence de ressources associées, etc... . Il existe deux concepts extrêmes de sûreté à très long-terme, reposant soit sur le surconteneurage, tel que le cuivre pur (cas de la Suède), soit au contraire sur la barrière naturelle que constitue le milieu géologique lui-même. En réalité chacune de ces barrières contribuent à retarder ou empêcher la migration des radionucléides vers la biosphère dans des proportions variant selon le site choisi.

Les études sur le stockage sont d'abord des <u>études de caractère générique</u> (modélisation, études expérimentales de milieux types, mise en oeuvre de méthodes expérimentales ...), puis des <u>études de qualification</u> d'un site particulier, susceptible de présenter des caractéristiques répondant à divers critères de sûreté, mises en évidence par des recherches préalables (bibliographie, données minières ou pétrolières, sondages à partir du sol, etc...). C'est ainsi, que la méthode adoptée en France consiste à sélectionner au

moins deux sites potentiellement favorables (exigence contenue dans la loi déchet du 30 décembre 1991)

Tableau 12: Le contexte des études de concept de stockage souterrain dans divers pays [9]

PAYS	PRINCIPAUX TYPES DE DECHETS	MILIEUX GEOLOGIQUES ENVISAGES	DATES OBJECTIFS DE MISE EN SERVICE DU STOCKAGE	ACTEUR PRINCIPAL
Allemagne	non exothermiques	couches argileuses de la mine de Konrad	2002	DBE
	exothermiques	dôme de sel de Gorleben	2008 à 2015	DBE
Belgique	déchets B de retraitement	couche d'argile de Boom	2035	ONDRAF
	déchets C de retraitement	couche d'argile de Boom	2050	ONDRAF
Canada	combustibles irradiés	granite (bouclier canadien)	après revue du concept	EACL (R & D)
Espagne	combustibles irradiés	argile, granite, sel	à partir de 2020	ENRESA
Etats-Unis	déchets B d'origine militaire	couche de sel (WIPP, Nouveau Mexique)	1993	US DOE
	déchets C d'origine militaire; combustibles irradiés	tuff Yucca Mountain (Nevada)	2010	US DOE
Finlande	faible et moyenne activité	granite (VLJ, Olkiluoto)	1992	TVO
	combustibles irradiés	granite	2010	TVO
Japon	déchets C de retraitement	cristallin, sédimentaire	2020 à 2030	processus de création en cours
Pays-Bas	déchets B et C	sel		ECN (R & D)
Royaume-Uni	faible et moyenne activité	granite sous couverture de Sellafield	2006-2007	UK NIREX
Suède	faible et moyenne activité	granite (SFR, Forsmark)	1988	SKB
	combustibles irradiés	granite	démonstration à partir de 2008	SKB
Suisse	vie courte	marne (Wellenberg)	env. 2005	CEDRA
	haute et moyenne activité à vie longue (déchets de retraitement et combustibles irradiés)	cristallin, argile, molasse	2020	CEDRA

pour y construire au moins deux laboratoires souterrains de qualification. Les résultats obtenus dans ceux-ci devront, le cas échéant, permettre d'étayer les demandes d'autorisation de construction d'un site de stockage. La démarche est pratiquement la même dans les autres pays qui mènent des études sur le stockage, comme la Suède, la Suisse, la Belgique, le Canada ou les Etats-Unis.

Jusqu'à présent, la sûreté d'un site de stockage a surtout été étudiée par simulation pour divers milieux tels que le granit, l'argile ou le sel. Il s'agit de calculs de migration des radionucléides supposés être relâchés par les colis de déchets selon une loi dépendante du temps. Utilisant certains paramètres physico-chimiques décrivant le milieu géologique (notamment transmissivité hydraulique, pH, et degré d'oxydation de l'eau souterraine, coefficients de rétention de la roche...) et des modèles de transfert dans la biosphère des radionucléides vers l'homme, ces simulations fournissent des valeurs de la dose délivrée à un groupe critique, à diverses époques du futur, dans le cas par exemple d'un scénario d'évolution normale, écartant toute situation accidentelle d'origine naturelle ou anthropique. Ces calculs de risque résiduel indique généralement des doses très inférieures aux normes actuelles pour le public, liées à certains produits de fission à vie longue et délivrées à des horizons très éloignés dans le temps. Les figures 2 et 3 montrent un exemple d'un tel calcul de dose qui pourrait être délivrée dans le cas de l'exploitation d'un aquifère profond près d'un stockage de déchets B et C dans l'argile (code OASIS de l'ANDRA).

Figure 2 (ANDRA [10])

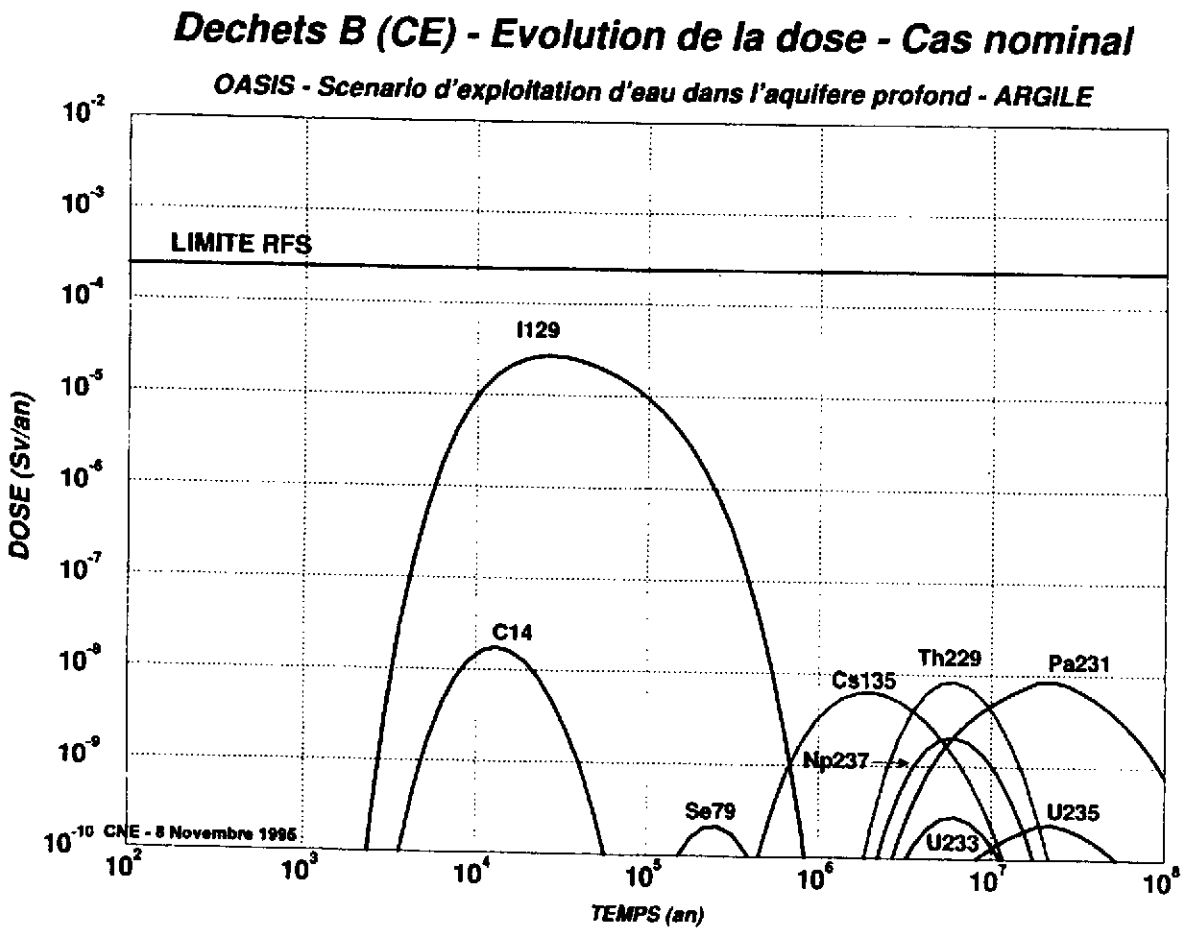
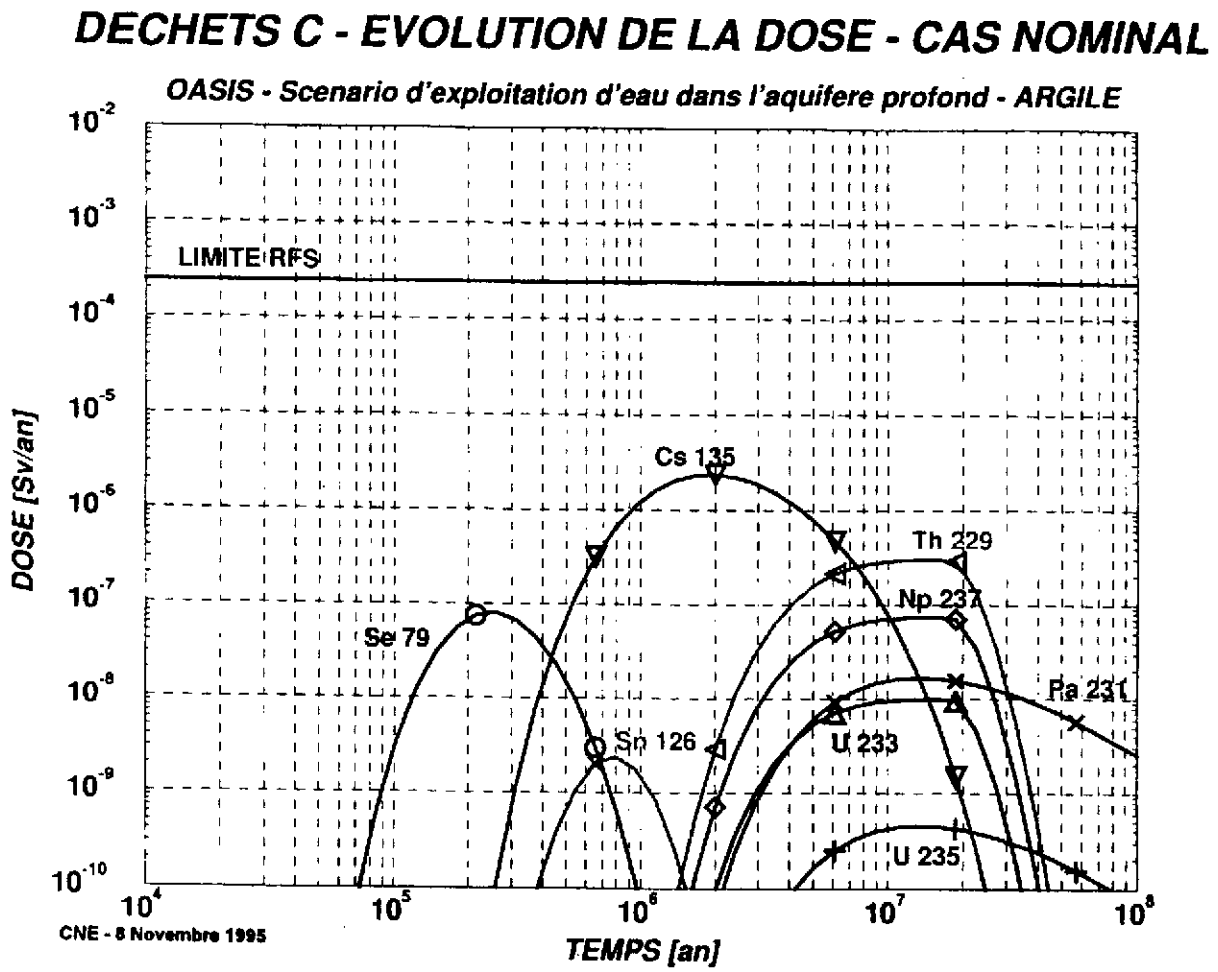


Figure 3 (ANDRA [11])



L'ensemble de ces résultats conforteraient plutôt l'image d'innocuité du stockage géologique, à partir du moment où il serait correctement conçu et réalisé. Malgré cela, il n'existe dans le monde aucun site de stockage opérationnel, et l'on rencontre souvent de fortes réticences dans certains secteurs de l'opinion vis à vis de la création d'un site de stockage en profondeur. C'est le cas notamment de la France, où l'on a adopté une loi spécifique relative à la gestion des déchets de haute activité et à vie longue.

3.6. La loi déchets du 30 décembre 1991

En effet, à la suite des oppositions rencontrées, entre 1987 et 1990, par l'ANDRA à la recherche d'un site pour un laboratoire souterrain de qualification d'un centre de stockage en profondeur de déchets, le Gouvernement décidait en 1990 un moratoire d'une année, durant laquelle l'Office Parlementaire d'Evaluation des Choix Scientifiques et Technologiques se saisissait de ce dossier sensible. Suite à son rapport [12] le Parlement votait la loi déchets du 30 décembre 1991 prévoyant un statut d'indépendance de l'ANDRA par rapport au C.E.A. et fixant dans son article 4 trois axes de recherche concernant la gestion des déchets de haute activité et à vie longue (séparation/transmutation, le stockage géologique, conditionnement et entreposage des déchets). La nécessité d'élargir le champ des options techniques au-delà du stockage profond est donc reconnue d'une certaine manière par cette loi. L'élargissement des options concernant la gestion des déchets relève en particulier d'un effort de recherche, et découle de diverses constatations:

- la nécessité de disposer de solutions visant à gérer à court et moyen terme les combustibles irradiés, compte tenu du contexte actuel concernant l'utilisation du plutonium, voire la place future du nucléaire dans la production d'électricité;

- la nécessité de disposer, par ailleurs, d'une stratégie de gestion des déchets et du plutonium à plus long-terme qui soit diversifiée, telle que la séparation poussée et la transmutation des déchets à vie longue dans divers types de réacteurs (REP, réacteurs à neutrons rapides, systèmes assistés par accélérateur).

Cette loi a impulsé dans les organismes nationaux de recherche un effort nouveau, qui s'est traduit dans la mise en oeuvre au C.E.A. et au CNRS de programmes spécifiques relatifs aux trois axes définis par cette loi. Ces programmes sont évalués depuis 1994 par une Commission Nationale d'Evaluation, instituée par cette loi, et qui a déjà remis au Gouvernement deux rapports (juin 1995 et 1996).

4. DONNEES CONCERNANT LA PRODUCTION DE DECHETS

Nous avons rassemblé dans ce chapitre des données concernant les déchets existants, les quantités auxquelles on peut s'attendre et l'évolution des moyens industriels

4.1. Le cas de la France

Les quantités de matières nucléaires (uranium naturel, enrichi, appauvri, combustibles irradiés) et de déchets en amont du réacteur qu'a utilisés ou produites le programme électronucléaire pourrait en principe se déduire de la quantité totale d'énergie fournie par les centrales nucléaires et des données fournies au tableau 1. En fait il est difficile de procéder ainsi, les paramètres pris pour ce tableau variant nécessairement au cours du temps en fonction par exemple des minerais d'uranium utilisés ou des caractéristiques de l'usine d'enrichissement et des réacteurs (notamment l'introduction du MOX). S'agissant de l'aval du cycle, le spectre et les masses de plutonium et de déchets dépend des quantités de combustibles retraités et des caractéristiques comme le taux de combustion et les paramètres du réacteur. Elles dépendent, in fine, de décisions de nature politique quant à l'ampleur futur du programme électronucléaire, du retraitement et du recyclage.

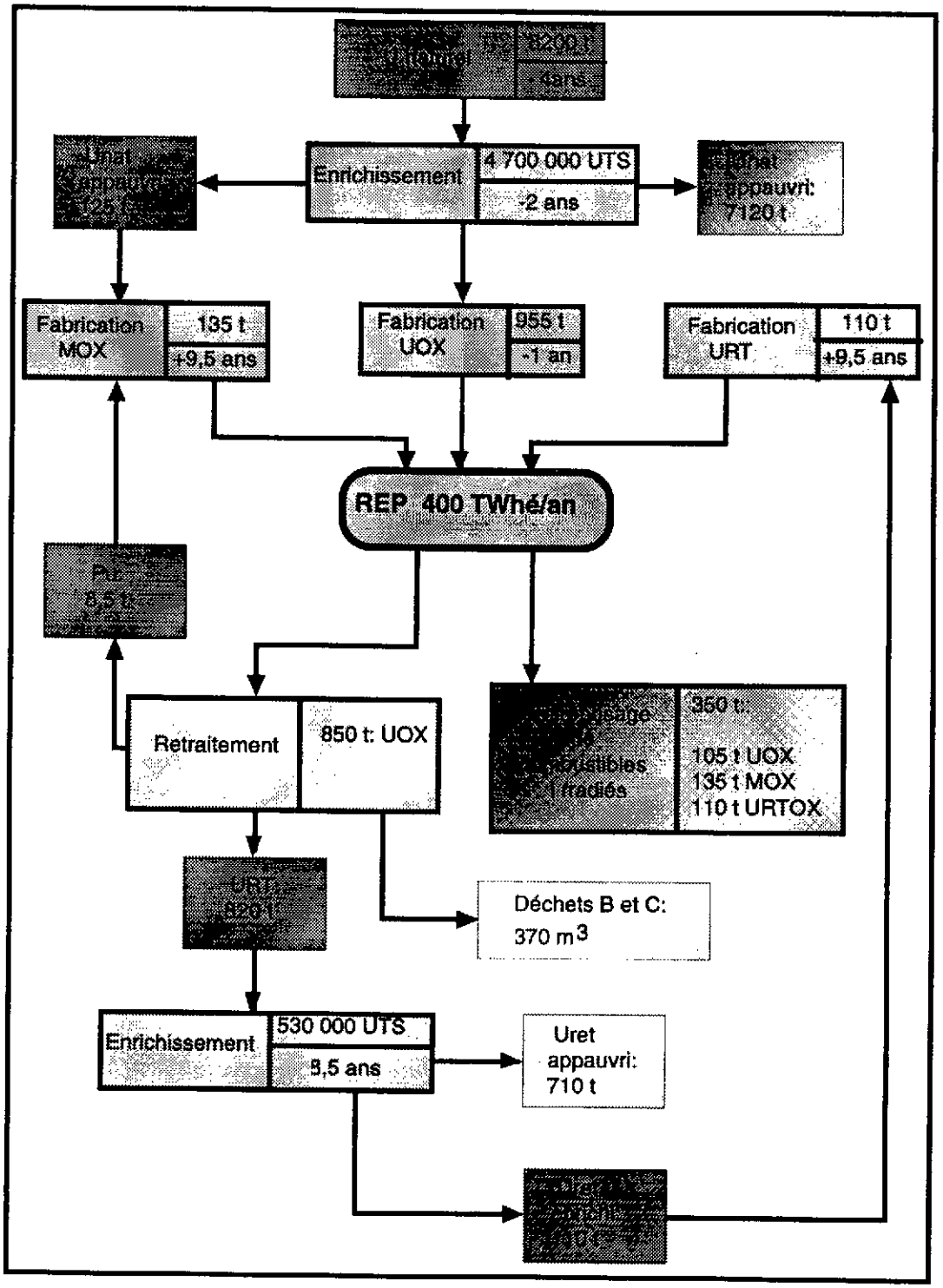
Nous nous sommes appuyés sur des données fournies par les organismes concernés (EDF, COGEMA et ANDRA) à la Commission Nationale d'Evaluation, et qui figurent dans son deuxième rapport, rendu public en juillet 1996. Ces données, concernant les flux annuels de matières nucléaires liées au fonctionnement du parc EDF produisant annuellement 400 TWhé, sont rassemblées dans le tableau 13 ci-dessous. Cette situation concerne une situation après 2000, qui serait caractérisée:

- par le monorecyclage du plutonium dans 135 tonnes de combustibles MOX fabriqués dans l'usine MELOX à partir de 8,5 tonnes de plutonium issus du retraitement de 850 tonnes de combustibles standard à uranium enrichi;

- par un monorecyclage très modeste de 110 tonnes d'uranium de retraitement, nécessitant un enrichissement supplémentaire pour compenser la présence de ^{236}U (capteur de neutrons) dans l'uranium de retraitement; cet enrichissement génère à son tour de l'uranium appauvri, qui constitue un nouveau type de déchet.

Dans ce scénario, qui diminue les besoins en uranium naturel et en UTS, 850 tonnes sont retraitées annuellement , les 350 tonnes restant (dont 135 tonnes de MOX) étant entreposés sous eau en attente de décision (retraitement différé ou stockage direct). On observera enfin la durée des diverses étapes du cycle du combustible. Les données de ce tableau risquent évidemment d'être modifiées, si l'on décidait d'étendre le recyclage aux 28 réacteurs des deux paliers de 900 MWé. Cette possibilité a été ouverte par la récente demande du ministre de l'industrie, F. Borotra, à E.D.F, de démarrer les procédures administratives de demande d'autorisation visant l'extension du recyclage.

Tableau 13: Flux annuels dans le cycle du combustible nucléaire associé au parc EDF (situation après 2000) [13]



On a supposé qu'après 2000, les performances annoncées par COGEMA concernant les volumes des déchets B et C sont atteintes (voir tableau 9).

Tableau 14: Ordre de grandeur des volumes et quantités de déchets attendus en 2010 et 2020 (référence [14])

	Producteurs	Volume des déchets B	Déchets C
Situation en 2010	COGEMA a)	42 000 m^3	verres: 2700 m^3
	EDF b)	12 000 m^3	UOX c): 3440 tonnes MOX: 1900 tonnes
	C.E.A.	15 000 m^3	10 à 60 tonnes
Situation en 2020	COGEMA a)	45 700 m^3	verres: 3900 m^3
	EDF b)	16 000 m^3	UOX c): 5590 tonnes MOX: 3250 tonnes
	C.E.A.	19 800 à 26 400 m^3	10 à 60 tonnes

a) avec compactage des coques (voir tableau 5)
b) les déchets B de EDF sont les grappes de commande des réacteurs
c) UOX: comprend les combustibles à uranium enrichi et à uranium de retraitement dont le devenir est en attente; à cela s'ajoute environ 9500 tonnes de combustibles non retraités jusqu'en 1995 (voir tableau 16), mais qui devront en principe être retraités.

Tableau 15: Quantités d'éléments contenus dans les verres ou les combustibles usés

	Verres 1) et déchets B		Combustibles Usés		
	2010	2020	2010		
			UOX	MOX	TOTAL
U	6,3	9,1			
Pu	0,1	0,14	30	101,5	131,5
Np	8,4	12	2	0,3	2,3
Am	7,6	10,8	2,3	9,7	12
Cm	0,524	0,734	0,2	1,6	1,8
Actinides mineurs	17	24	4,5	11,6	16,1
Produits de fission 2)	557	797	environ 200 2)		

1) avec les rendements élevés actuels de séparation (voir tableau 9)

2) dont, par exemple 6,34 t de ^{135}Cs dans les verres, 0,735 t de ^{129}I et 1,6 t de ^{135}Cs dans les UOX et 0,485 t, ^{129}I et 1,725 ^{135}Cs dans les MOX.

Compte tenu des dernières informations dont a disposé la Commission Nationale d'Evaluation pour son rapport de juillet 1996, concernant aussi bien la mise en route vers l'an 2000 du compactage des coques (voir tableau 9) à la Hague que l'évolution des taux de combustion et des teneurs en ^{235}U et en plutonium des combustibles des réacteurs, on peut fournir un ordre de grandeur des volumes de déchets B et C attendues en 2010 et 2020 (voir tableau 14).

4.2. La situation à l'étranger

A part la zone du sud-est asiatique et le Japon, on constate aujourd'hui une stagnation dans les programmes d'équipement électronucléaire, ou du moins une pause, comme c'est le cas en France. La part du nucléaire est de l'ordre de 18% dans la production mondiale d'électricité, et cette part, qui est de 24 % pour les pays industrialisés de l'OCDE tendra, selon les prévisions de l'AEN de l'OCDE, à diminuer d'ici 2010. Le tableau 16 rassemble, par importance relative décroissante, des données concernant la production d'électricité nucléaire et la gestion des combustibles irradiés des principaux pays de la zone OCDE qui ont engagé un programme électronucléaire. Les proportions significatives de l'ordre de 20-30% observées pour des pays très industrialisés comme l'Allemagne ou les Etats-Unis sont les résultats d'efforts importants qui furent menés dans les années 60-70. Quant à la France, elle est aujourd'hui à saturation, avec une certaine surcapacité et n'a pas de projet de construction nouvelle avant au moins 2010 (source ministère de l'industrie, DGEMP).

Dans un tel contexte; il y a peu de pression sur le marché de l'uranium et de l'enrichissement pour lesquels les besoins prévus d'ici 2010 restent inférieurs à l'offre (déstockage de l'uranium des producteurs d'électricité américains, uranium très enrichi de Russie, sous emploi des usines d'enrichissement).

Il n'en est pas de même de l'aval du cycle, que ce soit pour les capacités d'entreposage des combustibles irradiés (au regard de leur production continue), de retraitement et d'emploi du plutonium séparé ou pour la construction de site de stockage de déchets ultimes.

C'est ainsi que les capacités d'entreposage varient d'un pays à l'autre, le cas des Etats-Unis étant un des plus préoccupant en ce qui concerne l'entreposage des combustibles irradiés dans les piscines des réacteurs. Au plan mondial, les capacités mondiales d'entreposage, qui sont à l'heure actuelle un peu moins du double de la production cumulée de combustibles irradiés, deviendraient insuffisantes à partir de 2010 (source AEN/OCDE).

La politique vis à vis du devenir de leurs combustibles irradiés est variable d'un pays à l'autre. Trois pays ont, pour des raisons diverses, opté pour le stockage direct:

- les Etats-Unis, pour des raisons liées à la non-prolifération, et, depuis 1982, à l'absence d'intérêt de la part des industriels;
- la Suède qui a adopté par référendum un programme limité dans le temps, jusqu'en 2010, et qui préfère donc aller "au plus simple" (entreposage sous eau, puis stockage direct);
- le Canada dont les réacteurs CANDU ont des performances telles qu'ils brûlent "in situ" le plutonium formé, rendant sa séparation par retraitement sans intérêt.

D'autres (France, Royaume-Uni, Japon et Russie) au contraire ont développé une industrie du retraitement pour des raisons à la fois commerciales (contrats étrangers de la COGEMA et de BNFL au Royaume-Uni) et nationales liées à une politique d'utilisation du plutonium pour des besoins civils, et, jusqu'à une certaine époque, militaires. Citons le cas particulier du Royaume-Uni, dont la plupart des réacteurs de la filière graphite-gaz utilisent un combustible métal qui est retraité à part dans l'ancienne usine de Sellafields.

Enfin, la plupart des autres pays ont des politiques mixtes (ce pourrait devenir le cas en France même) ou des politiques d'attente. Parmi les premiers, on trouve les pays, hors Japon, qui ont signé dans le passé des contrats de retraitement avec COGEMA et BNFL. La politique de retraiter en totalité ou non les combustibles est partout réexaminée, compte tenu de la situation énergétique et de l'intérêt pour chacun de ces pays de recycler le plutonium. Aujourd'hui, environ 8000 tonnes de combustibles irradiés sont déchargées annuellement au plan mondial avec une production cumulée d'environ 90 000 tonnes non retraitées et entreposées pour l'essentiel en piscine (source AEN de l'OCDE). Si l'on met à part la cas

particulier des combustibles métal (cas du Royaume-Uni) dont l'essentiel a été retraité, guère plus de 10 000 tonnes ont été retraité à ce jour, essentiellement dans les usines de la Hague, qui représentent près de 80% du marché mondial du retraitement. Ces données montrent la situation dominante de la COGEMA sur le marché du retraitement. Les autres pays, qui n'ont jamais fait retraiter leurs combustibles, se limitent quant à eux à entreposer leurs combustibles usés dans les piscines près de réacteurs.

Tableau 16: Données concernant la fin du cycle dans des pays de l'OCDE

PAYS	Part de nucléaire [%] a)	Puissance installée [GWé] a)	Politique de gestion des CI	CI déchargés [tonnes] b)	CI déchargés [tonnes] c)	CI retraités [tonnes] d)
France	76,4	58,5	R_D, (E)	1150	11770	2518
Belgique	55,8	5,5	R, E	120	1400	403
Suède	51,1	10,0	ST_DIR	250	*≈ 3240*	
Suisse	36,8	3,0	R, E	85	*≈ 1300*	285
Espagne	35,0	7,1	E	168	1775	
Finlande	29,5	2,3	E	70	*≈ 975*	
Allemagne	29,3	22,7	R, E	470	6315	2706
Japon	27,2	38,9	R, R_D	981	*≈ 8600*	1082
Royaume-Uni	25,8	11,7	R_D, E?	826		
Etats-Unis	22,0	98,8	ST_DIR	2200	*≈ 28600*	
Canada	19,1	15,8	ST_DIR	1479		
Pays-Bas	4,9	0,5	R, E	15	150	162

a) situation au 1er janvier 1995 (source AIEA)
b) en 1992, source: Agence de l'Energie Nucléaire de l'OCDE
c) CI oxydes, cumulés jusqu'en 1995 (source CE); les donnée en "italique" ont été estimées à partir de la production cumulée d'électricité d'origine nucléaire (source C.E.A., 1992) et en prenant une moyenne de 4,2 tonnes de CI par TWhé (cas de l'Allemagne).
d) à la Hague, CI oxydes cumulés jusqu'au 1er mars 1995 (source COGEMA)
R_D: retraitement dans le pays même; R: retraitement effectué à l'étranger;
E: entreposage d'attente de décision; ST_DIR: stockage direct de combustibles usés.

En revanche, le stockage géologique profond représente partout la solution de référence que ce soit pour des combustibles irradiés ou des déchets issus du retraitement (verres, déchets B). Il n'existe au plan mondial à ce jour que des laboratoires méthodologiques ou de qualification au stade pilote. Citons parmi les pays les plus actifs dans ce domaine la Suède (laboratoire de Stripa dans le granit), la Belgique (laboratoire de Mol dans le granite), la Suisse (laboratoire de Grimsel dans le granit) ou le Canada (laboratoire URL dans le granit). En France, le processus initié par la loi de 1991 a abouti aujourd'hui à la sélection de trois sites (le granit dans la Vienne, l'argile dans l'est et le Gard) pour la construction d'un laboratoire souterrain. Enfin le DOE a choisi un site de stockage dans Yucca-Mountain (tuff) qui n'a pas à ce jour reçu d'autorisation de construction. D'une manière générale, il ne semble pas possible de démarrer effectivement le stockage géologique profond de déchets avant au moins 2020, dans quelque pays que ce soit. Cette situation traduit bien les difficultés, à la fois technique, scientifique et politique, que l'on rencontre partout pour procéder au stockage définitif de déchets nucléaires.

REFERENCES:

[1] Commission d'Evaluation de la situation du Centre de Stockage de la Manche ("rapport Turpin"), 16 juillet 1996.

[2] Ch. Madic, cours de DEA Radioéléments, Radionucléides, Radiochimie, Universités Paris XI, Grenoble 1 et Tours, INSTN, 1995-1996.

[3] Encyclopédie Universalis, tome 16, page 589, 1995.

[4] J. Baumier et al., Economie de l'Energie Nucléaire, CEA-INSTN, 1983.

[5] T.H. Pigford, dans Review of Modern Physics, 50, n°1, Partie 2, janvier 1978.

[6] Stéphanie Sala , Thèse de l'Université de Provence, 26 juin 1995.

[7] D'après COGEMA, situation en 1995.

[8] Données fournies par le C.E.A. lors de son audition par la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991 (Paris, le 8 février 1996).

[9] Données fournies par le C.E.A. lors de son audition par la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991 (Paris, le 8 février 1996).

[10] Calculs présentés par l'ANDRA à la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991 (Paris, le 8 février 1996).

[11] Calculs présentés par l'ANDRA à la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991 (Paris, le 8 février 1996).

[12] Ch. Bataille, député, Rapport sur la Gestion des déchets nucléaires à haute activité, Office Parlementaire d'Evaluation des Choix Scientifiques et Technologiques, 1990-1991.

[13] Direction du combustible de EDF, document fourni à la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991 (voir son rapport n°2, 1996).

[14] Rapport n°2 de la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991.

[15] J.P. Schapira, Transmutation des radionucléides à vie longue: principes, méthodes, réacteurs, accélérateurs. Cours donné au DEA Radioéléments-Radionucléides-Radiochimie, Universités: Paris XI, Grenoble I, Tours, INSTN, 1996-1997.

ANNEXE 1: Evolution de la composition d'un combustible sous irradiation (source: cours sur la transmutation donnée au DEA RRR, 1996-1997) [15]

L'évolution du combustible, lors du recyclage du plutonium, peut être décrit d'une manière simplifiée à l'aide des équations de Bateman, en supposant que le flux de neutrons est constant et que les diverses sections efficaces sont moyennées sur le spectre en énergie des neutrons. On peut également considérer que le multirecyclage du plutonium revient à effectuer une irradiation prolongée, couvrant plusieurs cycles réels d'irradiations. On peut dans le cadre de ces hypothèses simplificatrices montrer que la composition du combustible, et notamment la teneur en plutonium, atteint un régime d'équilibre.

Pour illustrer la nature de l'équilibre que l'on peut atteindre durant une telle irradiation prolongée, simulant le multirecyclage, on considérera le cas simplifié de deux corps, le premier N_1, dont on néglige la fission, alimentant le second par capture, le second N_2 étant détruit par capture et par fission, produisant donc de l'énergie. On suppose que l'on insère dans le réacteur une quantité $N_1(0)$ et $N_2(0)$ au début de l'irradiation. C'est le cas par exemple du cycle ^{238}U-^{239}Pu, correspondant au recyclage du plutonium dans les REP ou dans les RNR. On montre que la concentration de 2 dans 1, augmente ou diminue vers une concentration limite, ou reste constante, selon la valeur de la concentration initiale.

Le système d'équation de Bateman s'écrit simplement, en prenant comme variable indépendante la fluence $s = \int_0^t \Phi \cdot dt$, changement de variable qui est possible, parce que les corps en question sont stables pendant les durées d'irradiation.

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{ds} &= -c_1 \cdot N_1 \\ \frac{dN_2}{ds} &= c_1 \cdot N_1 - (c_2 + f_2) \cdot N_2 \\ \frac{dF}{ds} &= f_2 \cdot N_2 \end{aligned} \qquad (1)$$

Dans cette expression, c_1 et c_2 sont les sections efficaces de capture sur 1 et 2, f_2 la section efficace de fission. Au fur et à mesure que l'irradiation se déroule, les noyaux N_1 disparaissent par capture. On peut étudier le régime relatif, à l'aide d'une équation différentielle simple, qui se déduit aisément du système (1) ci-dessus:

$$\frac{dr(s)}{ds} + \gamma \cdot r(s) = c_1 \qquad (2)$$

où $r(s) = \frac{N_2(s)}{N_1(s)}$ et $\gamma = -c_1 + c_2 + f_2$.

La structure de la solution:

$$r(s) = \frac{c_1}{\gamma} + \left(r(0) - \frac{c_1}{\gamma} \right) \cdot e^{-\gamma \cdot s} \qquad (3)$$

montre que pour $\gamma > 0$ (qui est vérifié dans la réalité), on atteint un équilibre relatif $r(\infty) = \frac{c_1}{\gamma}$, avec la constante de "fluence" γ. Si l'on charge initialement à cette valeur, la composition relative du combustible se maintient durant toute l'irradiation: cette valeur constitue la composition d'équilibre.

Le cas $r(0) > r(\infty)$, correspond à une incinération de 2 dans 1, jusqu'à la valeur d'équilibre, tandis que le cas $r(0) < r(\infty)$, correspond à une surrégénération de 2 dans 1 (mis à profit dans les RNR).

La constante de temps d'établissement de l'équilibre relatif est indépendante de la composition initiale et est égale à:

$$\tau = \frac{1}{\gamma \cdot \Phi} = \frac{1}{(-c_1 + c_2 + f_2) \cdot \Phi} \tag{4}$$

Appliquant (4) au cas d'un REP, on trouve une constante de temps d'atteinte de l'équilibre de 4 ans, en prenant un flux de $5\ 10^{13}$ n/sec/cm^2. Il faut près de 9 ans pour que l'on atteigne 90% de la valeur d'équilibre $^{239}Pu/^{238}U = 0{,}6\%$ (1% en ce qui concerne le Pu total): c'est l'ordre de grandeur de ce que l'on calcule pour l'autorecyclage dans un REP (voit tableau 11, cas du recyclage homogène). En réalité, la valeur d'équilibre du Pu total dans un REP se situe aux alentours de 2%, et elle est atteinte au 2ème cycle (ceci est dû à la prise en compte des isotopes de masse supérieure, dont l'équilibre met plus de temps à s'établir). Dans la réalité, les temps de mise à l'équilibre sont beaucoup plus long, en raison des arrêts pour déchargement, refroidissement, retraitement et refabrication de combustibles.

On peut également exprimer les quantités de plutonium incinérés en fonction de l'énergie produite. Le rapport $\frac{dN_2}{dF}$ fourni la quantité de noyaux 2 détruits (ou produits) par fission, rapportée au nombre de fissions pendant une augmentation de fluence ds. Ce rapport est un indicateur de performance d'incinération (ou inversement de surrégénération). Nous allons le calculer dans le cas important de l'incinération du plutonium.

Lorsqu'on irradie aux neutrons un mélange U-Pu (par exemple sous forme d'un oxyde mixte), on détruit le Pu par fission, en produisant de l'énergie, mais on en refabrique par capture sur ^{238}U (corps 1). Reprenant les relations de Bateman (1) ci-dessus, le rapport entre la variation de l'inventaire de ^{239}Pu (corps 2) et l'énergie produite est proportionnel à $\frac{dN_2}{dF}$, et s'exprime à partir des équations(1):

$$\frac{dN_2}{dF} = \frac{c_1}{f_2 \cdot r(s)} - \frac{c_2 + f_2}{f_2} \tag{5}$$

En exprimant cette relation, en kg par TWhth fournie, en fonction de la concentration x, , on trouve une consommation C, proportionnelle à $\frac{dN_2}{dF}$:

$$C(kg / TWh(th)) = 46 \cdot \frac{x - x_{min}}{(1 - x_{min}) \cdot x} \tag{6}$$

où:

$$x_{min} = \frac{N_2(0)}{N_1(0) + N_2(0)} = \frac{c_1}{c_1 + c_2 + f_2} \tag{7}$$

Dans cette expression, le facteur 46 provient du fait que pour x=1 on doit obtenir la consommation maximum de 46 kg/TWhth (ou 110 kg/TWhé pour un RNR), correspondant à la production de 200 MeV par fission. x_{min} représente la concentration minimum pour qu'il y ait incinération effective. Si on applique ces expressions aux réacteurs thermique et rapide, en prenant les sections efficaces moyennes données dans

la référence 15 (tableau. 6.1), on obtient les résultats reportés au tableau ci dessous. Ces valeurs, ne donnent qu'un ordre de grandeur de la réalité, compte tenu de la simplicité du modèle. On observe cependant que pour incinérer une quantité donnée de Pu, on a besoin de concentrations bien plus élevées en RNR qu'en MOX. C'est effectivement ce que montre le tableau 10, où un MOX consomme 68 kg/TWh(é) avec une concentration initiale de 4,3 % en ^{239}Pu, alors que pour obtenir une telle consommation il faudrait des concentrations de l'ordre de 30-50 % en RNR. L'équation (6.) décrit bien l'allure d'une hyperbole pour des points, obtenus par des codes d'évolution complets.

Tableau 16: Données sur la consommation de plutonium

Filière:		MOX (5,3% Pu total)	RNR
$\sigma_c(^{238}U)$	en barn	0,83	0,29
$\sigma_c(^{239}Pu)$	en barn	21,06	0,50
$\sigma_f(^{239}Pu)$	en barn	37,7	1,85
x_{min}	en %	1,4	10,9