

Défis et avantages possibles de la séparation-transmutation

M. Salvatores, B.-C. Na, C. Nordborg *

Le risque radiologique associé au combustible nucléaire irradié est principalement dû à quelques éléments chimiques : le plutonium, le neptunium, l'américium, le curium et quelques produits de fission à vie longue, comme l'iode et le technétium. Ces sous-produits radioactifs, bien que présents à de très faibles concentrations dans le combustible irradié, constituent un danger pour les différentes formes de vie lorsqu'ils sont libérés dans l'environnement. De ce fait, leur stockage exige leur isolement de la biosphère dans des formations géologiques profondes et stables sur de longues périodes.

On considère que la séparation-transmutation est un moyen de réduire la charge pesant sur le dépôt géologique. Étant donné que le plutonium et les actinides mineurs sont principalement responsables de la radiotoxicité à long terme, une fois ces nucléides extraits du combustible irradié (séparation), puis transformés par fission (transmutation), les déchets restants perdent une grande partie de leur radiotoxicité à long terme.

Il est possible de démontrer que l'inventaire radiotoxique pourrait être réduit d'un facteur d'au moins 10, si tout le plutonium était recyclé dans des réacteurs. On peut obtenir des facteurs de réduction supérieurs à 100 si, de surcroît, les actinides mineurs sont brûlés. Pour parvenir à une réduction aussi importante, il faut éliminer la quasi-totalité des actinides par fission, ce qui

nécessite un multirecyclage. En outre, la stratégie de séparation-transmutation permet, en principe, de réduire à la fois la masse des radionucléides à stocker et leur chaleur résiduelle et, par extension possible, le volume et le coût du dépôt. Pour ce faire, il reste néanmoins un certain nombre de défis à relever, en particulier dans les domaines de la séparation et de la conception des combustibles.

Recyclage dans les REO et les réacteurs à neutrons rapides

Tous les scénarios de séparation-transmutation impliquent un retraitement du combustible et un recyclage des actinides et, éventuellement, des produits de fission. Le recyclage du plutonium est une première étape incontournable. À l'heure actuelle, cette stratégie est devenue une réalité industrielle, mise en œuvre dans de nombreux pays utilisant, pour ce faire, des réacteurs à eau ordinaire (REO) standard. Plusieurs études ont été consacrées à l'évaluation du recyclage du plutonium et des actinides mineurs dans des réacteurs de puissance. Les caractéristiques détaillées, dont des tableaux des inventaires de plutonium, d'actinides mineurs et de produits de fission, des trois stratégies du cycle du combustible décrites ci-dessous sont comparées par exemple dans l'article cité à la référence 1 :

- multirecyclage du plutonium dans des REO ;
- multirecyclage du plutonium et des actinides mineurs dans des REO ;
- recyclage du plutonium et du plutonium avec les actinides mineurs dans des réacteurs à neutrons rapides.

Une des principales conclusions de cette comparaison est que la solution la plus prometteuse pour le multirecyclage du plutonium et des actinides mineurs consiste à utiliser des réacteurs à neutrons rapides. En fait, le multirecyclage de tous les

* M. le Professeur Massimo Salvatores (massimo.salvatores@cea.fr) est Conseiller scientifique auprès du Directeur de l'Énergie nucléaire au CEA en France et du Directeur adjoint du Laboratoire national d'Argonne aux États-Unis ; M. Byung-Chan Na (byung-chan.na@iket.fzk.de) était, au moment de la rédaction, le Secrétaire scientifique du Sous-groupe de l'AEN sur la physique et la sûreté des systèmes de transmutation ; M. Claes Nordborg (nordborg@nea.fr) est Chef de la Section des sciences nucléaires de l'AEN. Cet article s'inspire et comporte des extraits de la publication *Physics and Safety of Transmutation Systems: A Status Report*, (OCDE/AEN, Paris, 2006).

actinides mineurs dans des réacteurs à eau ordinaire a une incidence considérable sur le cycle du combustible (par exemple, sur la fabrication du combustible du fait que les doses neutroniques sont multipliées par un facteur d'environ 10 000), ce qui rend cette stratégie impraticable.

Le plutonium et les actinides mineurs peuvent être recyclés dans des réacteurs à spectre neutronique rapide en mode homogène ou en mode hétérogène. Le mode de recyclage homogène consiste en un système capable de recycler le plutonium et les actinides mineurs ensemble (évitant une séparation du plutonium et des actinides mineurs), de stabiliser les flux de plutonium et d'actinides mineurs et de ne laisser qu'une petite fraction des actinides radiotoxiques (pertes au retraitement) dans les déchets. En fait, si l'on suppose que les pertes durant le retraitement sont de l'ordre de 0,1 %, le recyclage homogène permet d'obtenir une réduction de la radiotoxicité potentielle d'un facteur de près de 200 par rapport au scénario du cycle ouvert (où le combustible n'est irradié qu'une seule fois avant d'être définitivement stocké), et cela sur une période allant de 100 à 1 million d'années. Cette réduction est si importante que la radiotoxicité dans les dépôts de stockage en formation géologique profonde devient comparable à celle du minerai d'uranium initial après une période de moins de mille ans. Les principaux avantages du recyclage homogène résident dans son utilisation optimale des ressources pour la production d'énergie, ainsi qu'en principe dans sa compatibilité avec plusieurs options, en termes de taille de réacteur, de combustible, de réfrigérant du réacteur et de formes de déchets entre autres.

Le recyclage hétérogène consiste à procéder à la transmutation des actinides mineurs sous forme de cibles chargées dans des sous-assemblages spécifiques de cœurs critiques de type standard. Cette méthode a pour principal avantage de concentrer la maintenance d'un inventaire réduit d'actinides mineurs (séparés du plutonium) dans un cycle du combustible spécifique. En revanche, un de ses éventuels inconvénients est le temps d'irradiation extrêmement long nécessaire pour procéder à la fission d'une quantité importante d'actinides mineurs. En fait, le facteur limitatif est, pour le recyclage hétérogène, la valeur du taux de fission atteignable dans des conditions réalistes, alors que pour le recyclage homogène il s'agit des performances de séparation. Un autre inconvénient possible de cette technique est l'impact qu'elle a sur les caractéristiques du réacteur (par exemple sur les distributions de puissance) en raison de la présence d'assemblages cibles dans le cœur. Dans l'ensemble, la plupart des études indiquent que la transmutation des produits de fission à vie longue (comme le technétium-99 et l'iode-129) est difficilement praticable et que son impact est incertain.

Systèmes hybrides (ADS) dédiés

Une autre solution consiste à séparer le cycle du combustible des actinides mineurs et la technologie de transmutation de la production d'électricité. Il suffirait pour ce faire d'utiliser des cœurs de réacteurs à neutrons rapides dédiés dans lesquels le combustible au plutonium est fortement chargé en actinides mineurs. Les inconvénients possibles de ces cœurs critiques dédiés proviennent des difficultés soulevées par la dégradation des paramètres de sûreté : très faible fraction de neutrons retardés et effet Doppler diminué. Ces inconvénients ont poussé les chercheurs à mettre au point le concept de système sous-critique à neutrons rapides piloté par accélérateur (ADS) et le concept du cycle du combustible dit à « double strate », décrits plus loin dans cet article.

Pour se faire une idée des caractéristiques d'un ADS typique (accélérateur de protons de 600 MeV couplé par l'intermédiaire d'une cible de spallation au cœur d'un réacteur sous-critique à neutrons rapides), un calcul assez simplifié montre que le faisceau de l'accélérateur doit être de l'ordre de 5 mA (3 MW_{th} dans le faisceau de particules) pour un cœur sous-critique de 0,99 et d'environ 25 mA (15 MW_{th} dans le faisceau) pour un cœur sous-critique de 0,95. Ces chiffres révèlent que le choix du niveau de sous-criticité est crucial et qu'il est probablement difficile d'envisager un cœur extrêmement sous-critique (par exemple $k < 0,95$), en raison des caractéristiques très contraignantes de l'accélérateur requis (>15 MW_{th} dans le faisceau), des conditions strictes de fiabilité à respecter pour l'accélérateur et du coût de l'énergie nécessaire pour l'alimenter. La démonstration des composants du concept ADS (à savoir accélérateur de protons très puissant, cible de spallation, cœur sous-critique) et de leur comportement en fonctionnement (par exemple, surveillance continue et efficace de la sous-criticité à l'aide de techniques expérimentales appropriées) constituent un véritable défi pour la R-D.

Scénarios de séparation-transmutation faisant appel à des cœurs à spectre de neutrons rapides

On décrit ici trois des scénarios de séparation-transmutation les plus couramment étudiés. Tous trois vont au-delà de la stratégie du cycle du combustible ouvert et suppose le retraitement du combustible. Les caractéristiques de ces trois scénarios sont exposées ci-dessous.

Développement de l'énergie nucléaire conjugué à une minimisation des déchets

Ce scénario peut être mis en œuvre avec des réacteurs à neutrons rapides de Génération IV, avec un recyclage

homogène du plutonium (Pu) et des actinides mineurs simultanément (2 à 5 % d'actinides mineurs dans le combustible). Cela permet de réduire considérablement les déchets radioactifs en termes de volume, de radiotoxicité et de charge thermique. Cela permet également de préserver les ressources (le plutonium est une ressource essentielle) et de garantir une meilleure résistance à la prolifération (le plutonium et les actinides mineurs ne sont pas séparés).

Une variante peut également être envisagée : elle consiste à utiliser le mode de recyclage hétérogène décrit plus haut. Les cibles d'actinides mineurs (sur un support d'uranium, par exemple) seraient alors chargées à la périphérie du réacteur rapide de Génération IV.

Cycle du combustible à « double strate »

Le cycle du combustible à double strate consisterait à utiliser des réacteurs de puissance commerciaux pour incinérer le plutonium recyclé dans du combustible MOX, et à séparer la gestion des actinides mineurs en utilisant à priori un ADS. Les actinides mineurs seraient brûlés dans un système « transmutateur » dédié, qui pourrait être soit un réacteur rapide critique à faible taux de conversion ou un réacteur hybride sous-critique (ADS) chargé de combustibles ne contenant pas d'uranium.

Ce scénario a pour principal avantage de permettre de séparer la gestion des actinides mineurs du cycle du combustible commercial. On devrait aboutir à une réduction de la radiotoxicité similaire à celle attendue dans le scénario 1 décrit ci-dessus, si les performances de séparation (pertes au retraitement ou taux de récupération des transuraniens, par exemple) sont à peu près les mêmes dans les deux scénarios.

Réduction des stocks de transuraniens (TRU)

Ce scénario, qui fait appel au multirecyclage du plutonium et des actinides mineurs dans des transmutateurs dédiés permet de réduire les stocks de ces éléments dans le combustible usé qui pourra être utilisé, par exemple, en cas d'abandon progressif des centrales nucléaires. Néanmoins, si ce scénario est mis en œuvre par un pays de façon isolée, il suppose un déploiement important de nouvelles installations (installations de retraitement et de fabrication du combustible et réacteurs pilotés par accélérateur, entre autres). En outre, l'élimination de 80 % de l'inventaire initial de transuraniens demanderait une centaine d'années.

Avantages potentiels de la séparation-transmutation

La séparation-transmutation présente des avantages importants pour le cycle du combustible.

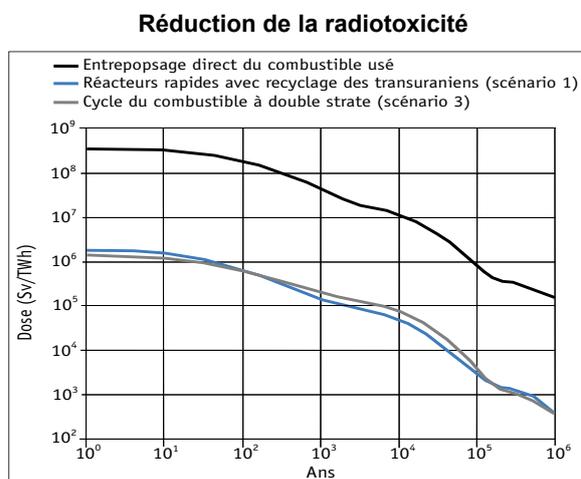
Citons entre autres :

- la réduction du volume de déchets et de la charge thermique pour leur enfouissement en formation géologique, de sorte qu'une quantité plus importante de déchets radioactifs peut être stockée dans le même dépôt ;
- la réduction de la radiotoxicité dans le dépôt de stockage en formation géologique profonde (ce qui est important dans l'hypothèse d'une « intrusion ») ;
- une meilleure résistance à la prolifération si les éléments transuraniens ne sont pas séparés (par recyclage homogène dans un réacteur à neutrons rapides, par exemple).

La capacité de stockage dans un dépôt de déchets radioactifs, du type de celui de Yucca Mountain, peut être augmentée sensiblement si certains des actinides et des produits de fission sont extraits des déchets avant que ceux-ci ne soient envoyés au dépôt. À supposer que le taux de séparation soit de 99,9 %, l'élimination du plutonium et de l'américium permettra de multiplier par 6 la capacité de stockage. Si, en outre, on sépare le curium, le césium et le strontium, la capacité pourra être multipliée par 50, voire plus.

En termes de réduction prévue de la charge thermique dans un dépôt, le multirecyclage du plutonium et le stockage des actinides mineurs ont des avantages limités (inférieurs à un facteur de 2). En revanche, le multirecyclage du plutonium et de l'américium, associé au stockage du curium, a un impact plus favorable (d'un facteur de 5 ou 6, 1 000 ans après le stockage). Si le curium est entreposé et non stocké, la réduction théorique de la charge thermique est comparable à celle obtenue lorsque tous les éléments transuraniens sont complètement recyclés dans un réacteur rapide.

On peut voir sur la figure la réduction de la radiotoxicité obtenue avec différents scénarios.



Notons que l'on obtient la même réduction avec le recyclage homogène et le scénario du cycle du combustible à double strate, en supposant équivalentes les performances de la séparation chimique. La réduction est tellement importante qu'à l'équilibre, la radiotoxicité potentielle des déchets radioactifs enfouis dans le dépôt tombe, après moins de 1 000 ans, au niveau de la radiotoxicité du minerai d'uranium initial.

Quelques défis encore associés à la séparation-transmutation

On peut dire qu'en règle générale, la physique de la transmutation est bien comprise. Des expériences ont été réalisées en irradiant des échantillons purs d'isotopes transuraniens dans des réacteurs de puissance ; les résultats obtenus correspondent bien aux calculs. Ce sont en fait la séparation des actinides et la conception du combustible qui posent les principaux défis. Citons quelques exemples :

- La chimie des actinides est complexe : ainsi la séparation de l'américium et du curium des lanthanides est difficile. Des résultats prometteurs ont été obtenus, en particulier avec les procédés aqueux (se reporter par exemple à l'ouvrage cité à la référence 3), mais la mise en œuvre industrielle des procédés mis au point à l'échelle des laboratoires représente encore un défi majeur.
- La conception et le traitement des combustibles, et en particulier des combustibles sans uranium, pour la transmutation dans des ADS ou de cibles d'un recyclage hétérogène sont toujours à l'étude.
- Les procédés (pyrochimiques) par voie sèche (probablement plus appropriés aux combustibles sans uranium) doivent encore faire l'objet d'importantes recherches. La production et la gestion des déchets secondaires sont aussi une source de préoccupations.
- La forte chaleur de décroissance et l'émission neutronique importante de plusieurs éléments transuraniens de nombre de masse supérieur soulèvent de nouveaux problèmes en ce qui concerne la fabrication standard de combustibles.

En outre, les scénarios faisant appel à un système ADS nécessitent la validation de nouveaux concepts, comme les accélérateurs de protons de forte intensité extrêmement faibles ayant 5 à 20 MW dans le faisceau, des cibles de spallation utilisant du métal solide ou liquide, un couplage complet des différents composants de l'ADS et la validation du comportement dynamique d'un système sous-critique en présence d'une source externe.

Enfin, aucune stratégie de séparation-transmutation ne peut être mise en œuvre sans procéder auparavant à une analyse minutieuse des coûts et des avantages. Une première analyse a été réalisée

(voir référence 4) pour tenter de quantifier l'impact sur l'ensemble des installations du cycle du combustible (y compris différents types d'environnements géologiques) et donner des estimations préliminaires de coûts.

Conclusions

Il est possible de tirer les conclusions suivantes des réflexions présentées ci-dessus et des études auxquelles le texte se réfère :

- Les technologies de séparation-transmutation peuvent contribuer à réduire considérablement les déchets radioactifs.
- La séparation-transmutation ne rend pas inutile l'enfouissement en formation géologique profonde, quelle que soit la stratégie choisie, mais permet une augmentation de capacité du dépôt et une réduction considérable du fardeau, et devrait permettre une meilleure adhésion du public.
- La séparation-transmutation peut être appliquée à des stratégies du cycle du combustible très diverses.
- Les réacteurs rapides critiques sont l'outil le mieux adapté et le plus souple pour mettre en œuvre la séparation-transmutation. Il faut voir dans les systèmes hybrides une option ou une solution complémentaire.
- La démonstration de la séparation-transmutation implique une démonstration expérimentale, dépassant l'échelle du laboratoire, de l'ensemble des composantes de la stratégie : combustibles adaptés, techniques de retraitement adaptées, comportement du réacteur lorsqu'il est chargé avec des quantités importantes d'actinides mineurs.
- La mise en œuvre de la séparation-transmutation pourrait bénéficier d'une approche « régionale » du cycle du combustible.
- La transmutation des produits de fission à vie longue est discutable. Néanmoins, une gestion appropriée du césium-137 et du strontium-90 pourrait avoir une incidence importante sur les performances des dépôts géologiques. ■

Références

1. Salvatores, M. *et al* (2004), "The Physics of TRU Transmutation – A Systematic Approach to the Inter-comparison of Systems", Proc. Int. Conf. PHYSOR 2004, Chicago, 25-29 avril 2004.
2. Salvatores, M. *et al* (2004), "P&T Potential for Waste Minimization in a Regional Context", 8th International Exchange Meeting on P&T, Las Vegas, novembre 2004.
3. Warin, D. (2006), "An Integrated Approach to Partitioning, Challenges Left on the Way Towards Industrial Application", Proc. FISA Int. Conf., Luxembourg, mars 2006.
4. AEN (2006), *Advanced Nuclear Fuel Cycles and Waste Management*, OCDE, Paris.
5. AEN (2006), *Physics and Safety of Transmutation Systems: A Status Report*, OCDE/AEN, Paris.