



Ministère de l'Industrie et de l'Aménagement du Territoire

YK/MP13

Direction Générale de l'Industrie

Paris, le 10 OCT. 1990

Service Central de Sûreté
des Installations Nucléaires

Référence à rappeler :

SIN PARIS N° 2053 /90

FICHE AU CSSIN

AVIS DU SCSIN SUR LE DOSSIER DU CEA

RELATIF A LA SEPARATION ET A LA TRANSMUTATION

DES ACTINIDES MINEURS

A la suite de l'examen par le CSSIN, lors de la réunion du 3 mai 1988, du rapport sur les suites données par le CEA aux directives ministérielles relatives aux recherches et développements en matière de gestion des déchets radioactifs, le CEA a établi un dossier de synthèse relatif à la faisabilité de la séparation et de la transmutation des actinides contenus dans les solutions de produits de fission. Cette synthèse prend en compte les éléments nouveaux relatifs à la modification des limites annuelles d'incorporation des actinides et inclut une évaluation de l'impact radiologique associé à cette opération.

Les trois principaux aspects examinés sont les suivants :

- 1 - l'évaluation de l'impact de l'élimination des actinides au plan de la sûreté,
- 2 - la séparation chimique des actinides,
- 3 - la transmutation des actinides.

.../...

1 - EVALUATION DE L'IMPACT DE L'ELIMINATION DES ACTINIDES

L'étude effectuée par le CEA a consisté à comparer les conséquences radiologiques associées au stockage de déchets vitrifiés, provenant du traitement de 48 000 tonnes de métal lourd irradié dans des réacteurs à eau légère, dans un site granitique et pour un scénario d'évolution normale du stockage dans deux cas : le premier, sans séparation préalable des actinides, le second, après séparation de 99 % des actinides. Le stockage considéré est un stockage hypothétique considéré dans le cadre de l'exercice PAGIS organisé par la CCE.

Le CEA avance les principaux résultats suivants :

- avec ou sans séparation des actinides, les maxima d'équivalents de dose individuels ne sont pas atteints avant 1 à 2 millions d'années avec toutes les réserves qu'appellent les calculs pour des périodes aussi éloignées. Les niveaux d'exposition (inférieurs à 10^{-6} Sv/an) sont très inférieurs à la limite recommandée par la CIPR 46 (10^{-3} Sv/an),
- une séparation de 99 % des actinides ne se traduit que par une diminution non significative du maximum de l'équivalent de dose obtenu à l'exutoire sans séparation des actinides. Ce faible écart s'explique par le fait que les actinides sont des éléments à faible solubilité et que leur relâchement dans les eaux souterraines à très faible débit est limité par la solubilité des espèces chimiques, quelle que soit la quantité de ces espèces dans les colis. Seule la durée de relâchement dépend, dans ces conditions, de la quantité présente,
- la contribution des actinides à l'équivalent de dose est du même ordre de grandeur que celle des produits de fission à vie longue.

Par ailleurs, l'ensemble des opérations nécessaires pour une gestion séparée des actinides conduirait à une augmentation du nombre de personnes exposées à court terme.

L'intérêt d'une gestion séparée des actinides n'apparaît donc pas.

Ces conclusions présentées par le CEA appellent toutefois les commentaires suivants :

- . le site pris en compte pour cette évaluation n'est pas le site retenu pour le stockage et les caractéristiques nécessaires pour les calculs proviennent d'investigations géologiques limitées,
- . compte tenu des incertitudes sur les paramètres de calculs, en particulier les limites de solubilité des actinides, ces résultats ne peuvent être considérés que comme des ordres de grandeurs,

Enfin, seul le scénario d'évolution normale du stockage a été considéré.

En conclusion, il sera nécessaire de confirmer l'impact avec les caractéristiques spécifiques du site retenu dans le cadre des différents scénarios d'évolution plausibles du stockage. Pour cela, il est notamment indispensable de poursuivre les études sur le comportement physico-chimique des radionucléides au sein du stockage : environnement chimique, solubilité, formation de colloïdes ou de complexes, mobilité de ces espèces.

Une conclusion définitive nécessitera également que soit effectuée une étude d'optimisation de la radioprotection prenant en compte les conséquences radiologiques à long terme et à court terme.

2 - LA SEPARATION CHIMIQUE DES ACTINIDES

2.1 Les procédés par voie aqueuse

Depuis la présentation effectuée lors de la réunion du CSSIN du 3 mai 1988, la situation n'a pas sensiblement évolué. Nous rappelons ci-dessous les principaux procédés étudiés.

Dans le cadre d'un contrat CEA/ISPRA, les procédés d'extraction commune des actinides et des lanthanides ont été testés (solvants TBP ou HDEHP) en 79 sur des effluents réels et ont montré la validité du procédé en laboratoire. Toutefois les expérimentations menées à l'échelle du laboratoire sur ces techniques de séparation ont mis en évidence, d'une part l'extrême complexité des opérations chimiques liées au procédé lui-même (la séparation des actinides et des lanthanides nécessitant de nombreux cycles de purification), d'autre part les inconvénients introduits par les extractants qui, comme le TBP, nécessitent d'opérer dans des solutions à forte charge saline (ce qui risque d'être pénalisant pour la vitrification ultérieure des effluents issus du traitement chimique) ou, comme l'HDEHP, qui nécessitent l'ajout de complexants pour empêcher l'extraction simultanée des impuretés présentes dans les solutions et conduisent à une production d'effluents secondaires importante.

Ces études ont donc été arrêtées. Il serait néanmoins intéressant de disposer d'un dossier de synthèse sur l'ensemble des travaux réalisés et sur les difficultés d'industrialisation.

Depuis 1981, un programme d'études portant sur deux procédés d'extraction sélective des actinides des solutions de produits de fission, a été mis en place au CEA. Ces deux procédés consistent en l'extraction des actinides, soit à la valence VI (sauf le curium), soit à la valence III, sans que les lanthanides ne soient eux-mêmes extraits.

Du fait de cette sélectivité, le nombre de cycle de purification des actinides serait très réduit. De plus, ces procédés entraîneraient une économie en hommes-temps et donc une réduction sensible du coût d'investissement et d'exploitation des installations. Ces deux avantages rendent, a priori, ces deux techniques de séparation très attractives. Néanmoins, les quelques essais réalisés ont montré que la maîtrise de ces techniques n'est pas encore acquise.

Il faut remarquer que dans le procédé de coextraction des actinides hexavalents, le curium, n'étant pas oxydé à la valence VI, reste dans les solutions de produits de fission. En ce qui concerne les combustibles UO₂ irradiés à 33 GW.t, l'influence du curium 245 dans la production de l'américium 241 et du neptunium 237 dans les déchets vitrifiés peut être

considérée comme négligeable. Par contre, pour un combustible MOX irradié à 33 GWj/t, la quantité de curium 245 est multipliée par un facteur 30 conduisant à un accroissement significatif de la production de neptunium 237 dans les solutions de produits de fission. L'extraction du curium apparaît donc nécessaire dans ce cas.

En conclusion, des études de base sont nécessaires pour statuer sur la faisabilité de ses méthodes. Il importe de mettre en oeuvre les moyens nécessaires que cela soit acquis en cohérence avec les échéances du stockage en formation géologique profonde.

2.2 Les procédés par voie sèche

Les études de séparation pyrochimique menées aux U.S.A portent sur un projet de système complet de réacteur avec cycle de combustible intégré (projet IFR) qui ne peut être envisagé qu'à long terme. Les techniques séparatives étudiées dans ce cadre pourraient éventuellement être appliquées au calcinat de produits de fission obtenu dans le procédé français de vitrification, si les techniques par "voie aqueuse" en cours d'étude n'aboutissaient pas. Un suivi actif de ces travaux apparaît donc nécessaire.

Un autre schéma de procédé pyrochimique pourrait être envisagé. Il combine la fluoration des oxydes du procédé "voie sèche" étudié au CEA jusqu'en 1970 (volatilisation des fluorures UF₆-PuF₆, obtenus à partir de la fluoration du combustible) et les techniques de séparation en sels fondus qui avaient été envisagées pour le combustible des réacteurs à sel fondus.

Ce procédé pourrait être associé au procédé PUREX pour la séparation des actinides, après la calcination des solutions de produits de fission qui précède leur digestion dans une matrice vitreuse. Ceci serait peut être aussi possible avec le procédé IFR qui ne diffère du précédent que par la nature des sels : chlorures au lieu de fluorures. Notons qu'aucune expérience n'a été, jusqu'à présent, acquise sur ce procédé.

Le CEA devra réaliser, dans un délai de deux ans, un bilan des connaissances actuelles dans le domaine des procédés de séparation par "voie sèche" au plan national et au plan international.

3 - LA TRANSMUTATION DES ACTINIDES

La destruction des actinides par transmutation peut se faire en réacteur à eau sous pression, en réacteur à neutrons rapides, au moyen d'un accélérateur de particules ou par auto-fission.

Pour ce qui concerne les deux dernières méthodes, très peu d'études ont été menées :

- la transmutation nucléaire par un accélérateur utilise les particules secondaires (particules de "spallation") émises lors de l'interaction d'un faisceau de protons incidents de haute énergie (1 000 MeV) avec la cible primaire constituée d'oxyde d'uranium, pour fissionner les noyaux lourds d'actinides (Np, Am, Cm). Les études qui ont été menées, jusqu'à présent, sur cette nouvelle technique ne sont pas suffisantes pour juger de l'intérêt de ce moyen de transmutation. Le CEA devrait examiner la possibilité de

poursuivre, dans un cadre international, des études dans ce domaine, de façon à pouvoir conclure quant à l'intérêt théorique éventuel d'un tel procédé qui, en tout état de cause, nécessiterait un volume de recherches et développement important avant que l'on puisse statuer sur sa faisabilité.

- la transmutation des actinides par autofission consiste à utiliser le rayonnement des actinides pour produire sur des atomes légers (tels que le lithium, le bore, l'oxygène, l'azote...) une réaction (α, n) qui détruit, en retour, l'actinide par les neutrons ainsi émis. Les études effectuées ont montré que le rendement de cette réaction de transmutation serait inférieur à celui obtenu dans un réacteur et nettement insuffisant pour pouvoir envisager la mise en oeuvre industrielle d'une telle technique.

Pour ce qui concerne la transmutation en réacteur, seul le recyclage homogène des actinides dans un réacteur à neutrons rapides a fait l'objet d'études approfondies. Dans cette configuration, les actinides sont répartis uniformément dans le combustible du réacteur à neutrons rapides (U - Pu) O₂, à raison de 1 à 2 % au maximum afin de ne pas pénaliser le réacteur sur le plan de la réactivité et de ne pas être conduit à trop augmenter la puissance volumique du coeur.

Les résultats obtenus par le CEA montrent que les rendements de transmutation sont nettement insuffisants pour pouvoir conclure à l'intérêt de ce mode de recyclage. En effet, le recyclage "homogène" nécessite des délais de plusieurs dizaines d'années pour obtenir l'élimination de 90 % des actinides. Ces délais correspondent à une dizaine de recyclages successifs comprenant des opérations intermédiaires de retraitement, de séparation des actinides et de fabrication des aiguilles, pour obtenir l'élimination de 90 % des actinides.

Or, l'intérêt d'une séparation des actinides avant stockage des déchets n'apparaît que si les rendements de transmutation pouvaient être augmentés d'un facteur 100, l'analyse de sûreté ayant montré qu'une élimination de moins de 99 % environ des actinides ne conduit pas à diminuer de façon significative les conséquences radiologiques à long terme.

Par ailleurs, la nécessité de recyclages successifs conduira inévitablement à une dissémination des actinides, d'autant plus importante que le nombre de cycles sera élevé, au sein des déchets secondaires.

Toutefois, de nouvelles données plus précises devraient permettre de réévaluer l'intérêt du recyclage homogène.

Le recyclage "hétérogène" dans un réacteur à eau sous pression ou dans un réacteur à neutrons rapides n'a fait l'objet d'études que générales à caractère préliminaire. Ces études n'ont pas encore permis d'obtenir des ordres de grandeur des rendements de transmutation et des délais nécessaires pour aboutir à une destruction suffisante des actinides.

Dans cette configuration, les actinides sont concentrés dans des "cibles" constituées, soit par une matrice d'uranium appauvri, soit par une matrice neutroniquement inerte, telle que l'oxyde de magnésium ou l'oxyde de zirconium, et montées dans des assemblages porteurs.

Les avantages du recyclage "hétérogène" seraient :

- de pouvoir concentrer une quantité plus importante d'actinides dans des crayons ou aiguilles de combustible (de l'ordre de 20 % pour ^{241}Am et 40 % pour ^{237}Np),
- d'avoir des assemblages différenciés de ceux du combustible standard de façon à éviter d'avoir à démanteler les assemblages dans l'usine de retraitement pour trier les crayons ou aiguilles contenant des actinides.

L'utilisation d'oxyde d'uranium appauvri comme matrice pour les cibles d'actinides ne supprime pas la nécessité d'effectuer des recyclages successifs, comprenant en particulier les opérations de retraitement.

L'utilisation d'une matrice neutroniquement inerte comme support des actinides pourrait permettre, dans la mesure où les rendements de transmutation seraient suffisants :

- de réduire, et à la limite d'éviter la dissémination des actinides et les pertes lors des différentes opérations de retraitement, séparation et fabrication des aiguilles, par la diminution (ou la suppression) des recyclages successifs,
- de simplifier la gestion des actinides.

L'avancement des études au CEA ne permet pas aujourd'hui de conclure sur la faisabilité industrielle du recyclage "hétérogène" des actinides sur support d'uranium appauvri ou sur support inerte.

Le CEA devrait poursuivre ses études sur les aspects suivants :

- les rendements et les vitesses de transmutation en réacteur,
- les aspects neutroniques et thermohydrauliques des coeurs "hétérogènes",
- la tenue sous irradiation des gaines des crayons contenant des actinides ; les assemblages constitués de cibles montées sur matrice inerte, étant destinés à subir une irradiation plus longue que le combustible lui-même, des recherches sur des matériaux de gaines spécifiques pourraient être à développer.

Un document donnant des éléments d'orientation sur la faisabilité de la transmutation dans les options de recyclage "homogène" et "hétérogène" des actinides devra être transmis au SCSIN dans un délai de 2 ans. Il prendra en compte l'amélioration de la connaissance des données nucléaires.

Par ailleurs, une étude de synthèse portant sur l'ensemble des programmes d'études sur la transmutation des actinides, actuellement en cours au Japon (projet Omega) et aux Etats-Unis (IFR) devra être réalisée.

En particulier, il serait souhaitable d'examiner, d'une part, si certaines caractéristiques des réacteurs de la génération future pourraient apparaître favorables et, éventuellement être ajustées à une transmutation massive des actinides, et d'autre part, si une option de réacteur spécialisé présentait un intérêt.

CONCLUSIONS

L'étude "partielle" de sûreté présentée par le CEA semble relativiser l'intérêt de la séparation des transuraniens pour réduire l'impact radiologique d'un stockage de déchet en formation géologique profonde. Celle-ci doit néanmoins être confirmée et complétée en prenant en compte l'ensemble des scénarios d'évolution plausibles, les paramètres issus de la caractérisation des sites réels et les résultats des études à poursuivre sur le comportement des radionucléides et ceci afin d'avoir les éléments nécessaires pour statuer sur la nécessité de la séparation avant l'ouverture du stockage de déchets.

En parallèle, il faut également se donner les éléments de décision concernant :

- la transmutation des actinides en réalisant les études théoriques et expérimentales nécessaires pour établir la faisabilité industrielle du recyclage "hétérogène" en réacteur et confirmer les conclusions actuelles sur le recyclage homogène.
- la séparation chimique des actinides des solutions de produits de fission en poursuivant les études de base sur les procédés "voie aqueuse" en vue de statuer rapidement sur la faisabilité d'un procédé industriel et en évaluant les méthodes "voie sèche" compte tenu des programmes internationaux.

Ces deux derniers types d'action devront donc être menées avec des moyens à la hauteur des objectifs visés dans des délais cohérents avec la date de mise en service du stockage en formation géologique profonde.

Enfin, compte tenu des difficultés présentées dans cette fiche, la future génération de réacteur devrait aussi intégrer l'objectif de la réduction des déchets et en particulier des déchets à vie longue dans son cahier des charges.