

Élimination des actinides présents dans les déchets par recyclage dans des réacteurs nucléaires

par H.A.C. McKay*

Après quelques siècles de désintégration radioactive, les actinides de longue période (éléments dont les nombres atomiques sont compris entre 89 et 103) présents dans les déchets nucléaires pourraient constituer le principal danger radiologique pour la santé humaine. En effet, la plupart des produits de fission (à l'exception principalement du technétium 99 et de l'iode 129) se seront alors désintégrés presque entièrement, faisant des actinides les principaux éléments dangereux restant dans les déchets. Le recyclage des actinides dans des réacteurs nucléaires, et donc leur élimination par fission nucléaire, semble donc une idée intéressante en première analyse.

Les calculs de physique nucléaire indiquent que l'élimination se ferait à une cadence suffisante, et que l'économie des neutrons du réacteur ne serait pas indûment affectée par la présence d'actinides supplémentaires dans les éléments combustibles. Il y a donc d'excellentes raisons pour examiner attentivement cette idée; plusieurs pays ont du reste conduit à cet effet des programmes de recherche qui ont abouti aux conférences tenues au Centre de recherche européen d'Ispra en Italie [1] et à Austin aux Etats-Unis [2], ainsi qu'à la publication par l'AIEA d'un rapport technique intitulé *An Evaluation of Actinide Partitioning and Transmutation* (Évaluation de la séparation et de la transmutation des actinides); ce travail est le fruit d'un programme de recherche coordonnée que l'AIEA a mené pendant quatre ans [2a]. Le présent article en tire sa substance. La séparation des actinides contenus dans les déchets du cycle du combustible nucléaire est une étape nécessaire préliminaire à leur introduction dans les réacteurs qui effectueront leur transmutation par fission nucléaire. L'ensemble de l'opération sera désigné ci-après par l'abréviation S-T, c'est-à-dire séparation-transmutation.

Pour l'essentiel, les actinides en question sont le neptunium, l'américium et le curium qui représentent environ 0,1% du combustible courant lors du déchargement du réacteur (dans le cycle du combustible au thorium, que nous n'examinerons pas dans ce bref compte rendu, il faudrait également tenir compte du protactinium). Ces éléments apparaissent dans les flux de déchets pendant le retraitement du combustible. On pourrait les appeler actinides de *déchets*, par opposition à l'uranium et au plutonium qui seraient des actinides de *combustible*.

Il ne serait guère judicieux de procéder à la S-T des actinides de déchets si les quantités beaucoup plus importantes de plutonium présentes dans le cycle du

combustible étaient, elles, stockées indéfiniment. Il faut donc envisager le recyclage des actinides des déchets dans le contexte du recyclage du plutonium, utilisé pour alimenter, soit des réacteurs à eau ordinaire, soit des surgénérateurs.

Les opérations doivent englober tous les flux de déchets qui contiennent des actinides. Le plus important est constitué par les déchets de haute activité provenant du retraitement, qui renferment l'essentiel des produits de fission et des actinides de déchets; plusieurs autres flux contiennent toutefois des quantités appréciables d'actinides; c'est le cas des gaines de combustible mises au rebut et des matériaux rejetés pendant la fabrication des éléments combustibles. De fait, des recherches sont en cours pour décontaminer ces flux (actinides de combustible et actinides de déchets), et pour réintroduire les actinides récupérés aux stades appropriés du cycle du combustible. Ces recherches se poursuivront, que les actinides de déchets soient recyclés ou non dans les réacteurs pour y être transmutés, et les déchets de haute activité resteront l'unique flux de déchets contenant des actinides de déchets. La solution S-T exigerait alors une étape supplémentaire qui serait la dissociation des déchets de haute activité.

Schéma des opérations

Les étapes à prévoir pour le recyclage avec S-T des actinides de déchets sont les suivantes:

- Dissociation des déchets nucléaires afin d'isoler les actinides de déchets sous une forme suffisamment purifiée.
- Fabrication d'éléments combustibles contenant les actinides de déchets. En principe, ces derniers pourraient être, soit incorporés de façon uniforme à la totalité du combustible (recyclage homogène), soit être concentrés dans des éléments cibles spéciaux (recyclage hétérogène), bien que cette dernière méthode puisse se heurter à des difficultés presque insurmontables (cf. ci-dessous).
- Introduction dans le réacteur, pour irradiation, des éléments combustibles contenant les actinides de déchets. Tous les principaux types de réacteurs de puissance pourraient probablement être employés à cette fin. Toutefois, l'échelle des opérations rendrait nécessaire l'utilisation de nombreux réacteurs.
- Retraitement des éléments combustibles irradiés et recyclage répété des actinides de déchets à travers toute la série d'opérations.

Le diagramme montre les étapes essentielles avec le procédé E-T, ainsi que les différences par rapport au

* Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Didcot, Oxon, OX11 0RA, Royaume-Uni.

cycle du combustible normal. On peut mentionner immédiatement l'une des conséquences de ce procédé. Comme dans toutes les solutions de ce type, la réintroduction continue des matières recyclées dans le système conduit à l'accumulation de ces matières d'un cycle à un autre. Les quantités se stabilisent généralement après un certain nombre de cycles, dans le cas présent après cinq à dix cycles, quand les proportions de neptunium et d'américium ont approximativement doublé et celle de curium (avec des taux différents de production et de destruction) a été multipliée à peu près par dix.

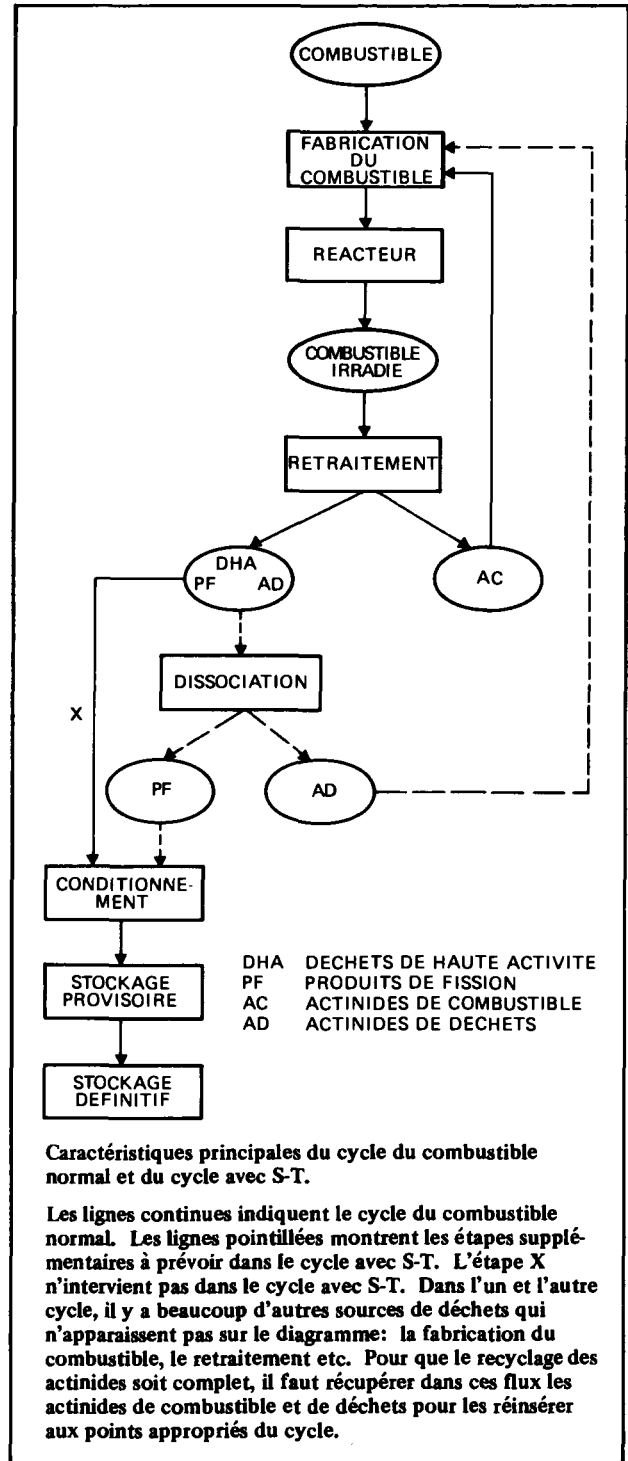
Les propriétés physiques de certains actinides de déchets rendent difficiles la manipulation de ces derniers. Les problèmes majeurs proviennent de leur taux élevé d'émission de chaleur et de neutrons. Par comparaison avec le combustible nucléaire irradié, dont la manipulation est elle aussi évidemment délicate, le dégagement de chaleur dû à la désintégration radioactive est environ trente fois supérieur et l'émission de neutrons environ dix mille fois plus importante. Celle-ci rend indispensable une sérieuse protection radiologique ainsi que la télécommande de toutes les opérations où interviennent les actinides de déchets. La dissipation de la chaleur induite par la désintégration radioactive peut poser des problèmes difficiles quand les actinides de déchets sont présents en grosses quantités sous une forme concentrée.

Séparation

Comme on l'a noté plus haut, on peut supposer que la pratique future sera d'extraire les actinides de tous les déchets autres que les déchets de haute activité afin de minimiser les problèmes de stockage définitif. L'étape supplémentaire qu'exige la S-T consiste à extraire les actinides des déchets de haute activité. Ceci ne présente pas de difficulté particulière pour l'uranium, le neptunium et le plutonium dont la chimie présente des caractéristiques bien particulières qui peuvent être mises à profit pour les séparer d'autres éléments. Au contraire, l'américium et le curium (ainsi que les actinides de numéro atomique plus élevé) ont une chimie tout à fait semblable à celle de certains produits de fission, à savoir les lanthanides (éléments dont le numéro atomique est compris entre 57 et 71). Leur séparation est notoirement difficile à réaliser et la haute activité des déchets considérés majeure fortement cette difficulté.

En général, on envisage pour la récupération des actinides de déchets de commencer par l'extraction des actinides de combustible résiduels ainsi que du neptunium, et de procéder ensuite à la séparation d'une fraction combinée américium/curium/lanthanides. Jusqu'ici, tout se passerait de façon assez similaire aux opérations ordinaires de retraitement. Il existe plusieurs méthodes possibles, dont certaines ont dépassé le stade du laboratoire et atteint partiellement le stade industriel [3]. La praticabilité de cette phase des opérations a été démontrée.

L'étape finale est celle de la séparation de l'américium et du curium d'une part, et des lanthanides d'autre part. On n'a pratiquement trouvé jusqu'ici qu'un seul réactif qui permette cette opération. C'est un



composé organique complexe appelé acide diéthylène-triamine-penta-acétique, DTPA en abrégé. On peut l'utiliser conjointement avec les procédés de l'extraction par solvants ou de l'échange de cations. Si, par exemple, lors de l'extraction par un solvant approprié, on ajoute cet acide à la phase aqueuse, il fixera l'américium et le curium dans ladite phase aqueuse et permettra de récupérer les lanthanides dans le solvant, facilitant ainsi la séparation des éléments en question. On a une large expérience de l'emploi du DTPA avec la technique de l'échange de cations (en dehors même du cas particulier de la S-T des actinides), qui est jugée suffisante pour démontrer sa validité technique [4].

Toutefois, l'opération serait très difficile à réaliser en raison de la forte concentration des lanthanides et des actinides de déchets. Leur rayonnement induirait des dégagements gazeux, endommagerait les échangeurs d'ions et provoquerait l'auto-échauffement des solutions et des échangeurs d'ions. La conception et l'exploitation des installations serait alors très compliquée, entraînant des travaux d'entretien considérables et des taux élevés d'irradiation du personnel. Il est douteux que le procédé puisse faire l'objet d'une application courante à l'échelle industrielle.

Fabrication du combustible

Il y a peu de temps qu'on étudie sérieusement les problèmes que poserait la fabrication de combustible et d'éléments combustibles contenant des actinides de déchets [5, 6]. Pour le recyclage homogène, on a généralement estimé qu'il n'y avait aucune difficulté majeure parce que le combustible irradié tolère déjà environ 0,1% d'actinides de déchets et qu'avec la S-T on n'envisage de porter ce pourcentage qu'à, disons, 0,5%. Néanmoins, il faudrait lancer un programme relativement important pour développer les méthodes de fabrication du combustible et pour concevoir et tester les éléments combustibles.

Les problèmes posés par le recyclage hétérogène sont beaucoup plus aigus parce que les actinides de déchets sont concentrés dans des éléments combustibles cibles, éléments spéciaux distribués parmi les éléments combustibles normaux du réacteur. La chaleur et les rayonnements émis par les actinides de déchets concentrés contrarieraient toutes les opérations, depuis la préparation de la forme chimique désirée (vraisemblablement un oxyde) jusqu'à l'assemblage des aiguilles en éléments combustibles. Les problèmes seraient quelque peu atténués parce qu'il faut diluer les actinides de déchets avec de la magnésie par exemple pour les raisons mentionnées ci-dessous, mais ils resteraient très aigus. L'assemblage d'éléments combustibles cibles pour réacteur surgénératoire pourrait même s'avérer impossible. Pour autant qu'on sache, il faudrait télécommander cette opération qui se ferait dans un bain de sodium liquide nécessaire au refroidissement; ces conditions semblent presque impossibles à réaliser. Dans le cas des réacteurs à eau légère, un degré de dilution supérieur ainsi que la substitution d'eau au sodium pour le refroidissement rendraient les problèmes peut-être plus abordables mais ceux-ci resteraient toutefois au-delà des possibilités de la technologie actuelle.

Transmutation

Il apparaît probable que l'opération de transmutation serait effectuée dans des réacteurs rapides, parce que ceux-ci seront peut-être les seuls réacteurs disponibles en nombre suffisant quant le procédé S-T pourra être mis en œuvre à grande échelle, c'est-à-dire, d'ici plusieurs décennies. Ce choix est renforcé par des considérations techniques plus particulières qui indiquent que ce type de réacteur est probablement marginalement supérieur au réacteur à eau ordinaire pour cette application [4, 7].

Les taux de transmutation diffèrent à l'évidence d'un actinide à l'autre et d'un réacteur à l'autre; la valeur généralement retenue correspond à la transmutation de la moitié de la quantité d'actinides présents en 2-3 ans. Mais cette durée pourrait être multipliée par deux si l'on tient compte du facteur de charge du réacteur, du temps de séjour hors réacteur, etc. La division par 1000 de la quantité des actinides de déchets (qui nécessiterait environ 10 réductions de moitié successives) pourrait ainsi prendre environ 50 ans. Autrement dit, les actinides de déchets devront être recyclés dans les réacteurs de nombreuses fois, quel que soit le système de S-T adopté, puisque les éléments combustibles ne peuvent rester dans le réacteur qu'environ deux ans avant qu'ils ne commencent à se détériorer et qu'on doive les décharger.

Il y a une difficulté supplémentaire, qui concerne les pertes d'actinides [7]. Dans le cycle du combustible classique, les actinides de déchets effectuent un seul passage, avec des pertes faibles dans des flux de déchets autres que les déchets de haute activité. Des recherches permettront de réduire ces pertes, mais en pratique, elles sont inévitables. Dans le cycle du combustible avec S-T, les actinides de déchets font plusieurs passages, avec des pertes chaque fois, et la perte totale est plusieurs fois supérieure à ce qu'elle serait dans un cycle classique. Bref, il serait difficile d'éviter une perte de 1 à 2% d'actinides de déchets dans un système S-T.

Il semble que la présence d'actinides de déchets serait en fait bénéfique pour l'économie des neutrons d'un réacteur rapide, et ne modifierait guère celle des réacteurs à eau ordinaire.

Seuls des travaux préliminaires ont été consacrés à des sujets tels que la compatibilité combustible/gaine et la possibilité de voir la température centrale des aiguilles dépasser le point de fusion du combustible. Les conclusions provisoires [5, 6] sont rassurantes, mais des études complémentaires seraient nécessaires avant que le procédé S-T puisse être mis en œuvre, notamment dans le mode de recyclage hétérogène. Dans ce cas, il faudrait également harmoniser la puissance produite par les cibles avec celle des éléments combustibles normaux. Pour ce faire, la meilleure méthode consiste vraisemblablement à mélanger les actinides de déchets à un diluant neutroniquement inerte comme la magnésie [5]; le facteur de dilution requis serait d'environ 2 pour un réacteur rapide et d'environ 7 pour un réacteur à eau ordinaire.

Evaluation des risques

Le procédé S-T a pour objectif de réduire les risques radiologiques à long terme dus aux déchets de haute activité par l'élimination des actinides. Cet objectif est obtenu au prix d'un accroissement d'autres dangers potentiels et de la complexité du cycle du combustible. Il est difficile de trouver un équilibre, notamment parce que les avantages potentiels sont des avantages à long terme qui intéressent l'ensemble de la population, tandis que les effets nocifs sont essentiellement des effets à court terme qui affectent le personnel des centrales nucléaires.

Les études qui ont été faites sur les différentes méthodes de stockage définitif n'ont fait apparaître aucune objection dirimante, d'ordre radiologique, à l'évacuation des déchets solides qui contiennent des actinides, soit dans les formations géologiques, soit au fond des océans [4, 8, 9, 10]. Quand les calculs font intervenir les valeurs les plus récentes que la CIPR [11] recommande pour la fixation des limites annuelles, les études indiquent que le neptunium est en général de loin l'actinide le plus important et qu'un traitement S-T visant à éliminer cet élément et ses précurseurs pourrait procurer un avantage limité. Toutefois, on peut obtenir généralement cet avantage beaucoup plus facilement et à bien meilleur marché en modifiant la méthode ou les conditions de stockage définitif. Dans certains cas, les produits de fission à très longue période (technétium 99 et iode 129) peuvent accroître singulièrement les risques potentiels, et limiter l'intérêt du système S-T.

Une amélioration régulière de la fiabilité de ces estimations du risque ira de pair avec l'accroissement des données disponibles. Entretemps, les conclusions présentent généralement un caractère rassurant et n'incitent guère à recycler les actinides par le procédé S-T.

Coûts

Au stade du développement actuel, l'estimation des coûts de mise en œuvre du procédé S-T ne peut être que très approximative. Néanmoins, il semble admis [4, 12] qu'ils représenteraient quelque 5% des coûts globaux du cycle du combustible, ce qui n'est certainement pas prohibitif. Toutefois, la diminution éventuelle de la dose collective à long terme est également comparativement faible, et tout indique actuellement que le rapport coût-efficacité du procédé S-T sera très vraisemblablement défavorable.

Les diverses études consacrées au système S-T semblent conduire aux conclusions suivantes:

- Le principe serait techniquement applicable, mais il n'est pas établi que les opérations de séparation chimique requises puissent être réalisées couramment à l'échelle industrielle.
- Un grand et long effort de développement serait nécessaire.

- La première application de cette technique pourrait être possible au début du siècle prochain; son application généralisée ne peut guère être envisagée que plusieurs décennies après.
- La transmutation des actinides de déchets mettrait en jeu une proportion élevée des réacteurs de puissance du pays intéressé.
- Il serait absurde de transmuter les actinides de déchets sans également recycler le plutonium dans des réacteurs où il serait brûlé comme combustible nucléaire.
- L'opération ne serait pas excessivement onéreuse mais son rapport coût-efficacité serait probablement défavorable.
- Les avantages radiologiques à long terme seraient limités et pourraient bien être contrebalancés par les effets défavorables à court terme dus aux opérations de S-T.

Références

- [1] Proc. Second Tech. Mtg. on *The nuclear transmutation of actinides* Ispra, Italie, avril 1980 (CCE, Luxembourg, 1980).
- [2] Intern. Conf. on nuclear waste transmutation Austin, Texas, USA, juillet, 1980.
- [2a] E.R. Irish, *Waste Actinide Partitioning/Transmutation, An Assessment* IAEA-SM-246/63, Vienne, Autriche (1981).
- [3] Voir, par exemple, *An Evaluation of Actinide Partitioning and Transmutation*, Appendix C, IAEA Tech. Rep. à paraître.
- [4] A.G. Croff, J.O. Blomeke, B.C. Finney, *Actinide partitioning transmutation programme final report. I. Overall Assessment*, ORNL-5566 (1980).
- [5] E. Zamorani, J. Cametti, C. Ponti, E. Schmidt, F. Caligara, A. Moreno, *Design of fuel pins containing by-product actinides for irradiation in LWR and FBR power plants* EUR-6817 EN (1980).
- [6] A.G. Facchini, S. Gallone, E. Zamorani, *Considerations on a sol-gel type process as a fuel fabrication route for the actinide recycle* ref. [1], p. 331.
- [7] H.A.C. McKay, M.G. Sowerby, M. Bustraan, J. Montizaan, A. van Dalen, B. Verkerk, *The separation and recycling of actinides — a review of the state of the art* EUR 5801e (1977).
- [8] Appendices E, F, et G. de référence [3].
- [9] W.C. Camplin, P.D. Grimwood, I.F. White, *The effects of actinide separation on the radiological consequences of disposal of high-level radioactive waste on the ocean bed* NRPB-R94 (1980).
- [10] M.D. Hill, I.F. White, A.B. Fleishman, *The effects of actinide separation on the radiological consequences of geologic disposal of high-level waste*. NRPB-R95 (1980).
- [11] Publications 26 (1977) et 30 (1979) de la CIPR.
- [12] E. Schmidt, *Possible recycle strategies for by-product actinides in a reference scenario of installed nuclear generating capacity in the EC and their valuation* ref. [1], p. 471.