

# La transmutation : retours d'expériences, enseignements et perspectives

Par la section technique 5 de la Sfen (Cycle du combustible nucléaire), coordonné par **Cécile Evans**, présidente de la ST 5, directrice marketing et développement stratégique dans les activités aval chez Orano.

**La transmutation d'un radionucléide a pour objet de le transformer en un autre radionucléide de période radioactive plus courte. Des efforts de recherche considérables ont été conduits en ce domaine durant plus de deux décennies, la transmutation constituant l'un des buts affichés des systèmes nucléaires dits « de 4<sup>e</sup> génération ».**

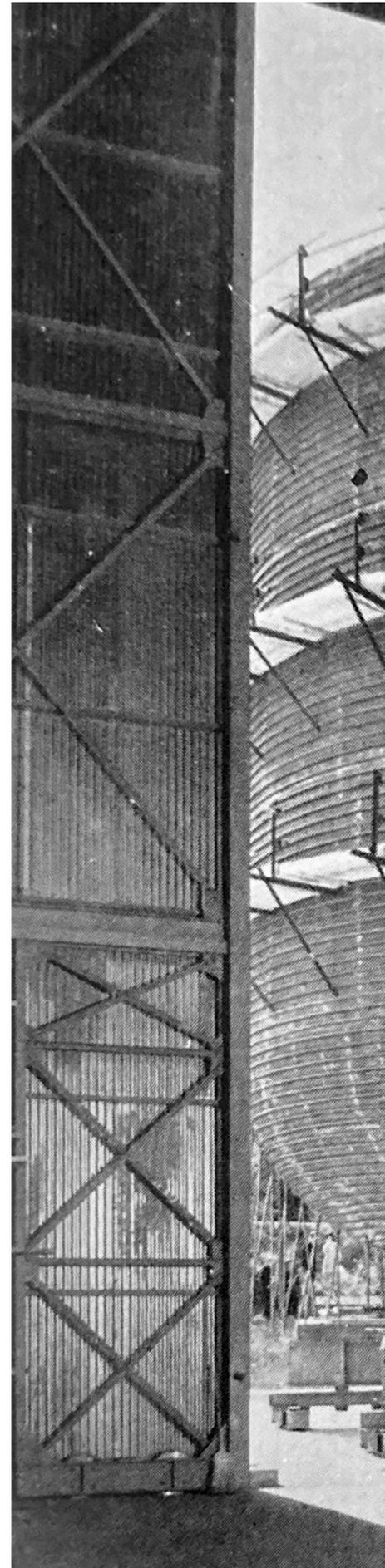
L'idée d'une gestion différenciée des éléments radioactifs à vie longue a percé notamment en Europe dès les années 1970 et 1980. Mais c'est en France qu'elle a connu tout particulièrement un essor considérable à partir de 1991, suite au moratoire sur le stockage géologique des déchets nucléaires, et à la loi Bataille qui identifiait la transmutation des radioéléments à vie longue comme l'un des grands axes des recherches à mener pour définir une politique de gestion à long terme appropriée. Aujourd'hui, alors que le stockage géologique a été confirmé comme solution de

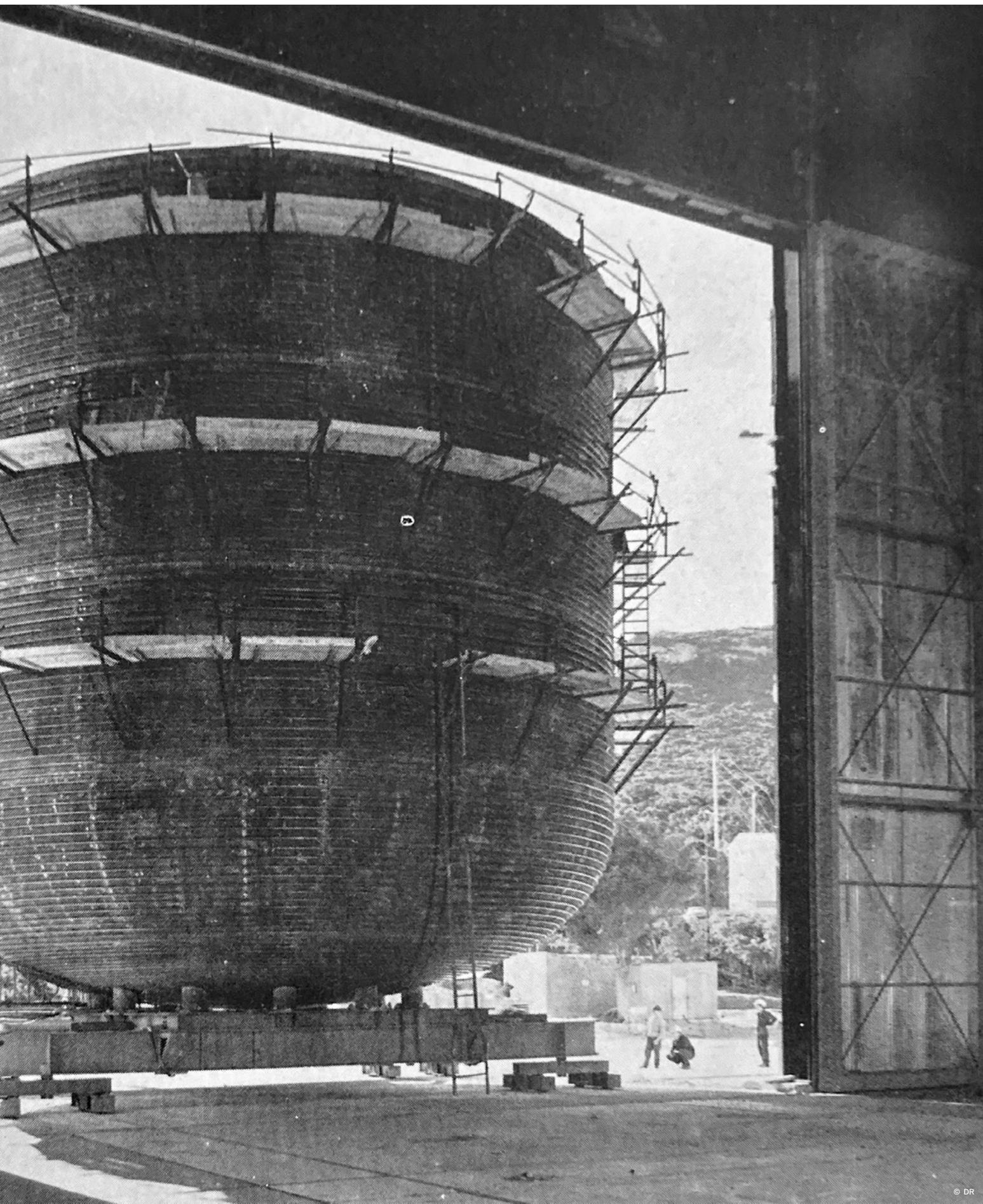
référence pour les déchets les plus radioactifs et que l'Autorité de sûreté nucléaire française a rendu des avis peu favorables au déploiement de la transmutation, apparaissent pourtant nombre de projets, en France et à l'international, témoignant d'un indéniable regain d'intérêt pour la transmutation.

La Sfen a tenu une série de séminaires sur le sujet en 2021, afin de dresser un état des acquis et des perspectives, et de faire un tour d'horizon des technologies aujourd'hui envisagées, avec leurs promesses mais aussi l'identification des difficultés à surmonter.

**La transmutation : quels enjeux ? Réduire la « nocivité potentielle » à long terme des déchets finaux**

C'est l'objectif premier, « historique », de la transmutation : diminuer la toxicité radiologique ou « radiotoxicité » des déchets finaux, en éliminant de ces derniers les radionucléides à vie longue qui contribuent à leur radiotoxicité résiduelle à très long terme. La radiotoxicité considérée

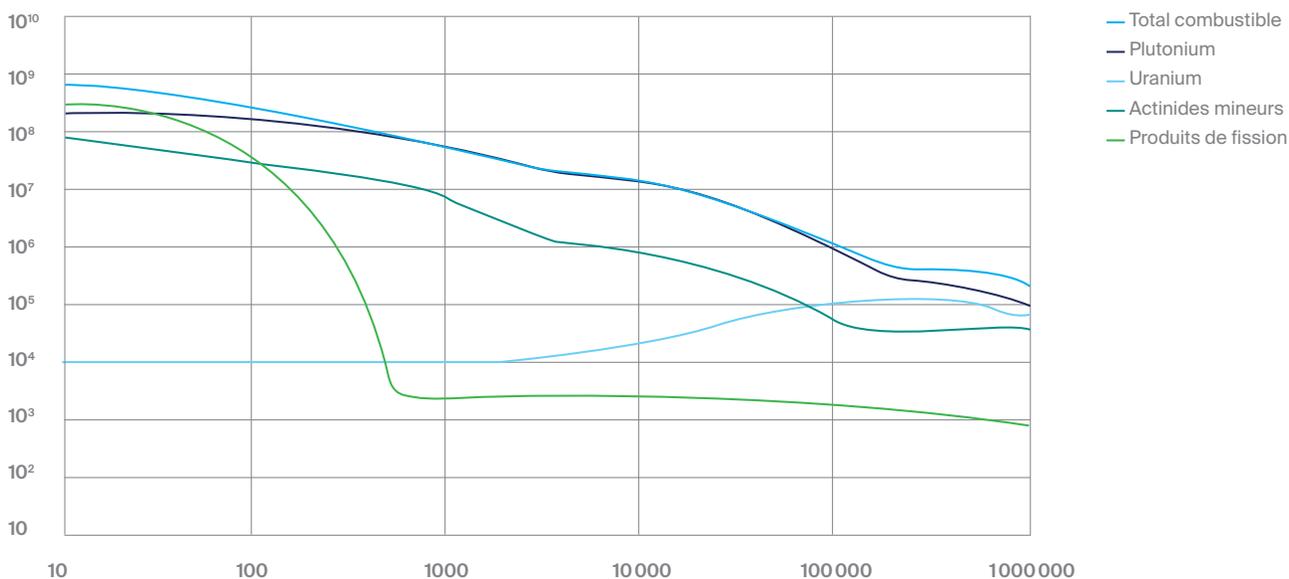




© DR

## Figure 1: Évolution de l'inventaire du combustible nucléaire utilisé (UOX, 45GWj/t)

Source : ST5 Sfen



↑ Inventaire radiotoxique (Sv/TWh<sub>0</sub>) ingestion, CIPR 72  
→ Temps (années)

ici s'entend comme le détriment radiologique (exprimé en Sv) qui serait subi par une population qui ingérerait le contenu des déchets sans prendre aucunement en compte les différentes barrières, naturelles ou ouvragées, interposées entre le déchet et la biosphère.

On « cible » généralement dans cette approche la diminution de la radiotoxicité résiduelle « à long terme », c'est-à-dire dans la période de mille à un million d'années après déchargement du combustible utilisé (avant 1000 ans, le confinement est garanti par les mesures prises durant le stockage ; après 1 000 000 d'années, la radiotoxicité résiduelle est devenue très faible).

Une analyse de l'évolution de la radiotoxicité du combustible utilisé après déchargement du réacteur fait apparaître que ce sont les éléments transuraniens (plutonium en premier lieu, puis autres actinides mineurs comme neptunium, américium et curium) qui sont, et de très loin, les principaux contributeurs à la radiotoxicité à long terme. La contribution

des produits de fission, majoritaire dans les premières années qui suivent le déchargement, s'efface ensuite de façon assez brutale en raison de la plus courte période radioactive de la plupart d'entre eux (inférieure à quelques dizaines d'années pour l'essentiel des produits de fission, contre jusqu'à plusieurs millénaires pour les transuraniens et leurs descendants).

Le recyclage du plutonium évite sa présence dans les déchets. Restent les actinides mineurs dont l'importance relative dans la radiotoxicité des déchets est due dans un ordre décroissant à l'américium, au curium, et enfin au neptunium.

### Réduire l'impact radiologique d'un stockage géologique

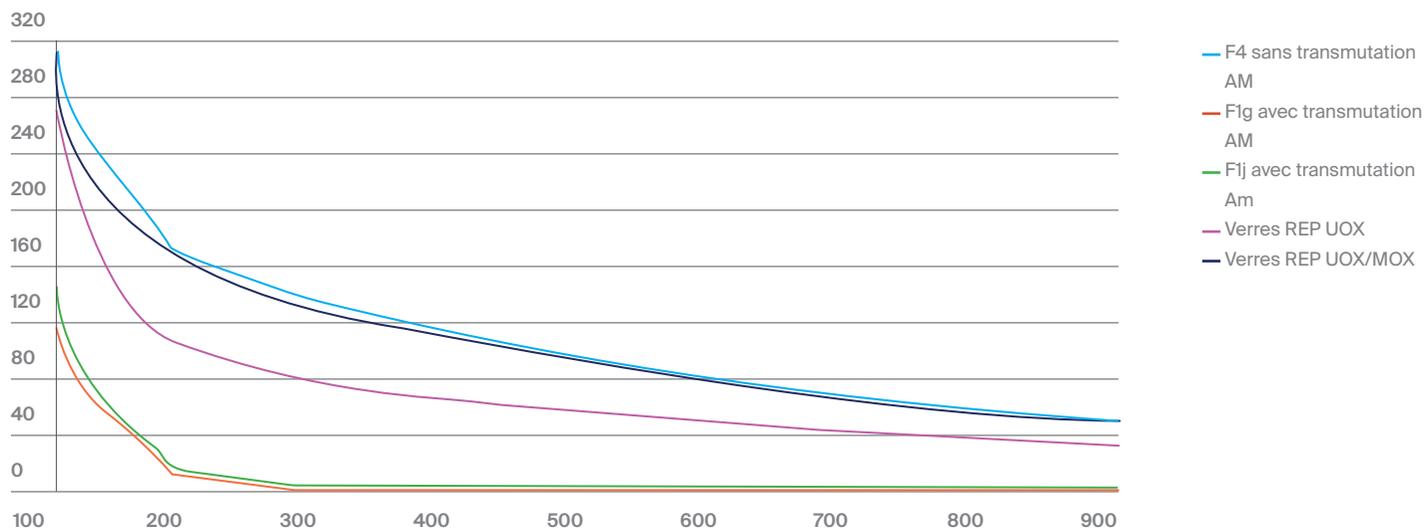
Il s'agit cette fois d'un critère attaché à un mode de gestion particulier, et non plus d'un critère « intrinsèque ». Les propriétés de migration des radionucléides dépendent en outre des caractéristiques du concept de stockage retenu, et de celles du

milieu géologique hôte, chaque situation constitue un cas d'espèce. Ainsi, pour un stockage en couche argileuse tel qu'envisagé par le projet Cigéo, les actinides mineurs sont quasiment immobiles même après dissolution de leur matrice de verre. Dans les conditions chimiques qui prévalent dans ces eaux de sous-sol, ils précipitent et ne sont ainsi que très peu solubles et donc très peu mobiles. Cela nourrit d'ailleurs un questionnement sur la pertinence du critère de radiotoxicité évoqué plus haut. Si les actinides ne sont pas mobiles en stockage, quel intérêt à chercher à les éliminer des déchets ultimes ? C'est le sens de l'avis rendu par le Collège de l'ASN (et qu'appuie l'IRSN), concluant au peu d'intérêt d'une stratégie de transmutation lourde, et *in fine* peu utile, dans le contexte d'un stockage géologique dans l'argile.

Ce sont certains éléments (produits de fission ou d'activation à vie longue) peu abondants, bien moins radiotoxiques mais toutes proportions gardées plus « mobiles », qui vont

## Figure 2: Évolution de la puissance calorifique des colis de verre après production pour diverses options de transmutation

Source: ST5 Sfen



↑ W/colis  
→ Temps (années)

contribuer de façon prépondérante à la dose estimée à la sortie du stockage, parce qu'ils sont plus solubles et aussi moins bien piégés dans l'argile: iode 129, sélénium 79, chlore 36... Aussi, certains ont avancé l'idée d'une transmutation de tels éléments mais celle-ci apparaît aujourd'hui d'un intérêt potentiel très limité, car les doses estimées à l'exutoire en l'absence de transmutation restent plusieurs ordres de grandeur en deçà de la radioactivité naturelle.

### Diminuer la chaleur résiduelle des déchets en situation de stockage

Cet objectif vise à simplifier la mise en œuvre d'un stockage géologique en retirant des déchets les principaux contributeurs à la puissance calorifique qu'ils dégagent. L'extension spatiale d'un stockage est étroitement liée à la charge thermique des déchets. Celle-ci est, près d'un siècle après le déchargement des combustibles usés, (un ordre de grandeur envisagé pour la durée d'entreposage des déchets

**Ce sont les éléments transuraniens (plutonium en premier lieu, puis autres actinides mineurs comme neptunium, américium et curium) qui sont et de très loin les principaux contributeurs à la radiotoxicité à long terme**

vitrifiés en puits de décroissance préalable à la mise au stockage) essentiellement le fait de la radioactivité de l'américium 241. On estime que retirer l'américium des déchets ultimes permettrait des gains significatifs sur la compacité du stockage, et cela d'autant plus que la durée de la phase d'entreposage préalable sera longue (permettant la décroissance effective des produits de fission); avec un concept tel que Cigéo, l'emprise au sol des alvéoles de stockage des déchets vitrifiés serait fortement diminuée.

En somme, il semble aujourd'hui admis que si l'on envisage une stratégie de transmutation, la cible prioritaire est constituée par les actinides mineurs, et, parmi ces derniers, en premier lieu par l'américium en raison de sa contribution séculaire essentielle à la charge thermique des déchets. Il est important de noter qu'une telle stratégie de transmutation ne prend son sens que si le plutonium a préalablement été retiré des déchets finaux.

**Dans tous les cas, du fait de la présence des produits de fission et d'activation à vie longue dans les déchets, le stockage géologique profond des déchets reste une nécessité**

**Pour les actinides mineurs comme pour le plutonium, c'est une irradiation sous flux de neutrons rapides qui offre les meilleures possibilités de fission**



Dans tous les cas, du fait de la présence des produits de fission et d'activation à vie longue dans les déchets, le stockage géologique profond des déchets reste une nécessité. Ainsi, toute opération de transmutation ne serait être une alternative au stockage en couche géologique. Sans compter que les colis de déchets vitrifiés destinés à être stockés dans l'installation de stockage en profondeur Cigéo, d'ores et déjà produits ne pourraient faire l'objet d'opérations de transmutation.

### **Transmuter les actinides mineurs**

#### **Séparer les actinides mineurs des produits de fission**

C'est la première étape de toute stratégie de gestion différenciée. C'est là un domaine dans lequel des résultats importants ont été obtenus au cours des 20 dernières années; le CEA, comme d'autres équipes à l'international, a pu mettre au point des procédés de séparation des actinides mineurs, recherches rapportées dans les dossiers remis au gouvernement en 2012 puis en 2015.

Cet ensemble de procédés permettant de séparer le neptunium, l'américium, le curium après les opérations d'extraction de l'uranium et du plutonium des combustibles usés, comme mises en œuvre aujourd'hui en France, a été validé en laboratoire sur des échantillons réels de combustible usé (à l'échelle du dix-millième par rapport à une hypothétique échelle industrielle), ce qui augure favorablement des possibilités de déploiement industriel.

#### **L'intérêt des neutrons rapides**

La transmutation des actinides mineurs nécessite leur fission, car des réactions nucléaires de capture ne pourraient conduire qu'à d'autres radionucléides plus lourds rejoignant des chaînes de décroissance au bilan tout aussi radiotoxique à long terme. Pour les actinides mineurs comme pour le plutonium, c'est une irradiation sous flux de neutrons rapides qui offre les meilleures possibilités de fission.

La proportion de fissions consécutive à une absorption de neutrons est toujours plus élevée avec des neutrons rapides. Même si pour  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  (les principaux radionucléides d'intérêt), elle demeure très faible (les captures restent prépondérantes devant les fissions). Pour aboutir *in fine* à la fission, il s'agit d'une opération longue, la fission n'intervenant pour l'essentiel qu'au terme d'une ou, le plus souvent, de plusieurs transformations préalables (captures et décroissances radioactives).

Plusieurs options technologiques ont été étudiées: le « recyclage homogène » (voir option 1 ci-après) qui consiste à diluer uniformément les actinides mineurs dans le combustible des réacteurs à neutrons rapides, lesquels sont « multirecyclés » (voir option 1 ci-après); le « recyclage hétérogène » (voir option 2 ci-après), qui consiste à concevoir des assemblages spécifiques, en nombre limité mais plus fortement chargés en actinides mineurs. Plusieurs options ont été étudiées:



Réacteur Superphénix  
à Creys-Malville.



actinides mineurs dispersés dans une matrice inerte neutroniquement en visant une transmutation « en une seule passe » (ou *once through*) ou bien dans de l'uranium appauvri avec une stratégie de multirecyclage (concept dit des Couvertures chargées en actinides mineurs); la transmutation « en strate dédiée » (ou « double strate », voir option 3 ci-après), qui consiste à utiliser des réacteurs spécifiquement conçus et optimisés pour la transmutation.

#### **La mise en œuvre dans les réacteurs à neutrons rapides à combustibles solides (option 1)**

Elle a été étudiée pour des réacteurs refroidis au sodium et à combustible oxyde, et a fait l'objet de plusieurs expériences notamment dans le réacteur Phénix.

La transmutation en réacteur à neutrons rapides est techniquement envisageable, l'obtention de performances intéressantes apparaissant subordonnée à un recyclage récurrent en réacteur (« multirecyclage »),

qu'il s'agisse des modes homogène ou hétérogène; l'option *once through* apparaît difficilement compatible avec l'obtention de taux de fission élevés à cause des limites thermomécaniques des cibles sous irradiation.

→ La présence d'actinides mineurs dans le combustible apporte des nuisances importantes pour la manutention des objets (thermique, radioactivité, émission de neutrons notamment).

→ La présence d'actinides mineurs dans le combustible conduit à détériorer certains paramètres importants pour la sûreté des cœurs; cela conduit à limiter la teneur en actinides mineurs dans le combustible « nourricier » placé dans le cœur du réacteur. Pour un recyclage en mode homogène, il convient de limiter à quelques pourcents la teneur en actinides mineurs, ce qui conduit à envisager, pour transmuter les actinides mineurs produits par l'ensemble d'un parc électronucléaire, de devoir recourir à un nombre élevé de

RNR (plus de la moitié de la puissance installée du parc).

→ Dans le cas d'un recyclage en mode hétérogène, les objets concentrés en actinides mineurs (de l'ordre de 10% ou plus) doivent être placés en périphérie du cœur pour ces raisons de sûreté; mais les flux neutroniques plus faibles conduisent alors à limiter sensiblement les performances de transmutation.

#### **La mise en œuvre dans les réacteurs à neutrons rapides à combustibles liquides (option 2)**

Aujourd'hui émergent de nouveaux concepts de réacteurs à neutrons rapides, tels les réacteurs à combustibles liquides (sels fondus) qui permettent d'envisager de façon radicalement différente les conditions de mise en œuvre de la transmutation, notamment car ils éviteraient la manutention récurrente des combustibles solides. On entend par réacteur à sels fondus une technologie dans laquelle le

## Dans un réacteur à sels fondus idéal, les actinides mineurs seraient introduits et incinérés progressivement dans le cœur du réacteur sans avoir à les reprendre ou à les manipuler

**Les réacteurs à neutrons rapides présentent d'indéniables potentialités de principe pour la transmutation des actinides mineurs. [Mais] un parc conséquent de réacteurs à neutrons rapides n'est pas envisageable avant la seconde moitié du siècle**

combustible est dissous dans le fluide caloporteur constitué d'un sel liquide. Cette filière, malgré le maigre retour d'expérience à l'international, présente des atouts qui expliquent la multiplication des initiatives pour à terme déployer ces réacteurs à l'échelle industrielle. Dans un réacteur à sels fondus idéal, les actinides mineurs seraient introduits et incinérés progressivement dans le cœur du réacteur sans avoir à les reprendre ou à les manipuler.

### La transmutation en réacteur (et strate) dédié(e) (option 3)

L'une des pistes pour la transmutation est d'y dédier un système optimal, au prix d'une efficacité moindre pour la production électrique, que l'on appelle les réacteurs pilotés par accélérateur (ADS). L'option «transmutation en strate dédiée» n'a fait l'objet que d'expériences d'irradiation spécifique très limitées; les études en ce domaine ont plutôt consisté à concevoir et développer des machines appropriées. C'est le programme

européen relatif au projet MYRRHA en Belgique qui paraît actuellement le plus avancé. Il s'agit de mettre au point un «ADS» (système à fission sous flux rapide, doté d'un cœur sous-critique auquel on adjoint une source de neutrons de spallation, alimentée par un accélérateur de protons) qui présente des caractéristiques de principe favorables à une irradiation massive d'actinides mineurs. Mais on est encore loin des premières expériences de transmutation avec de tels concepts: il convient de mettre au point le complexe système ADS (notamment le couplage spallation-cœur sous-critique) avant de pouvoir envisager des expériences pilotes avec des actinides mineurs (qui ne paraissent ainsi aujourd'hui pas accessibles avant plusieurs décennies). Parallèlement, d'autres options d'accélérateurs sont aujourd'hui considérées: accélérateur cyclotron (promu par la startup Transmutex), ou même l'utilisation de lasers (dans un concept imaginé par le Pr Mourou). Le cœur sous-critique reste

lui de même nature dans l'ensemble de ces projets.

### Conclusions

→ La transmutation reste une option intéressante pour l'avenir du nucléaire de fission, car elle permettrait de rendre le stockage géologique plus compact. Concernant les questions que soulève la nocivité à long terme des déchets nucléaires, il faut nuancer le propos par le fait que d'autres solutions existent pour se prémunir de ces dangers potentiels à long terme, et notamment le confinement de très longue durée apporté par un stockage géologique en couche argileuse, comme prévu en France. La transmutation des éléments radioactifs à vie longue serait ainsi à considérer plutôt comme une ambition de progrès futurs, que comme un besoin actuel pour garantir la sûreté des options de gestion des déchets nucléaires, la transmutation des actinides mineurs ne supprimant pas la nécessité de disposer d'un stockage géologique

pour pouvoir gérer l'ensemble des déchets nucléaires.

→ Une opération de transmutation des actinides mineurs n'aurait de sens que si l'on a par ailleurs assuré une gestion appropriée du plutonium : celui-ci est en effet, et de très loin, le principal contributeur à la radiotoxicité à long terme des combustibles nucléaires usés (les actinides mineurs venant en second lieu, et les produits de fission très loin après).

→ Séparer les actinides mineurs des produits de fission, en complément de la récupération de l'uranium et du plutonium aujourd'hui opérée en France, apparaît possible par l'implantation d'étapes de procédés complémentaires.

→ Les réacteurs à neutrons rapides présentent d'indéniables potentialités de principe pour la transmutation des actinides mineurs. Les concepts à combustibles solides développés par les recherches menées présentent toutefois des difficultés de principe qui ont fait l'objet, en France et

à l'international au cours des 25 dernières années, d'importantes études et expérimentations pour en réduire la portée, mais sans effacer pour autant les limitations (sur le plan de leurs performances) et pénalités (dans leurs conditions de mise en œuvre).

→ Certains dispositifs encore plus innovants connaissent un regain d'intérêt : les systèmes sous-critiques pilotés par accélérateur (qui modifient la donne en matière de sûreté de fonctionnement) et les réacteurs à sels fondus (qui supprimeraient les opérations de manutention de combustibles solides, très délicates avec des combustibles porteurs d'actinides mineurs). Mais leur état de développement est moins avancé, et des challenges technologiques importants restent à surmonter.

→ Les perspectives de déploiement éventuel se sont aujourd'hui sensiblement éloignées par rapport à la vision qui pouvait prévaloir au lancement des recherches. Un parc conséquent de réacteurs à neutrons rapides n'est pas envisageable avant

la seconde moitié du siècle. Il apparaîtrait pour le moins prématuré de sélectionner à ce stade une voie privilégiée sur laquelle focaliser les efforts de développement. Il semble préférable, en inscrivant résolument les recherches en ce domaine dans le long terme, de chercher à faire évoluer les concepts ou même à en explorer de nouveaux, avec l'objectif de dépasser les limitations de principe des concepts actuels dans un contexte de large ouverture à la communauté académique, nationale et internationale. ●