
SOCIÉTÉ FRANÇAISE DE PHYSIQUE

Les déchets nucléaires

Un dossier scientifique

Éditeur : René TURLAY



7, Avenue du Hoggar, B.P. 112
Zone Industrielle de Courtabœuf
91944 Les Ulis cedex A, France

Errata - Les déchets nucléaires

Turlay Éd. (Les Éditions de Physique, Les Ulis, 1997)

Chapitre 1. Le dossier des déchets nucléaires

de Jean-Paul Schapira

Page 13. Figure 2.

L'encadré sur les déchets C (en bas, à droite) doit être lu comme suit :

Déchets C	
<u>Comb. irradié</u>	<u>21,5 t</u>
<u>Uranium</u>	<u>20,4 t</u>
<u>Plutonium</u>	<u>209 kg</u>
Np, Am, Cm	16 kg
PF total	745 kg
PF vie longue	50 kg

Page 14. Figure 3.

La légende doit être lue comme suit :

Figure 3. Contribution de l'inventaire initial d'un combustible irradié à 33 000 MWj/t au risque potentiel par ingestion ; doses exprimées en Sv/TWhé d'après la CIPR-68 (source : thèse de Stéphanie Sala, Université de Provence, le 26 juin 1995).

Page 15. Tableau II.

La ligne correspondant à la *Forme physique* doit être complétée (dernière colonne) :

Forme physique des boues de précipitation : Bitumes

La ligne correspondant aux *Volumes prévus à la conception* doit être lue avec les valeurs suivantes :

PF et actinides mineurs (1ère colonne) : 130

Boues de précipitation (dernière colonne) : 630

Page 20. Figure 4.

Dans l'encadré de l'URT, il faut lire 820 t.

Chapitre 7. Le rôle potentiel du cycle du combustible à base de thorium

de Jean-Paul Schapira

Page 157. Tableau I.

Sur la ligne correspondant à l'Inde, le nombre 319 présent en colonne RSE doit être lu en colonne RRA.

Remerciements

La Société Française de Physique remercie très sincèrement les auteurs qui ont accepté de participer à ce dossier. Ils l'ont fait avec une grande rigueur scientifique et beaucoup de générosité pour la communauté des physiciens français. À leurs noms, nous voudrions également ajouter ceux de Messieurs Henri Vialettes, Yves Roinel et Henri Mouney qui ont fait partie du même groupe de travail et ont participé à plusieurs conférences-débats. Durant l'été dernier, nous avons fait lire les textes accessibles à cette époque par six professeurs de physique de l'enseignement secondaire, Mesdames Jacqueline Chaussade, Annie Ringard et Florence Moreau, Messieurs Pierre Bouissou, Jean-Pierre Bidegaray et Jacques Bouloumié ainsi que Monsieur Jean-Claude Fiz, ingénieur : leurs commentaires nous ont été très précieux et nous en avons tenu compte dans la version qui vous est présentée.

Nous tenons à remercier particulièrement Monsieur René Turlay, organisateur des débats qui ont eu lieu partout en France, à l'initiative de nos sections locales, et se sont terminés par un atelier dans les locaux du Sénat à Paris. C'est également René Turlay qui a accepté la responsabilité de cette publication et mis tout en œuvre pour qu'elle représente l'état actuel de nos connaissances dans ce domaine et qu'elle soit accessible à un grand nombre de nos concitoyens. Il a été aidé dans la réalisation par Monsieur Touwfik Tabti qui a eu la difficile tâche d'assembler les manuscrits, de tout corriger et d'insister auprès de tous pour que l'ensemble soit terminé à temps.

Enfin toute notre reconnaissance va à Monsieur Hubert Curien qui a écrit la préface de ce livre. Nul n'est mieux placé que lui pour comprendre ce que signifie la réalisation d'un tel document, évaluer la qualité des éléments scientifiques apportés qui font appel à des connaissances pluridisciplinaires, et envisager l'importance de la réflexion de tous vis-à-vis des problèmes qui concernent, sans aucun doute, l'évolution de notre Société.

Marianne Lambert
Présidente de la S.F.P. de février 95 à 97

ISBN : 2-86883-301-2

Tous droits de traduction, d'adaptation et de reproduction par tous procédés, réservés pour tous pays. La loi du 11 mars 1957 n'autorisant, aux termes des alinéas 2 et 3 de l'article 41, d'une part, que les "copies ou reproductions strictement réservées à l'usage privé du copiste et non destinées à une utilisation collective", et d'autre part, que les analyses et les courtes citations dans un but d'exemple et d'illustration, "toute représentation intégrale, ou partielle, faite sans le consentement de l'auteur ou de ses ayants droit ou ayants cause est illicite" (alinéa 1er de l'article 40). Cette représentation ou reproduction, par quelque procédé que ce soit, constituerait donc une contrefaçon sanctionnée par les articles 425 et suivants du code pénal.

©Les Éditions de Physique 1997

Préface

Voici un dossier scientifique sur les déchets nucléaires. Il vous est présenté par la Société Française de Physique, une association plus que centenaire qui groupe librement et représente très authentiquement les physiciens de notre pays. Il est tout naturel qu'une telle société s'investisse dans l'étude de problèmes qui intéressent l'ensemble de nos concitoyens, bien au-delà des lieux où la science s'élabore et où elle est orchestrée par des technologies industrielles nouvelles. La science et les technologies, qui forment la base de notre confort, intellectuel et matériel, sont d'autant plus scrutées qu'elles sont toujours plus présentes autour de chacun de nous au quotidien.

Les scientifiques souffraient d'ailleurs naguère qu'on ne s'intéresse pas assez à eux. Ce n'est pas l'attention, même éventuellement critique, qu'on leur porte qui peut aujourd'hui les troubler. Mais c'est le fait que cet intérêt soit un peu trop souvent focalisé par une optique plus émotionnelle que rationnelle. Expliquer le plus clairement et le plus simplement possible ce qu'on sait, et sans oublier de mentionner ce qu'on ne sait pas encore : voilà le meilleur antidote à la montée de la méfiance et de la désaffection vis-à-vis de la science.

La production d'énergie par la mise en œuvre des réactions nucléaires est l'une des innovations les plus marquantes de notre siècle. Les chercheurs et les techniciens ont été très remarquablement prudents dans la conception, la réalisation et l'exploitation des établissements de production. La sûreté nucléaire a été suivie dans notre pays avec la plus grande attention. Quant au problème du traitement et du stockage des déchets, la solution n'est pas unique. Le principe général de précaution est pour l'instant appliqué, pour qu'un choix d'avenir puisse être fait, sans hâte pernicieuse, entre les diverses voies possibles.

Éviter les excès de la hâte ne signifie nullement se reposer sur un moratoire inconsidérément prolongé. Tel n'est d'ailleurs pas l'esprit dans lequel la loi en a disposé.

Les spécialistes, physiciens, chimistes, géologues, biologistes, travaillent le sujet avec le plus grand sérieux. Il est essentiel que l'opinion publique et les autorités politiques puissent se référer à des dossiers aussi indiscutables qu'accessibles, deux qualités non antagonistes.

J'ai personnellement participé pendant plusieurs années aux réflexions menées au niveau gouvernemental sur l'exploitation de l'énergie nucléaire. Je suis aussi un fervent promoteur de la diffusion de la connaissance scientifique et technique. C'est avec un sincère conviction que je recommande à tous nos concitoyens la lecture de ce remarquable dossier établi par la Société Française de Physique : il est sincère et parfaitement solide sans être péremptoire. Voilà le type de document qu'on aime avoir lu avant de parler.

Hubert CURIEN

Membre de l'Académie des Sciences
Membre de la Société Française de Physique

Avant-propos

La Société Française de Physique créée en 1873 se donnait pour objet le développement et le rayonnement de la physique. Elle a été longtemps un lieu d'échanges privilégiés où se retrouvaient les physiciens français. Ses premiers congrès étaient un véritable champ d'expériences. C'était en somme une « société savante », une société de savants.

Avec le temps, comme toute société savante, la SFP a pu devenir synonyme de lieu de rencontre de très honorables physiciens supposés regarder le monde extérieur du haut de leurs connaissances.

Tel fut le reproche qui a été soulevé au séminaire de réflexion de la SFP à Orléans en décembre 1991. Au terme d'une discussion animée, il a été constaté que si la SFP tenait remarquablement son rôle sur l'enseignement de la physique et sur la vie professionnelle de jeunes physiciens, elle faisait peu ou rien sur les grandes questions qui concernaient le citoyen. L'information du public avaient déjà été abordée quand on avait conseillé aux scientifiques d'expliquer un peu mieux le but de leur recherche, les moyens financiers utilisés, pour les rapprocher ainsi de leurs concitoyens contribuables.

Il a donc été décidé de choisir pour en débattre des thèmes sur lesquels les scientifiques apportent au citoyen une information honnête, claire, crédible qui lui serait accessible.

Le premier thème choisi a été les déchets nucléaires. Certes preuve de bonne volonté de la part des scientifiques mais aussi d'innocence. La question des déchets nucléaires est une question qui concerne tous les français et qui génère chez tous angoisse et peur. C'est une constatation que nous avons tous pu faire quand ce sujet est abordé dans le milieu du travail, dans la famille ou dans n'importe quelle réunion sociale.

La peur est souvent entretenue par l'ignorance et c'est particulièrement vrai pour ce sujet. Cela a été notre première constatation à la SFP et nous avons décidé de travailler en 3 étapes :

- le débat devait être national et nous devons informer les 18 sections locales de la SFP réparties sur tout le territoire. Ce fut le noyau du groupe de travail créé pour ce débat ;
- nous avons rapidement constaté notre propre ignorance sur ce sujet et nous avons voulu commencer par travailler sérieusement. Nous avons très rapidement pris contact avec les meilleurs spécialistes sur différents domaines liés aux déchets nucléaires et ils ont aussitôt accepté de nous aider. C'est là la force de la SFP ;
- ce n'est qu'après cette préparation que nous avons eu des débats publics dans toutes les régions françaises et dont les orateurs étaient en majorité les experts du groupe de travail, des ingénieurs de l'EDF ou de l'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (ANDRA).

VI

Ces débats publics nous ont convaincus de la nécessité d'aller plus profond, d'expliquer plus clairement et calmement les points scientifiques ou techniques. Car nous avons souvent entendu des réactions généreuses mais dont les arguments relevaient de la foi et non des faits.

Il faut avoir la modestie de dire que pour comprendre le problème des déchets nucléaires, il faut un minimum de patience et de courage pour acquérir les notions de physique, de chimie, de géologie, de médecine nécessaires pour aborder cette question.

Mais les présentations orales ne suffisaient plus et après un atelier fait à Paris en janvier 1995 qui a enthousiasmé beaucoup de physiciens, la SFP nous a demandé d'écrire ce que nous avons amassé sur le sujet pour en faire profiter le plus de monde possible.

C'est la raison d'être de ce dossier scientifique sur les déchets nucléaires et les orateurs de cet atelier ont très généreusement accepté d'écrire leur contribution pour la SFP.

Ce dossier comprend quatre parties - introduction au problème des déchets nucléaires, séparation et transmutation, aspect politique et technique du stockage, et normes de radioprotection et effets biologiques - que nous avons voulu telles pour l'information progressive du lecteur.

Il faut « situer » le problème. Pourquoi ces déchets, d'où viennent-ils, leur volume, leur toxicité, leur durée de vie. Pourquoi sont-ils si angoissants, eux qui meurent malgré tout après quelques centaines de millions d'années, alors que comme le signale un des auteurs de ce livre les déchets normaux ne meurent jamais ! Cette présentation du problème a été écrite par Monsieur Jean-Paul Schapira. La lecture en est très agréable et « enseigne » le lecteur. Bien sûr la physique nucléaire pour réacteurs écrite par Monsieur Hervé Nifenecker est d'une lecture plus difficile, mais comment comprendre et parler avec compétence du problème des déchets nucléaires si on n'aborde pas la physique du neutron ? Il fallait aussi décrire simplement un réacteur nucléaire, c'est ce que Monsieur Massimo Salvatores a accepté de faire tout en soulignant que l'on peut trouver une information plus détaillée sur ce sujet.

Donc les déchets nucléaires produits viennent essentiellement du parc des centrales nucléaires françaises. Si ces déchets mourraient vite, cela ne créerait pas le problème du Nucléaire. Pour ceux dont la période radioactive est de 30 ans (une génération), il existe des solutions de stockage en surface, lieux particulièrement surveillés, qui peuvent résoudre le problème. Ce sont les déchets à vie longue (plusieurs centaines de millions d'années) qui nous posent le problème de notre responsabilité pour les générations futures et nous impose de trouver une solution qui ne mette en rien en danger l'environnement de l'être humain.

En France, on a décidé de retraiter les déchets issus des réacteurs c'est-à-dire de séparer les différents corps produits par la fission. C'est ce que nous explique Monsieur Bernard Boullis dans le chapitre procédés de séparation chimiques. De telles usines de séparation ont été créées dans le monde et c'est La Hague qui en France est la plus importante. Une autre façon de diminuer la toxicité des produits radioactifs est de les « casser » en produits à vie plus courte, voire en produits

stables. C'est la transmutation. Messieurs Massimo Salvatores et Alain Zaetta nous décrivent les recherches et développements entrepris sur ce sujet. Un type de solution est le surrégénérateur Super Phénix. Un programme scientifique se développe fortement sur la transmutation en France. Très récemment le Professeur Carlo Rubbia du CERN (laboratoire européen d'étude et recherche nucléaire) a proposé que l'énergie nucléaire soit produite par des systèmes hybrides, c'est-à-dire un cœur nucléaire à base de thorium bombardé par un accélérateur de protons qui produiraient les neutrons nécessaires à la fission. Cet accélérateur est tout de suite devenu dans les médias un symbole de « sécurité » ! C'est vrai qu'un accélérateur de particules peut s'arrêter en quelques secondes (millisecondes !) et tout le système peut ainsi s'arrêter de fonctionner, ce qui n'est pas le cas d'un réacteur classique à uranium comme nous l'avons vu à Tchernobyl. Bien que très séduisants ces systèmes hybrides doivent encore être étudiés pour en arriver à une solution efficace, rentable et parfaitement sûre. Messieurs Hervé Nifenecker et Jean-Paul Schapira présentent les systèmes hybrides et le cycle du thorium. Tout cela est en début d'expérimentation.

Quelles que soient les solutions de production d'énergie nucléaire, l'existence de réacteurs pose le problème du stockage des déchets radioactifs. Par une loi de décembre 1991, le Parlement français a demandé à la communauté scientifique d'étudier ces lieux de stockage. La solution devra être proposée au Parlement en 2006. Nous revenons donc devant le citoyen.

Monsieur Maurice Allègre nous présente très clairement les conséquences de cette loi de 1991 et toutes les recherches qui sont en cours. Trois sites de laboratoires souterrains ont été sélectionnés en France pour y mener toutes les études sur le passage dans la biosphère des déchets radioactifs stockés. Ces sites n'auront aucun produit radioactif déposé avant 2006.

Le confinement des produits radioactifs demande aussi une technologie poussée pour « emballer » les déchets et les isoler, par plusieurs barrières, du contact avec l'environnement. Monsieur Denis Alexandre nous décrit très simplement les techniques actuelles.

Mais où mettre ces produits emballés ? Le Professeur Ghislain de Marsilly expose par un véritable cours de géologie toutes les possibilités. Il s'agit là de choisir des lieux géologiques stables sur plusieurs centaines de milliers d'années, temps qui pour le géologue est encore un temps court. De tels lieux existent sur la planète mais la question de la protection contre l'intrusion humaine reste peut-être le point le plus interrogatif du stockage en général.

Enfin quel est le danger des déchets radioactifs ? Monsieur Henri Métivier nous brosse un tableau très complet de la manière dont s'établissent les doses de rayonnement admises pour l'individu. Ces normes établies par des comités internationaux sont sérieusement discutées puisqu'elles gèrent toute la radioprotection de la planète. Leur connaissance par chacun d'entre nous en fait le départ de toutes discussions efficaces et sérieuses sur les déchets nucléaires. Ces doses sont faibles et n'ont rien à voir quant à leurs effets avec les fortes irradiations dues aux explosions nucléaires ou aux accidents des réacteurs. En connaître les

VIII

effets demande des études longues. Le Professeur Maurice Tubiana nous présente des résultats récents et les hypothèses les plus rigoureuses sur ce sujet.

Vous constaterez qu'il n'y a pas dans tous les sujets abordés dans ce dossier de proposition de « solution pour les déchets nucléaires ». Proposer aujourd'hui la solution au problème des déchets nucléaires serait un peu caricatural et une agression contre tous les chercheurs, ingénieurs, médecins qui se penchent sur ce problème avec toute leur conscience, leurs connaissances et leur compétence : il faut encore chercher et réfléchir.

Si nous voulons comprendre les évolutions des recherches pour trouver une solution pour 2006, il convient que nous puissions réunir au mieux les travaux entrepris, les hésitations, les échecs et sans aucun doute les progrès pour arriver à une solution sage et efficace.

Le dossier scientifique sur les déchets nucléaires de la Société Française de Physique a l'ambition de vous faire faire un bout de chemin dans ce sens.

René TURLAY

Président de la SFP de 1991 à 1992

SOMMAIRE

INTRODUCTION AU PROBLÈME DES DÉCHETS NUCLÉAIRES

1. *Le dossier des déchets nucléaires* 3
Jean-Paul SCHAPIRA
 2. *Notions élémentaires sur les réacteurs nucléaires* 25
Massimo SALVATORE
 3. *Éléments de physique nucléaire pour réacteurs* 37
Hervé NIFENECKER
-

SÉPARATION ET TRANSMUTATION

4. *Retraitement et séparation des radionucléides à vie longue* 69
Bernard BOULLIS
 5. *Transmutation : physique et stratégies* 93
Massimo SALVATORE et Alain ZAETTA
 6. *Les systèmes hybrides de production d'énergie* 123
Hervé NIFENECKER
 7. *Le rôle potentiel du cycle du combustible à base de thorium* 155
Jean-Paul SCHAPIRA
-

ASPECTS POLITIQUE ET TECHNIQUE DU STOCKAGE

8. *La gestion des déchets radioactifs* 171
Maurice ALLÈGRE
 9. *Conditionnement des déchets nucléaires* 181
Denis ALEXANDRE
 10. *Enfouissement des déchets nucléaires en formation géologique* 203
Ghislain de MARSILY
-

NORMES DE RADIOPROTECTION ET EFFETS BIOLOGIQUES

11. *Principes et normes de radioprotection* 249
Henri MÉTIVIER
 12. *Effets cancérigènes des faibles doses de rayonnements ionisants* 273
Maurice TUBIANA
-

TABLE DES MATIÈRES 297

Annexe. Tableau périodique des éléments simples 306

Introduction
au problème des
déchets nucléaires

1 Le dossier des déchets nucléaires

Jean-Paul Schapira^(★)

1. Introduction

Un certain nombre d'activités industrielles, médicales ou de recherche portent sur des matières contenant des corps radioactifs ou mettent en œuvre 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 œuvre de l'énergie de fission (ou de fusion) nucléaire pour la production d'énergie ou d'armes nucléaires.

Cette définition renvoie à deux idées, celle de *nocivité* qui nécessite un contrôle, et celle de *absence d'usage*. Aussi, la notion de déchet est-elle essentiellement contingente. En effet, la nocivité est évidente dès lors que l'on a

(★) Institut de physique nucléaire, 91406 Orsay Cedex.

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 États-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 des exploitants de l'énergie nucléaire, ainsi que des pouvoirs publics, et au-delà, de la possibilité de poursuivre, voire d'entreprendre un programme électronucléaire. La mise en œuvre 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 œuvre d'une telle politique, et définit à cette occasion trois axes (la séparation et la transmutation, le stockage profond, le conditionnement et l'entreposage) autour desquels les recherches 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 de 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, et qui laissent aujourd'hui quelques situations peu satisfaisantes. Citons la contamination de l'environnement par des rejets

radioactifs et par des déchets de toute sorte, en provenance de programmes nucléaires militaires qui se mirent en place à l'époque de l'après-guerre (essentiellement aux États-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 à 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 dont le remplissage a débuté au début des années 1960, à l'occasion du rapport de la Commission Turpin (*Le Monde*, 18 juillet 1996) ;

- 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 permettent 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 de déchets nucléaires (environ 80 fois plus faibles que celles des déchets classés toxiques) occupent des volumes et des emprises au sol limités, même si certains déchets 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 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 1920, 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 États.

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, 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 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, sur 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 œuvre 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 matières nucléaires et des déchets dans le cycle du combustible

2.1. Généralités et risques 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 œuvre de toute une série d'opérations industrielles en *amont* et en *aval* du réacteur. La mise en œuvre 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. 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 MW⁽¹⁾ du parc EDF qui fonctionnerait avec un facteur de charge de 70 %, produisant donc 5,52 milliard de kWhé (ou 5,52 TWhé) par an.*

La figure 1 résume la succession des opérations de la mine au stockage et indique les flux de déchets et de 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.

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.

2.2. Déchets au niveau de l'extraction de l'uranium

La première source de production de déchets dans le cycle du combustible est l'extraction de l'uranium à partir de minerais dont les teneurs les plus courantes se situent autour de 0,1 % à 0,5 %. Après extraction chimique, selon un procédé généralement fondé sur une solubilisation sélective de l'uranium dans l'acide sulfurique, la totalité de l'uranium non extrait (quelques %) et de ses descendants se retrouvent sous forme de résidus insolubles (des résidus insolubles proviennent également du traitement des effluents liquides).

Ces déchets sont caractérisés par une durée de vie très longue, gouvernée par la période de 77 000 ans du thorium 230, par de grandes quantités (environ 50 millions de tonnes en France) et par une très faible activité, de l'ordre de quelques mCi d'émetteurs α par tonne (ou quelques $3,7 \times 10^7$ Bq/t), selon que l'on compte ou non les descendants du radon (^{222}Rn).

(1) Pour mégawatt électrique.

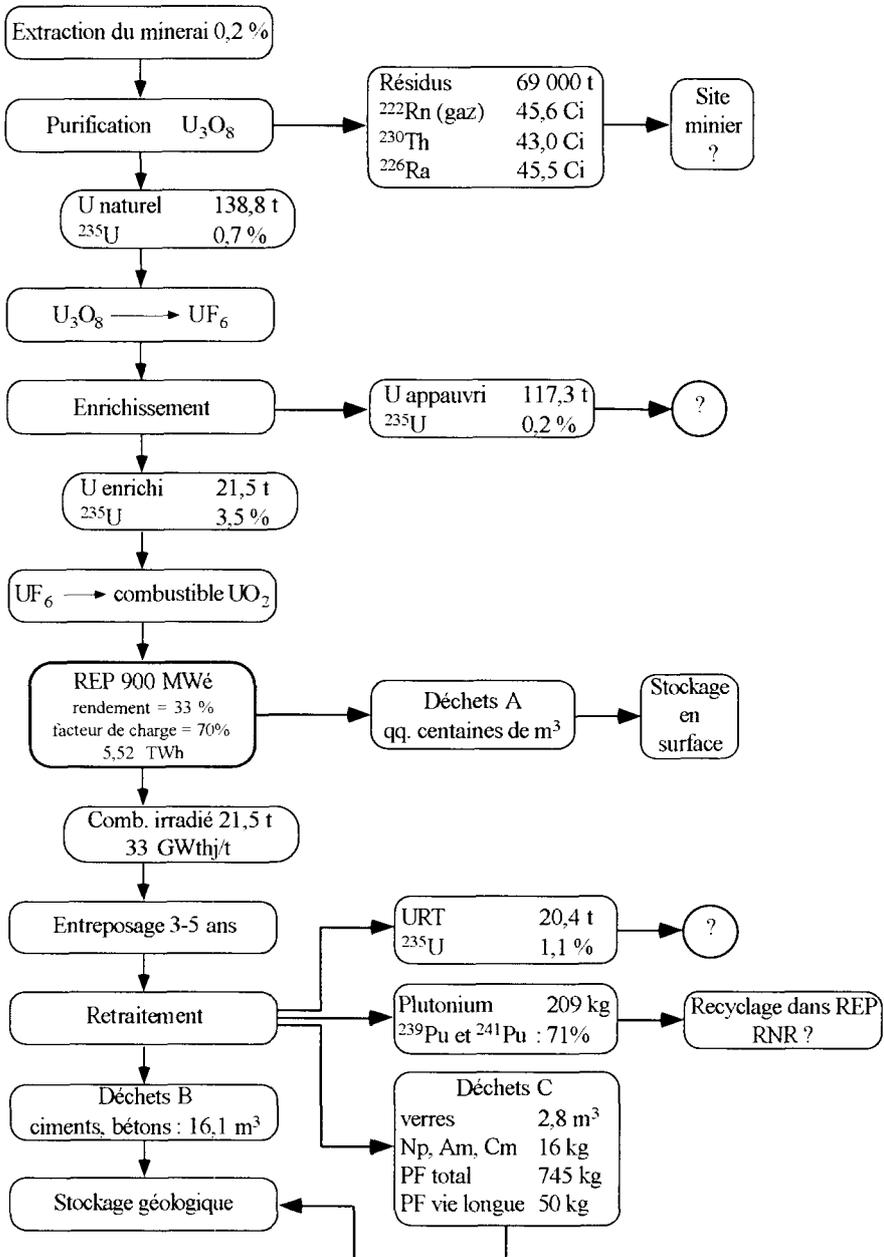


Figure 1 : Les diverses opérations du cycle fermé c'est-à-dire avec retraitement et recyclage des combustibles usés à La Hague (1995, les pertes d'uranium et de plutonium sont de 0,12 % dans tous les déchets).

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 travailleurs et au public). Il existe également un risque dû au transport du radium par l'eau. Dans la nouvelle classification proposée par la Direction de la Sûreté des installations nucléaires, la DSIN, 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 et présence de radon) consiste essentiellement à surveiller, à 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 la limite de 1 mSv par an recommandée par la CIPR-60 pour le public. Une telle valeur est à comparer aux impacts à long terme, apparemment plus faibles, des autres activités du cycle nucléaire sur le public.

2.3. Matières nucléaires et déchets au niveau de l'enrichissement isotopique de l'uranium

Le fonctionnement des réacteurs à eau nécessite un combustible d'oxyde d'uranium, enrichi en son isotope ^{235}U , 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 GWj/t. C'est le procédé par diffusion gazeuse qui reste de loin le procédé d'enrichissement le plus répandu au plan mondial.

Du point de vue des déchets, une usine d'enrichissement peut rejeter de faibles quantités de produits chimiques intervenant dans le procédé. À 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 (environ 85 %, selon la teneur isotopique en ^{235}U de l'uranium appauvri qui est de l'ordre de 0,25 %). Cet uranium dit de *rejet* peut être réutilisé comme support dans des combustibles chargés en plutonium (c'est le cas des combustibles mixtes d'oxyde d'uranium et d'oxyde de plutonium, appelés MOX) ou comme matière fertile placée dans les couvertures des surrégénérateurs. Mais aujourd'hui, ces usages ne concernent que quelques pour cent de la totalité de l'uranium de rejet, et cette matière nucléaire inutilisable est de fait considérée à terme comme un 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.

2.4. 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 de la figure 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 GWj/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, quelques centaines de mètres cubes 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.). Ces déchets, dits de catégorie A sont destinés, en France, au centre de stockage en surface de Soulaïnes 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 de l'uranium, les produits de fission, notés PF. 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, notés PFVM, tels que le ^{137}Cs et le ^{90}Sr d'environ 30 ans de période, et enfin des PF à vie très longue, notés PFVL, qui peuvent avoir un impact radiologique dans les stockages de déchets. Leurs caractéristiques sont données, par isotope, dans le tableau I ;
- 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 de production de deux neutrons à partir d'un neutron, réaction (n, 2n), suivies le cas échéant par des désintégrations β^- . Ils sont classés en deux catégories :
 - les actinides *majeurs* : uranium et plutonium ;
 - les actinides *mineurs* : neptunium, américium et curium.

Cette distinction 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. Évidemment, comme ceci a été souligné plus haut, l'absence de valorisation économique des actinides majeurs peut conduire à les considérer comme des déchets, ou du moins comme des matières dont le statut est en attente de définition (voir section 3.2.).

Tableau 1 : Inventaire des matières au chargement et au déchargement du réacteur. Cas d'un REP 900 ayant un taux de combustion de 33 GWj/t et ayant un combustible enrichi à 3,5 % (source : thèse de Stéphanie Sala, université de Provence, le 26 juin 1995).

Radionucléides	Période (année)	Chargement		Déchargement ^a	
		(kg/TWhé)	(kg/an) ^b	(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	3 757	20 734	3 661	20 204
<i>Total uranium :</i>		3 893	<u>21 485</u>	3 717	<u>20 513</u>
Plutonium					
²³⁸ Pu	87,7			0,6	3,3
²³⁹ Pu	24 119			22,3	123,1
²⁴⁰ Pu	6 569			8,6	47,5
²⁴¹ Pu	14,4			4,6	25,4
²⁴² Pu	3,7 × 10 ⁵			1,9	10,5
<i>Total plutonium :</i>				38,0	<u>209,8</u>
Actinides mineurs					
²³⁷ Np	2,14 × 10 ⁵			1,6	8,8
²⁴¹ Am	432,2			0,8	4,4
²⁴³ Am	7 380			0,4	2,2
²⁴³ Cm	28,5			≈0	≈0
²⁴⁴ Cm	18,1			0,09	0,5
²⁴⁵ Cm	8 500			0,01	0,06
<i>Total actinides mineurs :</i>				2,9	<u>16,0</u>
PFVM^c					
⁹⁰ Sr	28			1,9	10,5
¹³⁷ Cs	30			4,4	24,3
<i>Total PFVM :</i>				6,3	<u>34,8</u>
PFVL^d					
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
<i>Total PFVL :</i>				9,1	<u>50,1</u>
<i>Total PF^e</i>				135	<u>745</u>

a L'inventaire est celui effectué 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 (de l'ordre de 30 ans) à 3 ans de refroidissement.

d PFVL : principaux produits de fission à vie longue (supérieure à 30 ans) à 3 ans de refroidissement.

e On notera que la grande majorité des PF décroît rapidement vers des résidus stables.

2.5. Options de gestion des combustibles usés

Au moment de leur déchargement, les combustibles usés dégagent une importante quantité de chaleur et émettent d'intenses rayonnements 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 figure 1 et section 2.6.) ces combustibles de manière à récupérer l'uranium et le plutonium qui représentent respectivement 96 % et 1% 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 œuvre actuellement en France (La Hague), au Royaume-Uni (Sellafields), au Japon (Tokai-Mura, Rokasho) et en Russie, vise à recycler l'uranium et le plutonium. Le plutonium, en particulier, devrait en principe être utilisé comme combustible de base des futurs surrégénérateurs. 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 figure 2). Cette voie 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 des actinides mineurs dans les combustibles usés, constituant dans cette stratégie les déchets ultimes. Du point de vue du *risque potentiel*, le plutonium domine à long terme la radiotoxicité des combustibles usés (voir figure 3), après que les produits de fission ^{90}Sr et ^{137}Cs ont décru. 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.

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 surconteneur éventuel, la migration du plutonium et des autres corps à vie longue 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, le ^{135}Cs et le ^{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 CEE). À cet égard, les deux stratégies devraient donc présenter des risques 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 ; les conséquences radiologiques peuvent dépendre directement de l'inventaire présent dans le stockage.

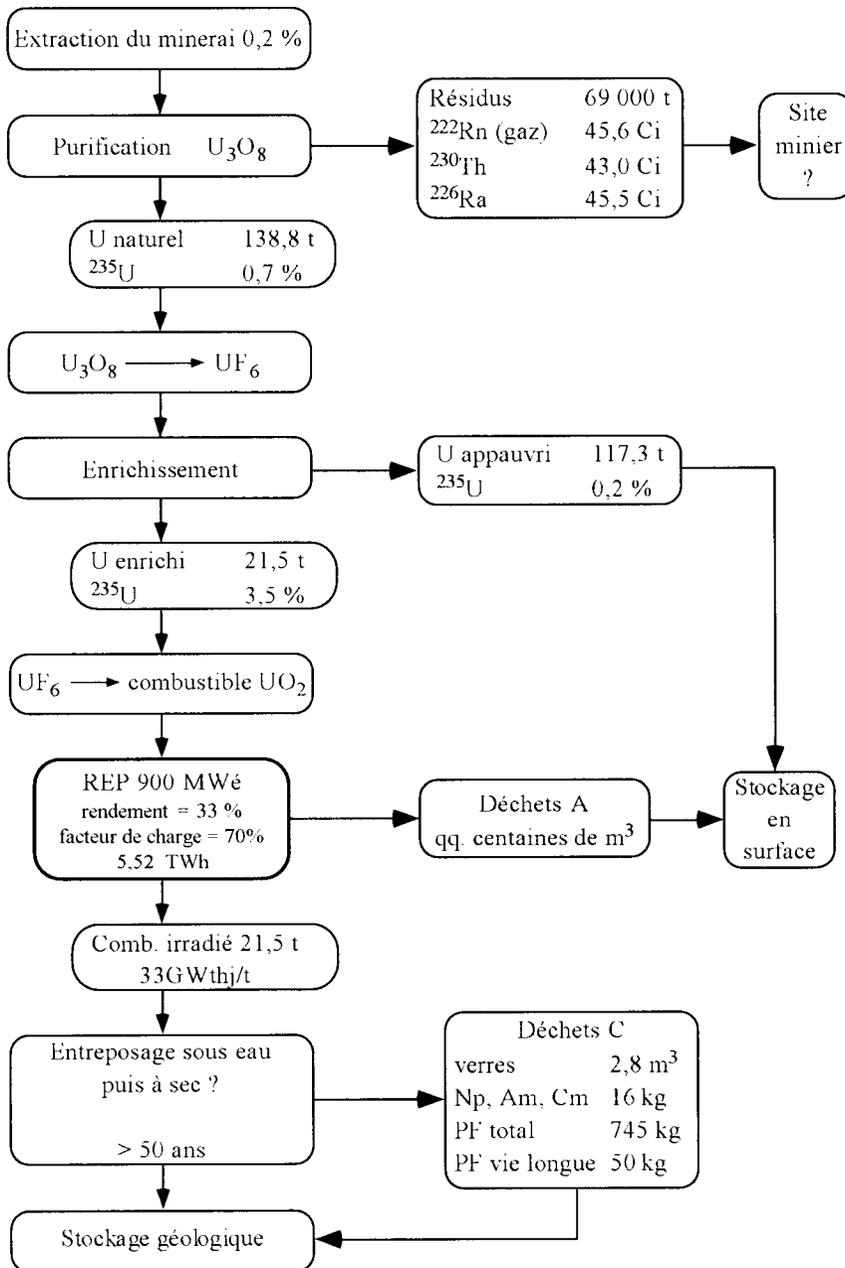


Figure 2 : Les diverses opérations du cycle ouvert, c'est-à-dire sans retraitement.

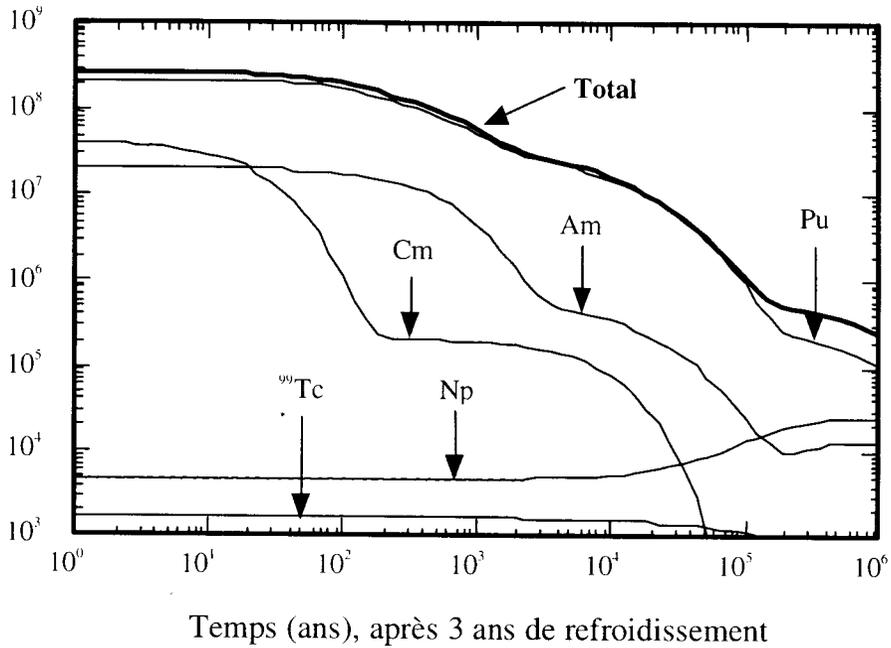


Figure 3 : Contribution de l'inventaire initial au risque potentiel par ingestion ; doses exprimées en Sv/TWhé d'après CIPR-68 (source : thèse de Stéphanie Sala, université de Provence, le 26 juin 1995).

2.6. Déchets produits par 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 les 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.

Leurs caractéristiques, rapportées à une tonne d'uranium d'un combustible retraité, figurent dans le tableau II, et sont décrites en détail dans le chapitre 4.

Tableau II : Caractéristiques des déchets issus du retraitement des combustibles usés, dans le cas de l'usine de La Hague UP3-800 (source COGEMA).

Contenus des déchets	PF et Actinides mineurs	Coques et embouts	Déchets technologiques		Boues de précipitation
Forme physique :	Verres	Ciments	Blocs de béton		
Catégorie :	C	B	A	B	B
Volumes prévus ^a à la conception :	30	600	3800	1700	30
Volumes actuels ^b (1995) :	130	600	?	≈ 150	0
Volumes prévus en 2000 ^c :	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^d :	97,6	2,3	←————— 0,1 —————→		

^a Les volumes sont en litre par tonnes d'uranium après conditionnement, mais sans surconteneur.

^b La réduction des volumes en 1995 est due à un meilleur tri entre catégories A et B des déchets technologiques et à l'abandon des bitumes.

^c Une réduction supplémentaire de volume devrait être obtenue grâce au compactage des coques et des embouts.

^d Hors tritium.

2.7. Recyclage du plutonium

Initialement, le plutonium séparé dans les usines de retraitement devait servir de combustible d'une nouvelle filière, celle des surrégénérateurs. C'est sur cette base que fut décidé dans les années 1970 de construire Superphénix et des usines de retraitement à La Hague (UP2-800 puis UP3). En l'absence de programme surrégénérateur 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 paliers 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 (Saint-Laurent B1 & B2, Gravelines B3 & B4, Dampierre 1 & 2 et Le Blayais 1).

Le plutonium que l'on recycle dans les REP est introduit sous forme d'un combustible mixte d'oxyde d'uranium et d'oxyde de plutonium, appelé MOX pour

Mixed OXide. L'inventaire des matières d'un combustible MOX avant et après irradiation est représenté dans le tableau III. On constate qu'en fin d'irradiation la masse de plutonium a diminué de 68 kg/TWhé. Cette "incinération" du plutonium est importante (comparée par exemple à ce que l'on peut aisément atteindre avec un réacteur à neutrons rapides), et porte pour l'essentiel sur l'isotope fissile ^{239}Pu . Le recyclage du plutonium dans les REP conduit cependant à deux limitations principales :

- la difficulté de recycler plusieurs fois le plutonium, qui s'enrichissant de plus en plus en isotopes pairs, devient de moins en moins fissile aux neutrons thermiques, nécessitant un accroissement de sa teneur à chaque nouveau recyclage (limitations liées à la sûreté). À 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 3, 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).

2.8. 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 du combustible 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 Soulaïnes. Le stockage en couches géologiques profondes de ces déchets dits à vie longue (déchet B) et, à haute activité et vie longue (déchet C) constitue aujourd'hui la solution de gestion définitive adoptée par l'ensemble des pays confrontés aux problèmes des déchets nucléaires. Aussi fait-il l'objet d'études menées activement depuis de nombreuses années dans des cadres nationaux et internationaux (AIEA, OCDE, CEE), souvent en coopération. Les propriétés de rétention et la sûreté du stockage géologique sont discutés dans la troisième partie de ce livre.

Tableau III : Inventaire des matières au chargement et déchargement du réacteur. Cas d'un combustible MOX pour un REP de 900 MW, à un taux de combustion de 43,5 GWj/t (source : thèse de Stéphanie Sala, université de Provence, le 26 juin 1995).

Radionucléides	Période (année)	Chargement		Déchargement ^a	
		(kg/TWhé)	(kg/an) ^b	(kg/TWhé)	(kg/an) ^b
Uranium					
²³⁵ U	$7,08 \times 10^8$	6,7	11,1	3,5	5,8
²³⁶ U	$2,34 \times 10^7$			0,7	1,2
²³⁸ U	$4,47 \times 10^9$	2 704	4 478	2 573	4 261
Total uranium :		2 710	<u>4 489</u>	2 577,2	<u>4 268</u>
Plutonium					
²³⁸ Pu	87,7	6,8	11,3	7,5	12,4
²³⁹ Pu	24 119	126	209	63,5	105,2
²⁴⁰ Pu	6 569	59,5	98,5	52,8	87,4
²⁴¹ Pu	14,4	26,9	44,5	24,6	40,7
²⁴² Pu	$3,7 \times 10^5$	18,7	31,0	21,5	35,6
Total plutonium :		237,9	<u>394,0</u>	169,9	<u>281,3</u>
Actinides mineurs					
²³⁷ Np	$2,14 \times 10^6$			0,5	0,8
²⁴¹ Am	432,2			8,7	14,4
²⁴³ Am	7 380			5,4	9,0
²⁴³ Cm	28,5			0,04	0,1
²⁴⁴ Cm	18,1			2,4	4,0
²⁴⁵ Cm	8 500			0,3	0,5
Total actinides mineurs :				17,3	<u>28,8</u>
PFVM^c					
⁹⁰ Sr	28			0,9	1,5
¹³⁷ Cs	30			4,3	7,1
Total PFVM :				5,2	<u>8,6</u>
PFVL^d					
⁷⁹ Se	70 000			0,01	0,02
⁹³ Zr	$1,5 \times 10^6$			1,8	3,0
⁹⁹ Tc	$2,1 \times 10^5$			2,9	4,8
¹⁰⁷ Pd	$6,5 \times 10^6$			1,9	3,2
¹²⁶ Sn	10^5			0,1	0,2
¹²⁹ I	$1,57 \times 10^7$			0,8	1,3
¹³⁵ Cs	2×10^6			2,9	4,8
¹⁵¹ Sm	93			0,01	0,02
Total PFVL :				10,4	<u>17,4</u>
Total PF ^e :				135	<u>224</u>

^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 cœur qui est chargée en MOX, soit 30 %. Le MOX produit donc 1,66 TWhé/an. La partie restante du cœur est constituée de combustibles standards (voir tableau I) et produit 3,86 TWhé/an.

^c Principaux produits de fission à vie moyenne (de l'ordre de 30 ans) à 3 ans de refroidissement.

^d Principaux produits de fission à vie longue (supérieure à 30 ans) à 3 ans de refroidissement.

^e On notera que la grande majorité des PF décroît rapidement vers des résidus stables.

L'ensemble de ces résultats conforterait 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 et parmi de nombreux responsables politiques 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 pour les déchets radioactifs.

2.9. La loi sur les déchets du 30 décembre 1991

En effet, à la suite des oppositions rencontrées entre 1987 et 1990 par l'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactif, l'ANDRA, à la recherche d'un site pour l'implantation d'un laboratoire souterrain de qualification, le Gouvernement décidait en 1990 un moratoire d'une année, durant laquelle l'Office parlementaire d'évaluation des choix scientifiques et technologiques se saisissait de ce dossier sensible. Suite à son rapport (rapport C. Bataille, du nom de son rapporteur), le Parlement votait la loi sur les déchets du 30 décembre 1991 prévoyant un statut d'indépendance de l'ANDRA par rapport au Commissariat à l'énergie atomique et fixant dans son article 4 trois axes de recherche concernant la gestion des déchets de haute activité et à vie longue : la séparation et la transmutation ; le stockage géologique ; le 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 termes les combustibles irradiés, compte tenu du contexte actuel concernant l'utilisation du plutonium et la place future du nucléaire dans la production d'électricité ;
- la nécessité de disposer à plus long terme d'une stratégie diversifiée de gestion des déchets et du plutonium, telles que la séparation poussée et la transmutation des déchets à vie longue dans divers types de réacteurs comme les REP, les réacteurs à neutrons rapides ou les systèmes assistés par accélérateur, dits systèmes hybrides.

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

3. Perspectives de production de déchets et de matières nucléaires, et politiques de gestion

3.1. Le cas de la France

Les quantités de matières nucléaires (uranium naturel, uranium enrichi, uranium appauvri) et de déchets en amont du réacteur qu'a utilisé ou produit le programme électronucléaire pourrait, en principe, se déduire de la quantité totale d'énergie fournie par les centrales nucléaires et des données fournies dans le tableau I. 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, du taux de rejet de l'uranium appauvri des usines d'enrichissement et des caractéristiques des réacteurs (notamment avec l'introduction du combustible MOX). S'agissant de l'aval du cycle, le spectre isotopique et les quantités de plutonium et de déchets dépendent des quantités de combustibles retraités et de caractéristiques comme le taux de combustion et les paramètres du réacteur. Enfin, elles dépendent de décision de nature politique quant à l'ampleur future du programme électronucléaire, du retraitement et du recyclage du plutonium.

Nous nous sommes appuyés sur des données fournies par les organismes concernés (EDF, COGEMA et ANDRA) à la Commission nationale d'évaluation, 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 la figure 4. 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 de la COGEMA, à partir de 8,5 tonnes de plutonium issus du retraitement de 850 tonnes de combustibles standard à uranium enrichi ;
- 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 unité de travail de séparation⁽²⁾, 850 tonnes sont retraitées annuellement, les 350 tonnes

(2) Dans le cas d'une usine d'enrichissement à diffusion gazeuse, on peut montrer que l'énergie électrique dépensé dans une cascade d'enrichissement optimisée est proportionnelle à une quantité U appelée unité de travail de séparation (UTS) qui s'exprime en fonction des masses et des enrichissements mis en jeu.

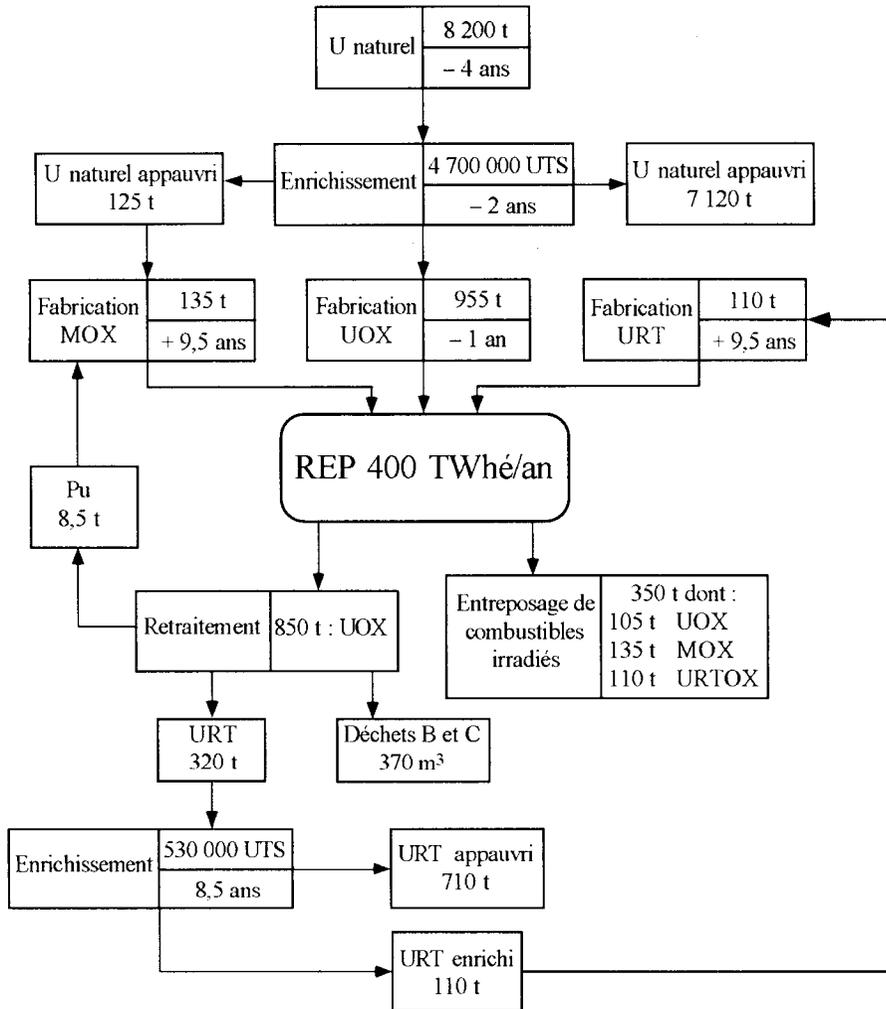


Figure 4 : Flux annuels dans le cycle du combustible associé au parc EDF (situation après 2000, source EDF, direction du combustible, 1996)

restantes (dont 135 tonnes de MOX) étant entreposées 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 décide d'étendre le recyclage aux 28 réacteurs 900 MWé, une possibilité qui est ouverte par la récente demande du ministre de l'Industrie F. Borotra à EDF, de démarrer les procédures d'autorisation administrative permettant à un tel recyclage.

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

Compte tenu des dernières informations dont a disposé la Commission nationale d'évaluation pour son rapport de juillet 1996, concernant aussi bien la mise en route vers l'an 2000 du compactage des coques (voir tableau II) 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 attendus en 2010 et 2020 (voir tableaux IV et V).

Tableau IV : Ordre de grandeur des volumes et quantités de déchets conditionnés attendus en 2010 et 2020 (sources COGEMA et EDF, fournies à la Commission nationale d'évaluation, 1996).

	Producteurs	Déchets B	Déchets C
Situation en 2010	COGEMA ^a	42 000 m ³	verres : 2 700 m ³
	EDF ^b	12 000 m ³	UOX ^c : 3 440 tonnes MOX : 1 900 tonnes
	CEA	15 000 m ³	10 à 60 tonnes
Situation en 2020	COGEMA ^a	45 700 m ³	verres : 3 900 m ³
	EDF ^b	16 000 m ³	UOX ^c : 5 590 tonnes MOX : 3 250 tonnes
	CEA	19 800 à 26 400 m ³	10 à 60 tonnes

^a Avec compactage des coques (tableau II).

^b Les déchets B de EDF sont les grappes de commande (barre de contrôle servant au pilotage 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 9 500 tonnes de combustibles non retraités jusqu'en 1995 (tableau VI), mais qui devront en principe être retraités.

Tableau V : Quantités d'éléments (en tonne) contenus dans les verres ou les combustibles usés.

	Verres ^a 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 ^b	557	797	environ 200 ^b		

^a Avec les rendements élevés actuels de séparation (voir tableau II).

^b 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 de ^{129}I et 1,725 t de ^{135}Cs dans les MOX.

3.2. La situation à l'étranger

À 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 VI 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 % à 30 % observées pour des pays très industrialisés comme l'Allemagne ou les États-Unis sont les résultats d'efforts importants qui furent menés dans les années 1960–1970. 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 du ministère de l'Industrie, Direction générale de l'énergie et des matières premières).

Tableau VI : 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, (E)	1 150	11 770	2 518
Belgique	55,8	5,5	RE, E	120	1 400	403
Suède	51,1	10,0	ST	250	≈ 3 240	
Suisse	36,8	3,0	RE, E	85	≈ 1 300	285
Espagne	35,0	7,1	E	168	1 775	
Finlande	29,5	2,3	E	70	≈ 975	
Allemagne	29,3	22,7	RE, E	470	6 315	2 706
Japon	27,2	38,9	RE, R	981	≈ 8 600	1 082
Royaume-Uni	25,8	11,7	R, E?	826		
États-Unis	22,0	98,8	ST	2 200	≈ 28 600	
Canada	19,1	15,8	ST	1 479		
Pays-Bas	4,9	0,5	RE, E	15	150	162

^a Situation au 1^{er} janvier 1995 (source AIEA).

^b En 1992 (source AEN de l'OCDE).

^c Valeurs cumulés jusqu'en 1995 (source CEE) ; les données en *italique* ont été estimées à partir de la production cumulée d'électricité d'origine nucléaire (source CEA, 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 1^{er} mars 1995 (source COGEMA).

Notation : R pour retraitement dans le pays même ; RE pour retraitement effectué à l'étranger ; E pour entreposage en attente de décision ; ST pour stockage direct de combustibles usés.

Dans un tel contexte, il y a peu de pression sur le marché de l'uranium et de l'enrichissement ; 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 que ce soit pour la construction de sites de stockage de déchets ultimes.

C'est ainsi que les capacités d'entreposage varient d'un pays à l'autre, le cas des États-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 de l'OCDE).

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

- les États-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.

Au contraire, d'autres comme la France, le Royaume-Uni, le Japon et la Russie 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 8 000 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 le cas particulier des combustibles métaux (cas du Royaume-Uni) dont l'essentiel a été retraité, guère plus de 10 000 tonnes ont été retraitées 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.

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). À ce jour, il n'existe au plan mondial que des laboratoires méthodologiques ou de qualification au stade de pilote. Citons parmi les pays les plus actifs dans ce domaine la Suède (laboratoire de Stripa dans le granite), la Belgique (laboratoire de Mol dans l'argile), la Suisse (laboratoire de Grimsel dans le granite) ou le Canada (laboratoire URL dans le granite). En France, le processus initié par la loi de 1991 a abouti aujourd'hui à la sélection de trois sites (le granite dans la Vienne, l'argile dans l'Est et le Gard) pour la construction d'un laboratoire souterrain. Enfin au États-Unis, le *Department Of Energy* 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 techniques, scientifiques et politiques, que l'on rencontre partout pour procéder au stockage définitif de déchets nucléaires.

2 Notions élémentaires sur les réacteurs nucléaires⁽¹⁾

Massimo Salvatores^(★)

1. Notions de base

1.1. Réactions avec les neutrons

Les interactions nucléaires sont engendrées dans un réacteur par collision des neutrons avec les noyaux présents. Deux types de collisions sont à considérer, suivant qu'il y a ou non capture du neutron incident. Indiquons d'abord la classification :

- collisions capturantes :
 - captures fissiles (fission de l'uranium 235 ou du plutonium 239). Ce type de fission produit de l'énergie et émet en moyenne de 2,4 à 2,9 de neutrons à la deuxième génération ;

(1) On pourra trouver une documentation plus large dans les livres de M. Gauthron [1] et J. Bussac et P. Reuss [2] dont ce chapitre n'est qu'une compilation très réduite.

(★) Commissariat à l'énergie atomique, CEA/Cadarache/DRN, 13108 St-Paul-lez-Durance Cedex.

- captures fertiles. L'absorption d'un neutron conduit à la production d'un nouveau noyau fissile. Le noyau initial est dit fertile, c'est le cas de l'uranium 238 et du thorium 232 qui conduisent après capture d'un neutron respectivement au plutonium 239 et à l'uranium 233 ;
- captures stériles. L'absorption du neutron donne naissance à un "simple" noyau radioactif. Le neutron est perdu sans profit ;
- collisions non capturantes. Ce sont les chocs élastiques et inélastiques avec les noyaux du modérateur, des structures et du combustible. Ils ralentissent les neutrons et diffusent l'énergie.

1.2. Section efficace

Considérons un neutron se déplaçant dans une direction donnée à l'intérieur d'un cylindre dont la section droite, notée S , est perpendiculaire à la trajectoire et les génératrices parallèles à cette même trajectoire (voir figure 1). Soit N le nombre de noyaux par cm^3 du milieu considéré.

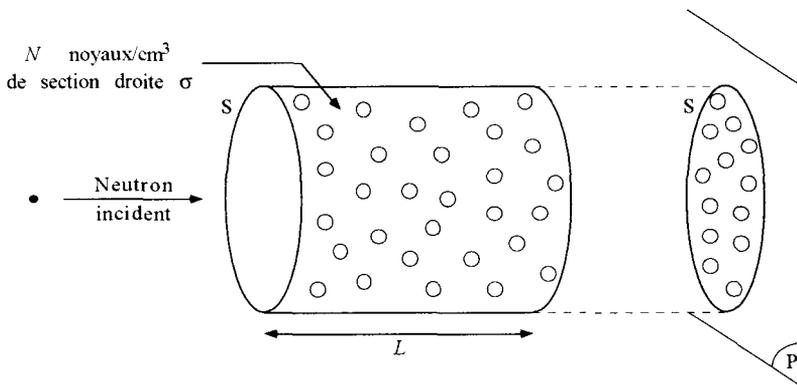


Figure 1 : Diffusion d'un neutron par un ensemble de noyaux.

Le nombre de noyaux dans le cylindre est SLN , où L est la longueur du cylindre. La probabilité de collision est définie par le rapport :

$$\frac{SLN\sigma}{S} = LN\sigma$$

où σ est la section efficace microscopique, encore appelée section d'interaction du noyau. La probabilité rapportée à la longueur du cylindre traversée par les neutrons est $N\sigma$, c'est la section efficace macroscopique que l'on note Σ :

$$\Sigma = N\sigma$$

1.3. Libre parcours moyen

La quantité :

$$\frac{I(x)}{I} = e^{-\Sigma x}$$

est la probabilité pour que le neutron n'ait pas subi d'interaction avec le milieu après l'avoir traversé sur une distance x . La probabilité d'interaction entre x et $x + dx$ est :

$$e^{-\Sigma x} \Sigma dx$$

On en déduit la distance moyenne parcourue avant interaction, le libre parcours moyen :

$$\lambda = \frac{\int_0^{+\infty} x e^{-\Sigma x} \Sigma dx}{\int_0^{+\infty} e^{-\Sigma x} \Sigma dx} = \frac{1}{\Sigma}$$

1.4. Flux neutronique

La densité des neutrons en un point donné est le nombre de neutrons par unité de volume en ce point : n neutrons/cm³. Considérons d'abord le cas théorique simple où tous les neutrons se déplacent dans la même direction et à la même vitesse moyenne v (voir figure 2). Le nombre de neutrons qui traversent par seconde la surface S de 1 cm² perpendiculairement à l'écoulement est $\Phi = nv$, où Φ est par définition le flux neutronique à travers la surface considérée. Par exemple, calculons le flux correspondant à une densité de 50 millions de neutrons/cm³, ayant une vitesse de 2 000 m/s : $\Phi = (50 \times 10^6) \times (2 \times 10^3) = 10^{13}$ neutrons/cm²s.

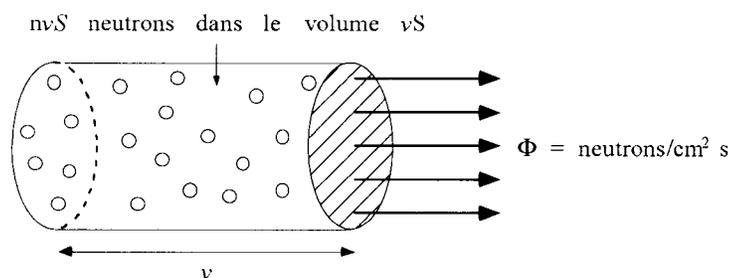


Figure 2 : Flux de neutrons. La longueur du faisceau de neutrons par seconde est égale à v . Le faisceau occupe alors un volume égal à vS , où S est la section du faisceau, $S = 1 \text{ cm}^2$.

1.5. Énergie dégagée dans le combustible

Le nombre de fissions intervenant par seconde dans 1 cm^3 de combustible (taux de réaction) sera, compte tenu de ce qui précède :

$$\Phi_c \cdot \Sigma_f$$

où Φ_c est le flux de neutrons "capturés" et Σ_f la section efficace macroscopique de fission. L'énergie dégagée par cm^3 de combustible sera fonction de l'énergie de fission j :

$$\Phi_c \cdot \Sigma_f \cdot j$$

Par exemple, pour la fission d'un noyau d'uranium 235, on a :

$$j = 3 \times 10^{-11} \text{ J}$$

1.6. Facteur de multiplication

Les neutrons engendrés lors d'une fission peuvent à leur tour produire une nouvelle fission. Par exemple, sur la figure 3, un neutron incident engendre trois neutrons dont un produit une nouvelle fission (neutron utile). Deux paramètres sont à considérer dans ce bilan : le nombre de neutrons engendrés en moyenne par fission (environ 2,5 pour l'uranium 235), noté ν (lettre grec nu, à ne pas confondre avec la vitesse des neutrons), et le nombre de neutrons utiles produits en moyenne par fission (un dans le cas du régime stable d'un réacteur, dit régime critique), noté k . Le paramètre k est le facteur de multiplication que l'on définit par le rapport du nombre de neutrons utiles d'une génération sur le nombre de neutrons utiles de la génération précédente :

$$\begin{cases} k > 1 : \text{cas sur-critique} \\ k = 1 : \text{cas critique} \\ k < 1 : \text{cas sous-critique} \end{cases}$$

Soit k le facteur par lequel est multipliée la population neutronique quand on passe d'une génération à la suivante ; l'intervalle de temps t_0 séparant deux générations est le temps de vie moyen des neutrons dans le milieu, temps s'écoulant entre leur apparition par fission et leur disparition par absorption ou par fuite hors du milieu. Dans les réacteurs nucléaires, ce temps est de 10^{-3} s (pour les réacteurs à eau lourde par exemple).

L'évolution de la population globale $n(t)$ obéit à la loi :

$$n(t + t_0) = k n(t)$$

soit :

$$n(t) + \frac{dn}{dt} t_0 = k n(t)$$

d'où :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{k-1}{t_0} n(t)$$

et :

$$n(t) = n(0) \exp\left[\frac{(k-1)t}{t_0}\right]$$

Une fraction faible des neutrons, de l'ordre de 0,6 à 1 %, mais physiquement essentielle, sont émis après fission avec un retard de quelques secondes à une minute. Ils proviennent de la décroissance radioactive de certains produits de fission. Grâce à ces neutrons retardés, le temps moyen \bar{t} séparant deux générations est très supérieur au temps de vie t_0 des neutrons, de l'ordre de 0,1 s.

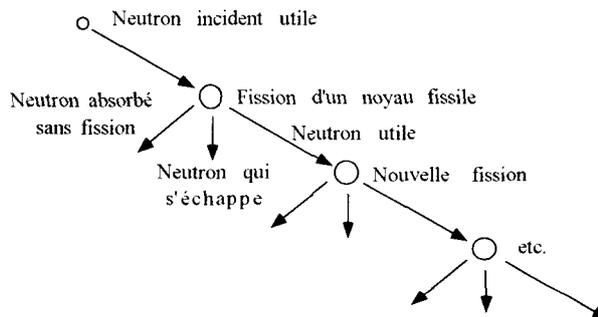


Figure 3 : Réaction en chaîne.

2. Principe des réacteurs

Les neutrons libérés par fission dans un bloc d'uranium naturel ont des énergies élevées et peuvent théoriquement produire à leur tour la fission de noyaux d'uranium 235. L'uranium 235 donne lieu à la fission pour des neutrons de toute énergie, mais la probabilité de fission est plus importante aux basses énergies, inférieures à 2 eV. Dans les réacteurs dits thermiques, les neutrons sont ralentis jusqu'à "l'état thermique" par chocs élastiques sur les noyaux d'une substance appelée "modérateur".

Quant à l'uranium 238, il n'est pratiquement pas fissile en dessous de 1 MeV. Mais il absorbe de façon importante les neutrons d'énergie intermédiaire. Dans les

réacteurs à uranium naturel cette capture sans fission (avec formation de plutonium) risque de faire disparaître exagérément les neutrons avant qu'ils aient atteints les basses énergies pour lesquelles ils produisent, avec un bon rendement, la fission de l'uranium 235. On effectue alors un ralentissement des neutrons en dehors de la présence des noyaux d'uranium 238, suivant une disposition hétérogène du combustible (voir figure 4). Évidemment, cette disposition hétérogène, caractéristique des réacteurs à uranium naturel, devient de moins en moins nécessaire au fur et à mesure que l'on utilise de l'uranium plus enrichi : on dispose alors d'une quantité de plus en plus importante de neutrons à dépenser en captures fertiles.

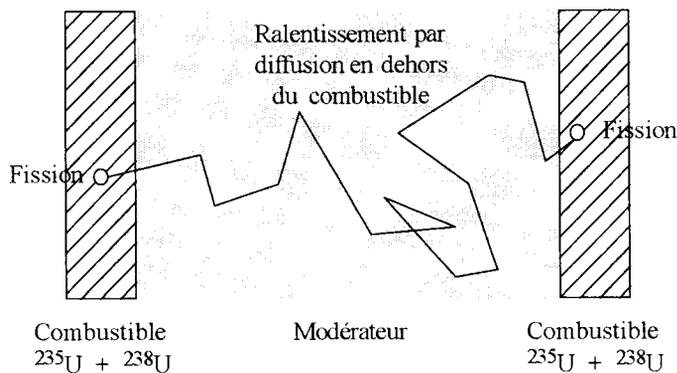


Figure 4 : Schéma d'un réacteur thermique hétérogène à uranium.

On voit finalement apparaître trois types de réacteurs.

- 1) Les réacteurs thermiques hétérogènes, correspondant au schéma de la figure 4 et de structure optimum, du point de vue neutronique, pour l'utilisation d'uranium naturel ou peu enrichi.
- 2) Les réacteurs thermiques homogènes (semi-homogènes dans la pratique) où le combustible est intimement mélangé au modérateur. Ils sont nécessairement enrichis pour compenser les captures plus élevées des neutrons intermédiaires par l'uranium 238.
- 3) Les réacteurs rapides, qui ne comportent pas de modérateur et utilisent une forte proportion de noyaux fissiles pour compenser la faible section efficace de l'élément fissile, qui est ici le plutonium, meilleur que l'uranium 235 dans ces conditions du point de vue des captures stériles.

2.1. Réacteurs thermiques

Quand l'énergie cinétique moyenne des neutrons est égale à l'énergie cinétique moyenne d'agitation thermique du milieu dans lequel ils évoluent, on assimile la

population neutronique à un gaz de même température : ce sont des neutrons thermiques.

On appelle réacteur thermique un réacteur dans lequel les neutrons sont ralentis dans un modérateur jusqu'à atteindre l'équilibre thermique avec les noyaux du modérateur : ils sont ensuite utilisés pour propager la réaction en chaîne par fission (voir figure 5).

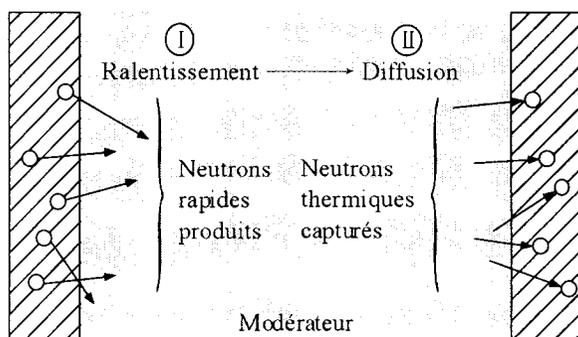


Figure 5 : Principe d'un réacteur thermique.

2.1.1. Réacteur à eau légère sous pression

Dans ce type de réacteur, l'eau légère sous pression est utilisée simultanément comme modérateur et comme caloporteur (voir figure 6). Il est alors nécessaire, pour compenser l'absorption élevée du modérateur, d'enrichir le combustible.

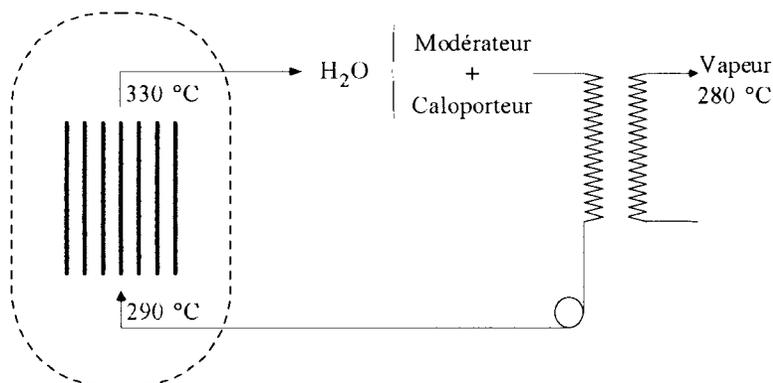


Figure 6 : Principe d'un réacteur à eau sous pression.

2.1.2. Bilan neutronique pour un REP

Le bilan neutronique pour un réacteur REP est donné dans le tableau I.

Tableau I : Bilan neutronique pour la production et la disparition de 1 000 neutrons, avec leurs répartitions respectives dans les domaines épithermique et thermique.

	Total	Domaine épithermique (en %)	Domaine thermique (en %)
Productions :	1 000 :	183	817
²³⁸ U	70	1 000	0
²³⁵ U	930	121	879
Disparitions :	1 000 :	497	503
²³⁸ U	242	779	221
²³⁵ U	469	151	849
O	1	982	18
Zr	11	785	215
H ₂ O	35	88	912
Fuites et contrôle	242	930	70

2.2. Réacteurs à neutrons rapides

Les neutrons produits par fission sont distribués en énergie. Ces neutrons sont donc des neutrons "rapides" dont les interactions avec la matière sont caractérisées par des valeurs faibles des sections efficaces. Ce fait impose un enrichissement en noyaux fissiles (²³⁵U, ²³⁹Pu ou ²³³U) nettement plus élevé pour les réacteurs à neutron rapides (supérieur en général à 15 %) que pour ceux à neutrons thermiques, qui peuvent fonctionner à l'uranium naturel, ou légèrement enrichi. Par contre l'économie de neutrons est meilleure avec des neutrons rapides. Cela peut se voir facilement en comparant les valeurs de η (neutrons émis par neutron absorbé) :

$$\eta = \frac{v\sigma_f}{\sigma_f + \sigma_c} = \frac{v}{1 + \alpha}$$

avec $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$. Les paramètres en question sont donnés dans le tableau II pour les isotopes fissiles.

Tableau II : Paramètres de noyaux fissiles pour des spectres de neutrons thermique et de neutrons rapides.

	²³⁵ U		²³⁹ Pu		²³³ U	
	Thermique	Rapide	Thermique	Rapide	Thermique	Rapide
σ_f (barn)	582	1,81	743	1,76	531	2,79
$\alpha = \sigma_c/\sigma_f$	0,17	0,29	0,36	0,26	0,09	0,12
ν	2,42	2,43	2,87	2,94	2,49	2,53
$\eta = 1$	1,07	0,88	1,11	1,88	1,29	1,27

De plus dans le tableau III, on indique les rapports σ_c/σ_f pour plusieurs actinides. Ces rapports confirment que l'économie neutronique dans un spectre rapide est nettement meilleur et ceci explique :

- la possibilité de faire du multirecyclage du plutonium dans un réacteur à neutron

Tableau III : Rapport $\alpha = \sigma_c/\sigma_f$ pour différents types de spectres neutroniques. Dans le cas des REP, on a représenté les valeurs correspondantes à différents rapports de modération ν_m/ν_f (rapport du volume du modérateur sur le volume du combustible) dans le réseau de base (pour un REP standard : $\nu_m/\nu_f \cong 2$).

	REP			RNR
	$\nu_m/\nu_f \cong 3$	$\nu_m/\nu_f \cong 2$	$\nu_m/\nu_f \cong 1,1$	
²³⁵ U	0,236	0,317	0,403	0,312
²³⁸ U	7,39	6,42	5,62	8,65
²³⁷ Np	51,9	34,0	21,2	5,74
²³⁸ Pu	10,5	4,77	2,30	0,552
²³⁹ Pu	0,546	0,561	0,564	0,337
²⁴⁰ Pu	77,0	40,0	16,8	1,89
²⁴¹ Pu	0,330	0,318	0,292	0,207
²⁴² Pu	33,2	23,2	12,9	3,23
²⁴¹ Am	74,3	48,7	27,9	8,55
²⁴² Am	0,232	0,220	0,194	0,211
²⁴³ Am	89,3	69,2	44,1	9,82
²⁴² Cm	4,03	4,21	3,97	1,067
²⁴³ Cm	0,183	0,175	0,176	0,074
²⁴⁴ Cm	15,6	14,1	11,1	1,53
²⁴⁵ Cm	0,147	0,147	0,152	0,127

- rapide (tous les isotopes du plutonium sont *fissiles* en spectre rapide ; le plutonium 240 et le plutonium 242 sont des *poisons* en spectre thermique) ;
- l'avantage des RNR pour la transmutation ;
 - la flexibilité des RNR pour produire ou consommer du plutonium (RNR surrégénérateur ou sousrégénérateur).

En ce qui concerne le caloporteur dans un réacteur à neutron rapide, le choix porte sur les métaux liquides (principalement le sodium), qui ont des sections efficaces de capture faibles, qui ralentissent peu les neutrons et qui présentent des caractéristiques optimales pour l'échange thermique en vue des fortes puissances spécifiques déchargées dans les cœurs des RNR. Dans les tableaux IV et V on compare les caractéristiques de puissances et de flux dans différents types de réacteurs.

Tableau IV : Puissances moyennes dans la région du combustible.

Filière	Puissance volumique W/cm ²	Puissance volumique W/cm	Puissance spécifique W/g
RHT ^a	30	60	100
REP ^b	100	180	40
REB ^c	50	250	28
RNR ^d	330	280	80

a : Réacteur à haute température ; b : Réacteur à eau sous pression ; c : Réacteur à eau bouillante ; d : Réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium.

Tableau V : Caractéristique du flux neutronique.

	Flux moyen dans le cœur (neutrons/cm ² s)	Pourcentage de neutrons	
		thermiques (énergie < 0,6 MeV)	rapides (énergie > 0,8 MeV)
RHT ^a	$2,4 \times 10^{14}$	15	10
REP ^b	$2,5 \times 10^{14}$	10 – 12	30
REB ^c	2×10^{14}	10	30
RNR ^d	$3,5 \times 10^{15}$	≈ 0	40 – 50

a : Réacteur à haute température ; b : Réacteur à eau sous pression ; c : Réacteur à eau bouillante ; d : Réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium.

La figure 7 représente schématiquement les composantes d'un cœur de RNR et la figure 8 donne la répartition détaillé du bilan neutronique dans un RNR. Ce bilan neutronique est à la base des valeurs indiquées dans la figure 8 qui représente

de façon simplifiée le passage de la surgénération à la sousgénération dans un réacteur à neutrons rapides.

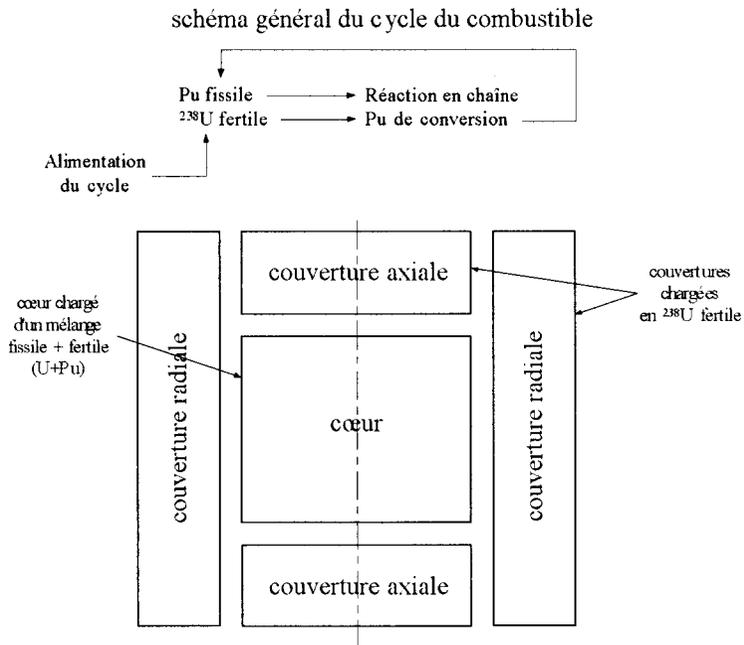


Figure 7 : Représentation schématique d'un cœur de RNR. Le cœur constitué par les éléments combustibles dits "fissiles" ne contient évidemment pas de modérateur puisqu'on souhaite obtenir la fission avec les neutrons les plus rapides possible, les plus efficaces avec le plutonium. Les neutrons qui s'échappent du cœur pénètrent dans les couvertures constituées par les éléments dits "fertiles".

Bibliographie

- [1] Gauthron M., Introduction au génie nucléaire (INSTN-CEA, Collection Enseignement, 1986).
- [2] Bussac J. et Reuss P., Traité de neutronique (Hermann, 1985).

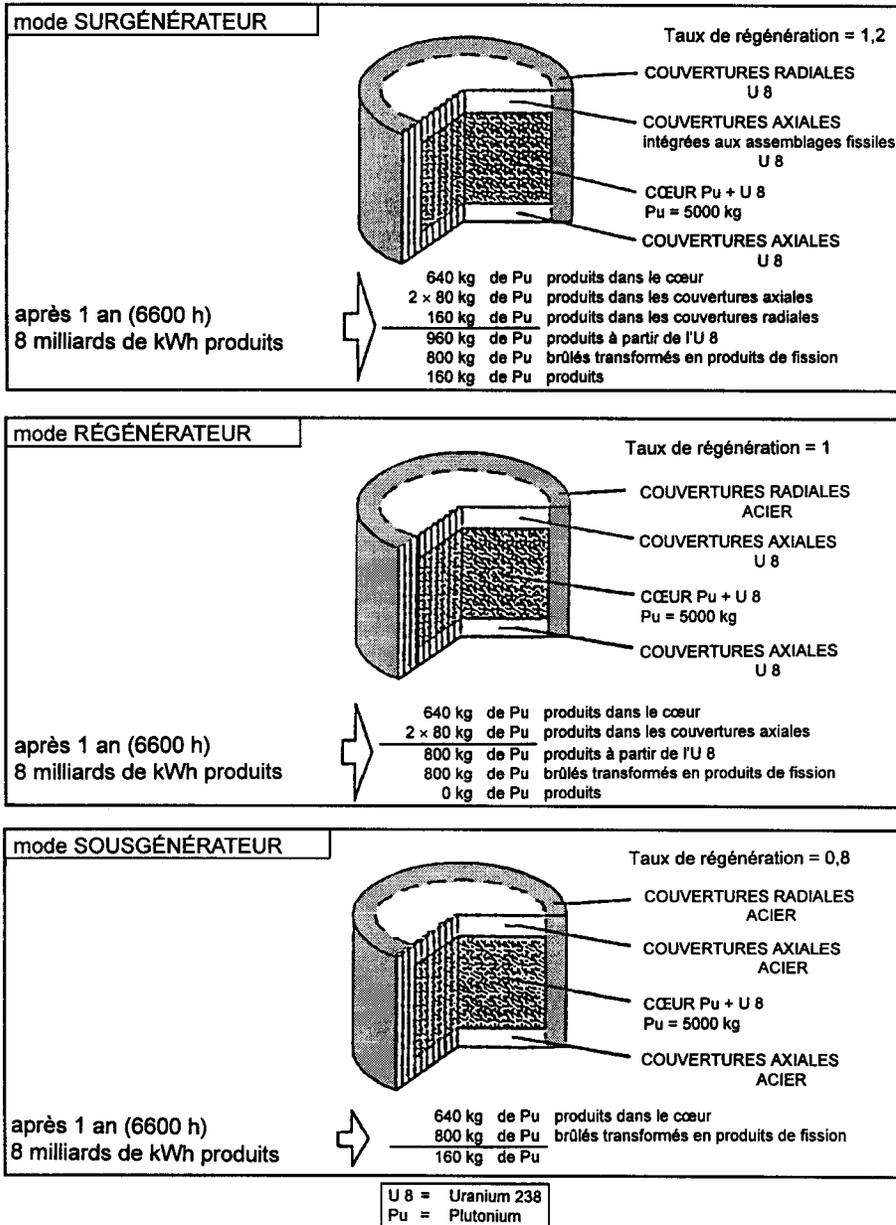


Figure 8 : Bilan neutronique dans un RNR.

3 Éléments de physique nucléaire pour réacteurs

Hervé Nifenecker^(★)

1. Introduction

Les processus nucléaires à l'œuvre dans les réacteurs sont connus depuis plus de cinquante ans. Paradoxalement, le niveau de connaissance qu'en a le public cultivé et même celui des physiciens non nucléaires est notoirement faible. Cette lacune est d'autant moins justifiée que 99 % de l'énergie produite dans l'univers provient de réactions nucléaires et que ce sont des processus nucléaires qui ont permis la synthèse de tous les éléments connus. De plus, que nous le voulions ou non, l'humanité est entrée dans l'ère nucléaire il y a un siècle. Le processus de fission fournit 5 % de l'énergie mondiale, 75 % de l'énergie électrique en France. Les radioéléments sont utilisés en médecine, dans l'industrie, dans les sciences de la Terre et dans bien d'autres secteurs. Les déchets radioactifs produits par les centrales nucléaires font désormais partie du paysage de la civilisation industrielle. Une (ré)intégration de la physique nucléaire dans la culture générale scientifique est donc une nécessité, fut-elle uniquement justifiée par des motifs d'ordre civique. Les pages qui suivent se veulent une modeste contribution à la réalisation de cette ambition. On y rappellera quelques unes des propriétés fondamentales du noyau

(★) Institut des sciences nucléaires 53, avenue des Martyrs, 38026 Grenoble cedex.

permettant de comprendre l'interaction des neutrons avec ce dernier et les phénomènes de radioactivité.

2. Les unités usuelles

Rappelons tout d'abord les unités les plus couramment utilisées en physique nucléaire et en physique des réacteurs.

2.1. Unité d'énergie

L'unité d'énergie couramment utilisée dans les processus atomique et nucléaire est l'électron-volt, noté eV, et ses multiples tels que le keV (10^3 eV), le MeV (10^6 eV) et le GeV (10^9 eV). L'électron-volt est l'énergie acquise par un électron ou un proton soumis à une différence de potentiel de 1 volt. La charge élémentaire d'un électron ou d'un proton vaut : $e = 1,6 \times 10^{-19}$ Coulomb, on a donc :

$$1 \text{ eV} = 1,6 \times 10^{-19} \text{ J}$$

Inversement, on a : $1 \text{ J} = 6,25 \times 10^{12} \text{ MeV}$ et $1 \text{ kWh} = 2,25 \times 10^{19} \text{ MeV}$.

Prenons quelques exemples :

- la fission d'un noyau dégage environ 190 MeV, soit $3,0 \times 10^{-11} \text{ J}$;
- pour produire une énergie de 1GWh, il doit se produire $1,18 \times 10^{23}$ fissions, soit la fission de 47 g d'uranium (0,2 mole d'uranium) ;
- la consommation d'une centrale de 3 GW est de 1,2 t/an d'uranium.

2.2. Unité de longueur

Le noyau étant très petit, on utilise habituellement une unité de longueur adaptée à son rayon soit :

$$1 \text{ Fermi} = 10^{-13} \text{ cm}$$

2.3. Unité de surface

L'unité de surface couramment utilisée n'est pas le Fermi² mais, pour des raisons de commodités, le barn qui vaut 100 Fermi². On a donc :

$$1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$$

La probabilité d'interaction d'un neutron avec un noyau est appelée section efficace, notée σ et s'exprime en barns. Pour calculer la probabilité d'interaction d'un neutron avec un milieu massif il est d'usage d'utiliser la section efficace macroscopique, $\Sigma = n\sigma \text{ cm}^{-1}$, où n est le nombre de noyaux cibles par cm^3 .

3. Le noyau

Le noyau est constitué de nucléons : les neutrons et les protons. L'interaction forte qui s'exerce entre les nucléons est à courte portée. Elle est attractive pour des distances de l'ordre de 2 Fermis et répulsive pour des distances inférieures à 0,5 Fermis. Les nucléons du noyau interagissent d'une façon semblable à celle des molécules d'un liquide. Cette analogie permet de comprendre pourquoi les noyaux se comportent à de nombreux égards comme des gouttelettes liquides, plus précisément comme des gouttelettes de liquide de Fermi.

Comme toute gouttelette, le noyau est un système lepto-dermique (à faible épaisseur de peau), ce qui permet de schématiser la goutte en distinguant une région intérieure caractérisée par une valeur constante de la densité et une surface séparant la région interne du vide. Dans la région intérieure chaque nucléon est entouré, dans toutes les directions, de nucléons voisins auxquels il est lié. En surface le nucléon est en contact avec deux fois moins de voisins qu'à l'intérieur. L'énergie de liaison de la goutte comporte, de ce fait, un terme attractif de volume et un terme répulsif de surface dû à la non-saturation des liaisons des nucléons de surface.

La présence des protons dans le noyau entraîne l'existence d'un terme de Coulomb répulsif dans l'expression de l'énergie de liaison du noyau.

Les nucléons étant des fermions, le principe de Pauli leur est applicable. Chaque état quantique ne peut être occupé que par un nucléon de type donné à la fois. Protons et neutrons peuvent occuper les mêmes états. Il s'ensuit que les noyaux "préfèrent" avoir un nombre égal de neutrons et de protons. Cette tendance est concrétisée par l'existence d'un terme de symétrie dans l'expression de l'énergie de liaison.

Du fait du principe de Pauli les nucléons se déplacent pratiquement sans collisions à l'intérieur du noyau. L'effet des autres nucléons se résume en un potentiel nucléaire moyen et à de faibles interactions résiduelles. Dans le potentiel moyen, les nucléons occupent des orbitales individuelles qu'ils remplissent progressivement au fur et à mesure que leur nombre augmente. Les symétries nucléaires se reflètent par une dégénérescence des états d'énergie individuels des nucléons, ce qui conduit à des effets de couche semblables à ceux observés dans les atomes. Ces effets conduisent à un terme spécifique dans l'expression de l'énergie de liaison du noyau, l'énergie de couche.

Les interactions résiduelles entre nucléons, non prises en compte par le potentiel moyen, amènent les nucléons à s'apparier deux à deux, à l'image des

électrons dans les supraconducteurs. Il s'ensuit que les nucléons célibataires sont moins liés que les autres. Ceci entraîne l'existence d'un terme d'appariement dans l'énergie de liaison du noyau.

Le bilan des interactions qui s'exercent dans le noyau s'exprime par la formule de l'énergie de liaison, appelée également par extension formule de masse :

$$E(A,Z) = -\text{Volume} + \text{Surface} + \text{Isospin} + \text{Coulomb} - \text{Pair} + \text{Couche}$$

où $E(A,Z)$ est l'énergie de liaison du noyau⁽¹⁾. Les termes négatifs indiquent une attraction.

La dépendance des différents termes de la formule en fonction des nombres de protons Z , de neutrons N , et de nucléons $A = N + Z$ s'écrit :

- Volume $\propto A$
- Surface $\propto A^{2/3}$
- Isospin $\propto \frac{(N - Z)^2}{A^2}$
- Coulomb $\propto \frac{Z^2}{R} \propto \frac{Z^2}{A^{1/3}}$
- Pair = $\Delta \propto \frac{12}{\sqrt{A}}$ si Z et/ou N sont pairs ; sinon $\Delta = 0$ (Δ est l'énergie d'appariement neutron-neutron et proton-proton.)
- Le terme de couche (Couche) est minimum pour les nombres magiques correspondant à des noyaux sphériques (2, 8, 20, 28, 40, 50, 82, 126, 184), dont il reflète la grande stabilité.

Comme on peut le voir sur la figure 1, la formule de masse implique que l'énergie de masse des noyaux ayant le même nombre de nucléons passe par un minimum en fonction de Z . Dans l'espace (Z, N) , le lieu de ces minima est appelé la vallée de stabilité. Les noyaux ayant un plus grand nombre de neutrons que ceux situés dans la vallée de stabilité sont dits, naturellement, riches en neutrons. Les neutrons y sont moins liés que les protons. Une autre façon d'exprimer cette propriété est de dire que leur potentiel chimique, noté μ_n , est plus élevé que celui des protons, noté μ_p , on a alors $\mu_n > \mu_p$.

D'autre part, la compétition entre l'attraction nucléaire et la répulsion coulombienne fait que l'énergie de liaison par nucléon commence par croître puis décroît, comme on peut le voir sur la figure 2. Sur cette figure on remarque, en dehors de la tendance générale décrite ci-dessus, des pics dans les énergies de liaison par nucléon. Ces pics correspondent aux noyaux magiques. Leur grande stabilité, en particulier celle du noyau α ($Z = N = 2$) est remarquable.

(1) Pour obtenir la masse du noyau il faut ajouter à son énergie de liaison, divisée par c^2 , Z fois la masse du proton et N fois la masse du neutron.

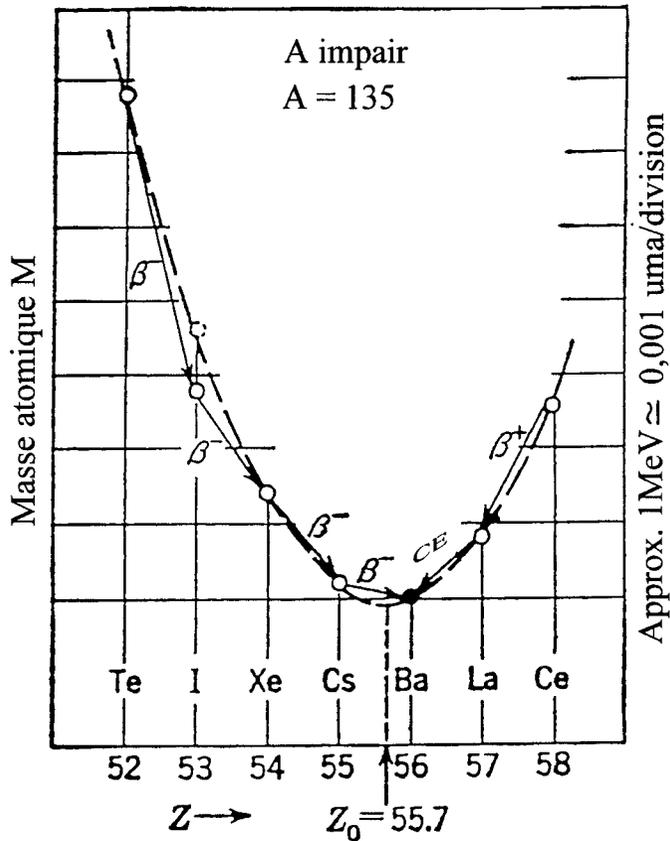


Figure 1 : Exemple de la variation, en fonction de la charge, des énergies de masse d'isobares de nombre de masse impair.

3.1. Énergie de liaison des neutrons

Les réactions entre neutrons et noyaux ayant d'importantes applications, il est particulièrement intéressant de discuter de l'énergie de liaison (séparation) des neutrons dans le noyau. Il s'agit là de l'énergie minimale nécessaire pour extraire un neutron du noyau, et inversement, l'énergie minimale produite lors de l'agrégation (capture) d'un neutron additionnel à un noyau.

Considérons tout d'abord la partie régulière de la formule de masse. L'énergie de liaison des neutrons dans les noyaux stables varie entre une dizaine de MeV pour les noyaux légers et environ 5 MeV pour les noyaux les plus lourds. Cette décroissance est un effet subtil de la répulsion coulombienne.

Les effets de couche conduisent à une nette augmentation de l'énergie de

liaison des derniers neutrons d'une couche, et au contraire, à une diminution de celle des premiers neutrons d'une couche. Ainsi, l'énergie de liaison d'un neutron dans le plomb 207 vaut 6,7 MeV alors que celle d'un neutron dans le plomb 209 vaut 3,9 MeV.

Une autre cause de discontinuité dans l'énergie de liaison des neutrons est l'effet pair-impair (dû au terme de Parité). Les neutrons appariés sont plus liés que les neutrons célibataires de la quantité 2Δ . C'est ainsi que pour l'uranium 238 l'énergie de liaison du neutron vaut 6,15 MeV tandis que pour l'uranium 239, elle vaut 4,8 MeV.

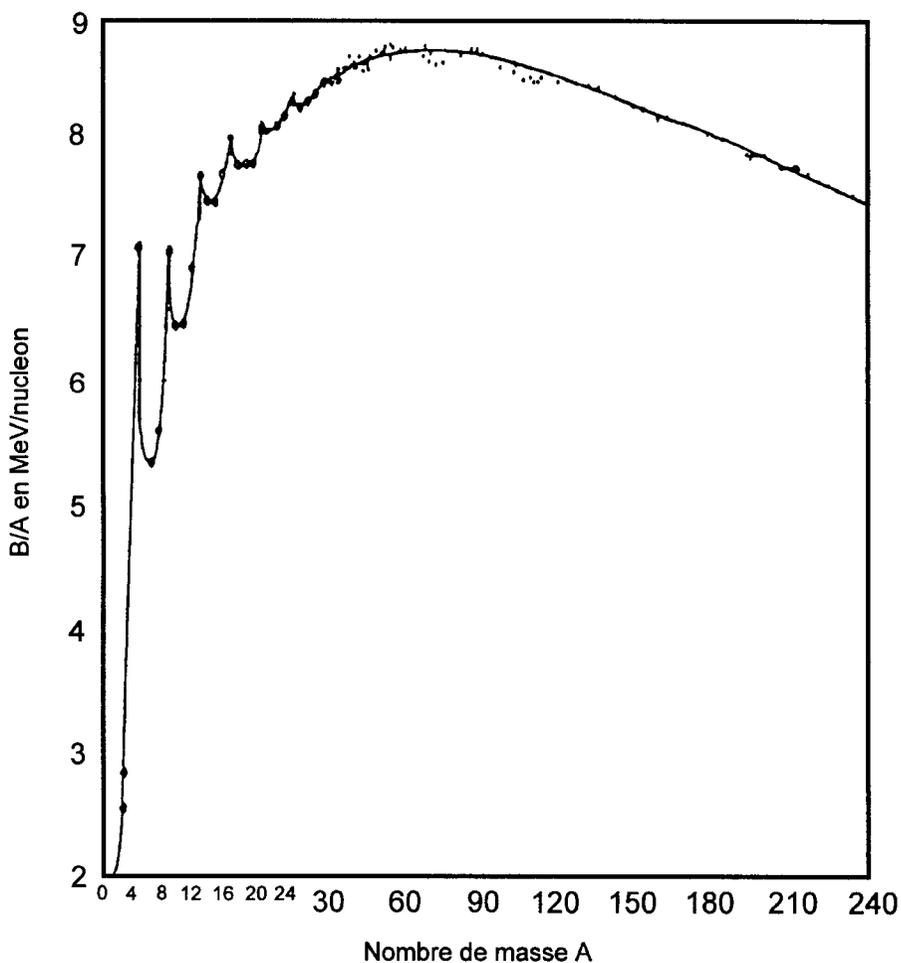


Figure 2 : Variation de l'énergie de liaison moyenne par nucléon, pour les noyaux stables, en fonction du nombre de masse A.

3.2. Valeurs numériques

Typiquement le rayon des noyaux est donné par la formule empirique⁽²⁾ : $R_N = 1,35 A^{2/3}$. La densité nucléaire dite de saturation, qui régnerait au sein d'une matière nucléaire infinie et qui est proche de celle trouvée au centre des noyaux lourds est de 0,17 nucléons/Fermi³.

Le potentiel nucléaire moyen vaut environ $V \cong -45$ MeV.

Les nucléons, du fait du principe de Pauli, remplissent tous les états jusqu'à une énergie cinétique maximum, dite énergie de Fermi, et qui vaut environ $\epsilon_F = 37$ MeV.

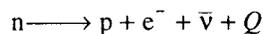
On appelle états de particule les états que peut prendre un nucléon isolé. La densité de ces états dans la région du niveau de Fermi est, pour un gaz de Fermi, donné par la relation $g(\epsilon_F) = 3A / (2\epsilon_F)$. L'espacement entre ces niveaux est donc de l'ordre de la centaine de keV pour des noyaux relativement lourds.

La modulation des états de particule par les effets de couche est notablement plus importante et vaut environ $\epsilon_{sh} = 40/A^{1/3}$. Elle est de l'ordre de 7 MeV pour le plomb. On voit donc qu'une énergie de l'ordre de 7 MeV sera nécessaire pour exciter des noyaux magiques, pour lesquels tous les états de la dernière couche sont remplis, tandis qu'il suffira de 0,1 MeV entre les couches.

4. La radioactivité

4.1. Radioactivité β

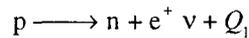
Expérimentalement on trouve que le neutron est instable. Sa période de désintégration est de 918 s et il se désintègre par la réaction :



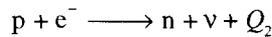
Cette réaction, où l'on observe une production d'un électron associé à un changement de charge d'un nucléon est une désintégration β^- . Elle est due à une interaction fondamentale entre particules élémentaires, appelée interaction faible. La présence d'une particule neutre indétectable à l'époque, le neutrino, avait été conjecturée par E. Fermi pour assurer la conservation de l'énergie dans la désintégration du neutron. Cette particule a été ultérieurement détectée à proximité de sources intenses de désintégration β comme les réacteurs.

(2) Du fait de la diffusivité de la surface du noyau, différentes définitions du rayon nucléaire sont possibles et correspondent à différentes valeurs du paramètre r_0 pris ici égal à 1,35, et correspondant à la distance entre le centre du noyau et le point où la densité nucléonique est de l'ordre de 10 % de sa valeur au centre.

Proton et neutron font partie de la famille des baryons (particules lourdes) tandis qu'électrons et neutrinos (ν) appartiennent à celle des leptons. Dans les réactions nucléaires, le nombre de baryons et le nombre de leptons sont toujours conservés. Pour conserver ces nombres toute apparition d'une particule doit être accompagnée par celle d'une antiparticule. L'électron étant une particule (on dit qu'il a un nombre leptonique +1), il doit être accompagné d'une antiparticule possédant un nombre leptonique égal à -1 . Le neutrino est donc, en fait, un antineutrino et est noté $\bar{\nu}$. Le sens de la désintégration du neutron vers le proton est déterminé par la plus grande masse du neutron. La différence de masse est $Q = m_n c^2 - m_p c^2 = 1,3 \text{ MeV}$. De cette différence de masse, $0,511 \text{ MeV}$ sont nécessaires à la création de l'électron, la masse du neutrino étant nulle. Tout comme dans les réactions chimiques, si l'environnement est susceptible de fournir l'énergie nécessaire (hautes température comme par exemple dans les étoiles ou énergie potentielle) la réaction inverse $n + e^- + \bar{\nu} \longrightarrow p - Q$ est en principe possible. En fait, cette réaction à trois corps est très peu probable et elle laisse la place à deux réactions légèrement différentes mettant en œuvre les antiparticules des deux leptons, il s'agit des réactions :



et :



La première réaction correspond à une désintégration β^+ , la deuxième à une capture électronique.

Le noyau se comporte comme un laboratoire au sein duquel les trois types de réactions décrites plus haut peuvent avoir lieu. Les potentiels chimiques des neutrons et des protons y tiennent lieu des masses de ces particules libres. On peut observer les trois types de désintégrations :

- désintégration β^- si $\mu_n - \mu_p > 0,511 \text{ MeV}$;
- capture électronique si $\mu_p > \mu_n$;
- désintégration β^+ si $\mu_p - \mu_n > 0,511 \text{ MeV}$.

Il faut remarquer que les énergies disponibles pour la désintégration β dépendent notablement du caractère pair ou impair du nombre de masse A des noyaux. En effet, si cette masse est paire, Z et N ont tous deux la même parité. Les noyaux pair-pair ont des énergies de masse systématiquement plus petites de 2 à 4 MeV que celles des noyaux impair-impair. Cette plus grande stabilité des noyaux pair-pair interdit leur désintégration vers des noyaux impair, dans la région de la vallée de stabilité. Ce phénomène explique que les éléments de charge paire ont, en général, un plus grand nombre d'isotopes stables. La situation pour les masses paires est illustrée sur la figure 3.

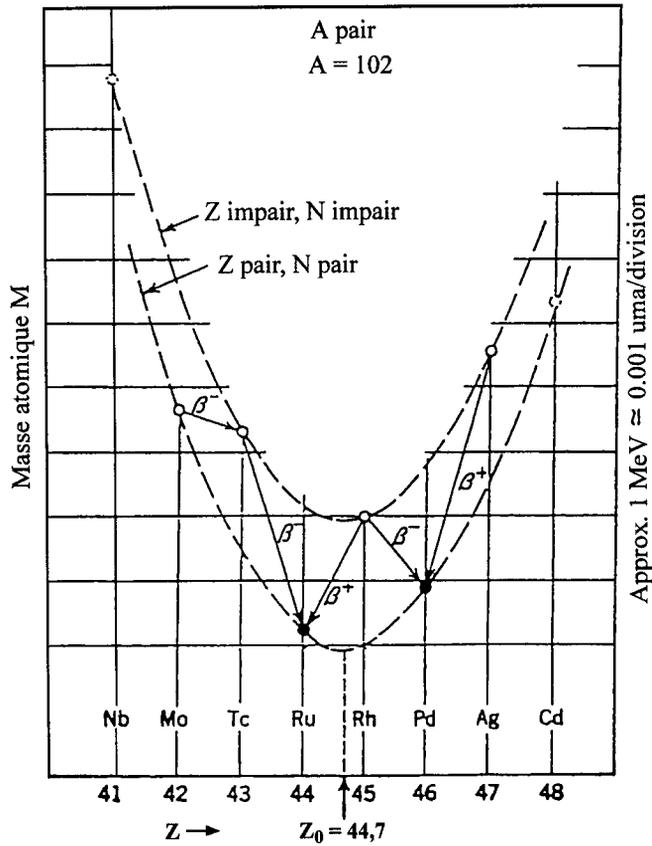


Figure 3 : Exemple de la variation, en fonction de la charge, des énergies de masse d'isobares de nombre de masse pair.

4.1.1. Périodes de décroissance

La période de décroissance β dépend fortement de l'énergie Q disponible pour la transition et varie en Q^{-5} . Elle dépend aussi du détail de l'état initial et de l'état final du nucléon subissant la désintégration. *Les périodes sont comprises entre quelques millisecondes et quelques centaines de milliers d'années.*

4.1.2. Particules associées

Après désintégration, il est possible que le noyau résultant de la désintégration β se trouve dans un état excité. Habituellement cet état se désexcite à son tour par émission de rayonnement γ . Toutefois, si l'énergie de la désintégration est

suffisamment grande, l'énergie d'excitation dans le noyau résultant de la désintégration β peut être suffisante pour permettre l'émission d'une particule. Ceci est particulièrement fréquent dans le cas des transitions β^- , qui donnent alors lieu à l'émission de neutron, dits neutrons retardés. Le mécanisme par lequel cette émission se produit est illustré sur la figure 4.

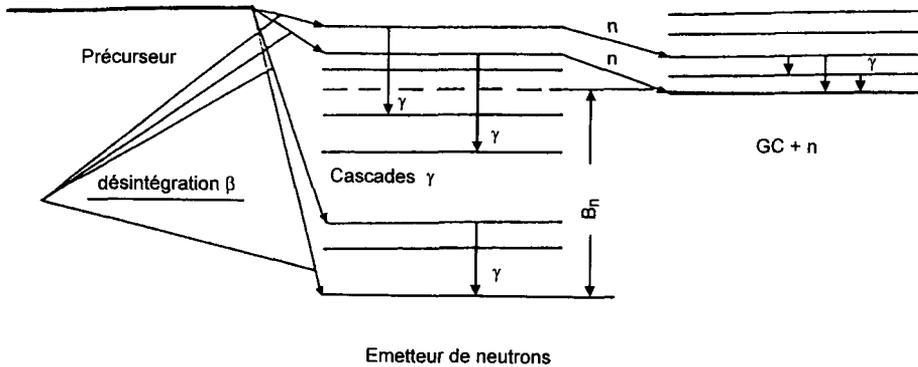


Figure 4 : Explication schématique de l'émission d'un neutron retardé. Sur la gauche, le niveau d'énergie du noyau émetteur β de masse A et de charge Z . Après désintégration de ce noyau, le noyau résiduel, de masse A et de charge $Z + 1$, se retrouve dans un des états d'énergie représenté au centre de la figure. Les niveaux les plus élevés sont situés au-dessus du seuil d'émission du neutron, et donnent donc lieu à l'émission de neutron pour donner le noyau final de masse $A - 1$ et charge $Z + 1$ (à droite de la figure).

4.2. Radioactivité α

D'une façon générale, un noyau A peut se désintégrer en plusieurs composants si le bilan en énergie de la réaction $A \longrightarrow \sum_i B_i$ est positif. Ce bilan s'écrit :

$$Q = M_A c^2 - c^2 \sum_i M_{B_i}$$

Du fait de son exceptionnelle stabilité la particule α , qui n'est autre que le noyau d'hélium ($Z = 2$, $A = 4$), conduit, en particulier pour les noyaux lourds qui sont d'autant moins liés qu'ils sont lourds, à des bilans d'énergie positifs :

$$Q_\alpha(Z, N) = M(Z, N) c^2 - M_\alpha c^2 - M(Z - 2, N - 2) c^2 > 0$$

Lorsqu'une telle désintégration se produit, on est en présence de la radioactivité α . Même les noyaux situés dans la vallée de stabilité qui ne peuvent, à l'évidence, émettre de nucléons, peuvent émettre des particules α . Toutefois, l'existence dans la nature de noyaux susceptibles d'émettre des particules α montre que celle-ci est, en fait, impossible ou fortement retardée. Cette inhibition est due à l'existence d'une barrière de potentiel qui ne peut être franchie que par effet tunnel.

Cette barrière est le résultat de la répulsion coulombienne qui s'exerce entre la particule α et le noyau. On peut en avoir une estimation quantitative en calculant l'énergie potentielle de la configuration formée par la particule α au contact du noyau, soit⁽³⁾ :

$$V_c \text{ (MeV)} = \frac{2Ze^2}{1,35(A^{1/3} + 4^{1/3})} = 2,13 \frac{Z}{A^{1/3} + 1,58}$$

À titre d'exemple, pour l'uranium 238, on trouve 25 MeV. Selon les tables de masse, on trouve pour la réaction ${}^{238}\text{U} \longrightarrow {}^4_2\alpha + {}^{234}\text{Th}$:

$$\begin{aligned} Q_\alpha &= M(92, 238)c^2 - M(90, 234)c^2 - M(2, 4)c^2 \\ &= 47,305 - 40,610 - 2,425 = 4,27 \text{ MeV} \end{aligned}$$

On voit donc que le système devra franchir une barrière de potentiel ($V_c - Q_\alpha$) de près de 20 MeV. L'étude du processus quantique de passage sous cette barrière conduit à l'expression simple suivante, due à Gamow, et qui exprime le nombre de désintégrations α par seconde :

$$\lambda = 1,2 \times 10^{21} e^{-\gamma} \text{ s}^{-1}$$

où γ est le facteur de Gamow qui pour les noyaux ayant des nombres Z et N pairs vaut approximativement :

$$\gamma = 3,959 \frac{Z_{\text{final}}}{\sqrt{Q_\alpha}} - 2,97 \sqrt{Z_{\text{final}} R_\alpha}$$

Ici le paramètre $R_\alpha = 1,45 A^{1/3}$ est déterminé de manière empirique. La charge Z_{final} est la charge du noyau résiduel après émission de la particule α . La formule semi-empirique donne alors une demi-vie de $3,8 \times 10^9$ ans pour l'uranium 238, à comparer à la valeur expérimentale de $4,47 \times 10^9$ ans. Compte tenu de la variation très rapide de la demi-vie en fonction des paramètres donnant le facteur de Gamow, l'accord est satisfaisant. La demi-vie α des noyaux ayant un nombre impair de protons ou(et) de neutrons est plus longue que celle prévue par la formule de Gamow, à cause d'effets de moment angulaire. Ce comportement est montré sur la figure 5 où est représentée la corrélation entre l'énergie des particules α et la demi-vie.

L'augmentation de la répulsion coulombienne dans les noyaux lourds favorise l'émission de particules α par ces derniers, puisque celle-ci diminue la charge du noyau. En principe donc, on s'attend à ce que l'énergie de la désintégration α augmente avec la charge des noyaux, et donc que la période de cette désintégration diminue corrélativement. Cette tendance générale peut toutefois être contrariée localement par les effets de couche. C'est ainsi que pour les noyaux situés immédiatement au-delà du noyau doublement magique ${}^{208}\text{Pb}$, l'énergie des transitions α décroît quand la charge des noyaux croît du plomb au thorium. En

(3) Avec le MeV comme unité d'énergie et le Fermi comme unité de longueur, on trouve $e^2 = 1,44 \text{ MeV Fermi}$.

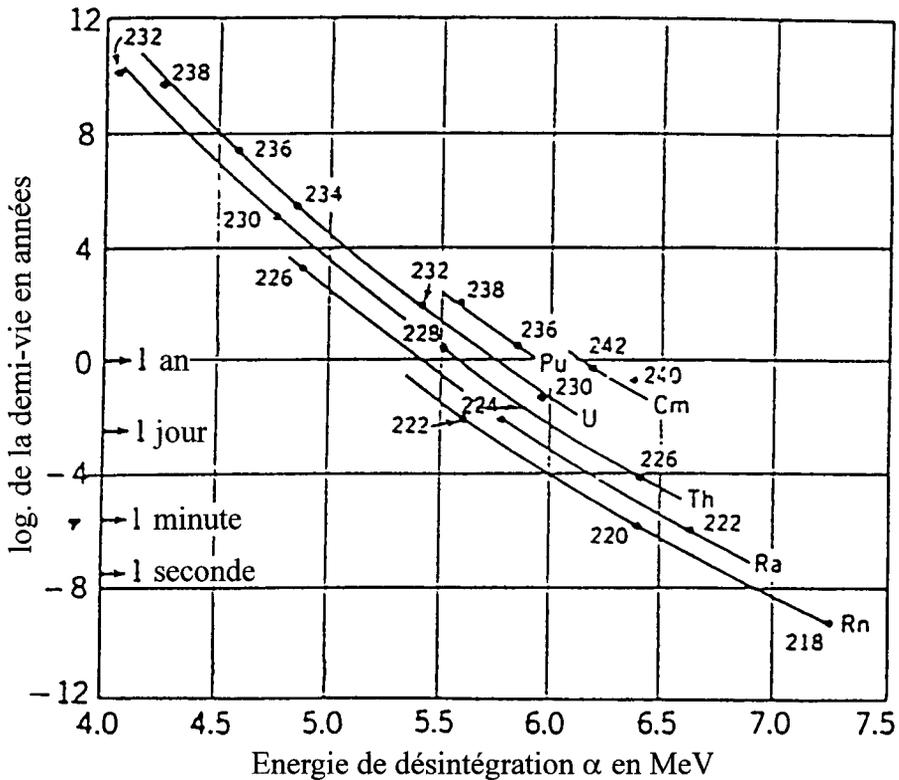


Figure 5 : Corrélation entre les demi-vies pour la désintégration α et l'énergie de la particule α . La nature des noyaux pères est indiquée. Les différentes courbes continues correspondent aux prédictions de la théorie phénoménologique.

effet, l'énergie de liaison supplémentaire due à l'effet de couche décroît très rapidement au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la couche complète. Cet effet qui augmente le bilan en énergie de la désintégration α s'atténue progressivement et disparaît pratiquement aux environs du thorium. Au-delà du thorium, la tendance s'inverse et la période radioactive diminue du fait, comme nous l'avons dit, de l'instabilité coulombienne croissante des noyaux. Ce comportement explique pourquoi seuls, parmi les noyaux plus lourds que le plomb, le thorium et l'uranium possèdent des isotopes de très longues demi-vies. Parmi les noyaux de charge plus faible que le thorium, seul le radium 226 a une demi-vie supérieure à trente ans.

Remarquons qu'une différence minimale entre l'énergie de liaison du noyau initial et celle du noyau final de 2,425 MeV est nécessaire pour permettre l'émission de la particule α . Pour les noyaux stables de charge inférieure à celle du plomb, l'énergie disponible pour la désintégration α devient très faible et la durée de vie des noyaux si longue qu'on peut les considérer comme stables. Par exemple, la durée de vie du platine 194 atteindrait 4×10^{45} ans.

5. Interaction neutrons-noyaux

Les neutrons peuvent soit être diffusés élastiquement par les noyaux (sans les pénétrer) c'est la diffusion élastique potentielle, soit pénétrer à l'intérieur du noyau. Dans ce dernier cas on dit qu'il y a réaction dont la probabilité est caractérisée par une section efficace de réaction. Du fait du principe d'exclusion de Pauli, le libre parcours moyen du neutron venant de pénétrer dans le noyau est grand (de l'ordre de 20 Fermis), supérieur au diamètre nucléaire. On pourrait penser que, dans ces conditions, le neutron ressortirait immédiatement du noyau. En fait, il n'en est rien car le neutron se trouve piégé par un effet quantique : une particule se présentant devant une discontinuité de potentiel a une probabilité finie d'être réfléchi, même si son énergie cinétique excède la valeur de la barrière de potentiel. Si le neutron a un nombre d'onde k à l'extérieur du noyau et K à l'intérieur, la transmission de la barrière est donnée par l'expression :

$$\theta \cong \frac{4kK}{(k+K)^2} \cong 3,4 \times 10^{-4} \sqrt{\epsilon_{ev}}$$

où l'expression finale est valable pour les petites énergies de neutrons. Cette valeur faible de la transmission est à l'origine du modèle du noyau composé de Bohr. En effet, en l'absence de collisions, le neutron parcourrait une très longue distance dans le noyau avant d'avoir une probabilité finie d'en ressortir. Même si le libre parcours moyen du neutron est grand, il est beaucoup plus faible que cette distance. Il s'ensuit que le neutron subit des diffusions qui abaissent son énergie de sorte qu'il devient incapable de sortir. Son énergie est alors partagée entre de nombreux nucléons et un quasi-équilibre statistique est atteint. Le noyau composé se caractérise alors, avec une bonne approximation, par une température et par une entropie. La figure 6 illustre l'évolution vers l'équilibre statistique du noyau.

Le niveau fondamental du noyau est tel que les nucléons occupent les états les plus bas possible en énergie. La borne supérieure de ces états est le niveau de Fermi. Dans un noyau excité certains des états non occupés dans l'état fondamental et situés au-dessus du niveau de Fermi sont occupés ; ce sont des états de particule. Au contraire, certains des états situés sous le niveau de Fermi ne sont plus occupés ; ce sont des états de trous. Chaque combinaison particulière de particules et de trous donne naissance à un état du noyau composé. Le caractère discret du spectre d'excitation de particules et de trous conduit également à un caractère discret des états du noyau composé (les résonances), que l'on peut caractériser par leur densité dans l'espace des énergies. Cette densité est, en première approximation, égale à celle d'un gaz de Fermi :

$$\rho(E^*) \cong \frac{e^{2\sqrt{aU}}}{U^{3/4}}$$

où $a \cong A/8$. Ici E^* est l'énergie d'excitation du noyau composé. Dans le cas de la capture d'un neutron d'énergie ϵ , $E^* = \epsilon + B_n$ où B_n est l'énergie de liaison du

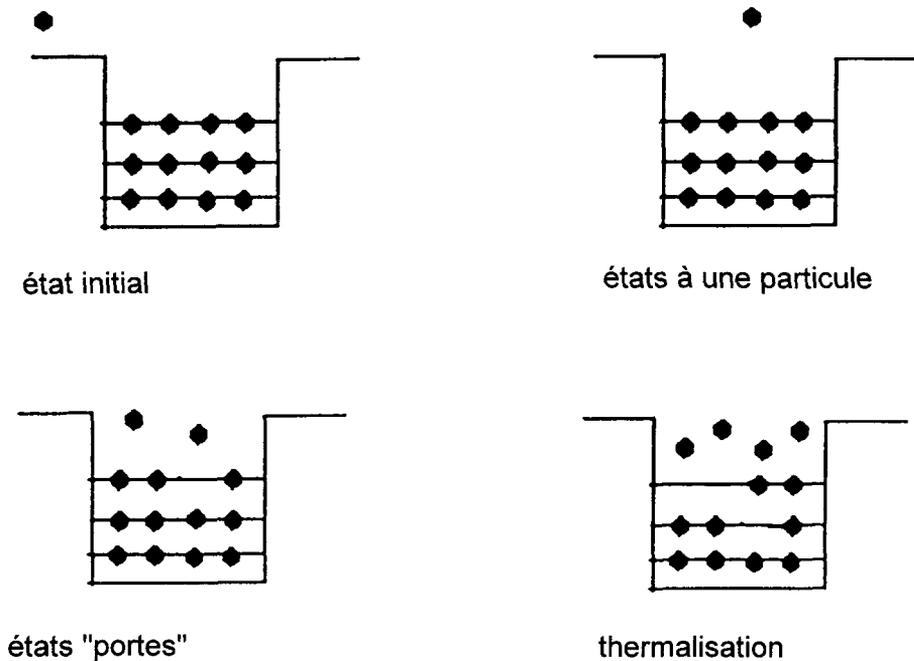


Figure 6 : Représentation schématique de l'évolution d'un noyau composé vers l'équilibre. Dans l'état initial le noyau de masse A est dans son état fondamental et le neutron libre a une énergie cinétique ϵ . Immédiatement après avoir pénétré dans le noyau le neutron occupe un état de particule d'énergie $B_n + \epsilon$. Le neutron subit alors des collisions avec les autres nucléons du noyau au cours desquelles il perd de son énergie au bénéfice de ceux-ci. Les nucléons excités sautent d'un état situé au-dessous du niveau de Fermi à un état situé au-dessus de celui-ci, créant une excitation particule-trou. L'état du noyau après la première de ces collisions est représenté. Un tel état est appelé "état porte". Chacun des nucléons excités peut, à son tour, subir une collision avec d'autres nucléons et le noyau évolue alors vers un état compliqué à n particules et $n - 1$ trous.

neutron. À énergie d'excitation égale, les noyaux ayant un nombre de neutrons et(ou) de protons impair ont une densité d'états plus grande. Pour tenir compte de cet effet, on introduit une énergie d'excitation effective $U = E^* - \Delta_n - \Delta_p$. Ici $\Delta_n = 0$ ($\Delta_p = 0$) si le nombre de neutrons (protons) du noyau composé est impair et $\Delta_n = \Delta_p = \Delta$ dans le cas contraire. À un niveau plus fin de description, on trouve aussi que la densité de niveau est plus faible aux alentours des noyaux magiques. L'espacement entre niveaux est évidemment l'inverse de la densité de niveaux.

Comme indiqué plus haut, le noyau peut être considéré comme étant à l'équilibre statistique. Utilisant la formule de densité de niveau, on peut définir une température interne du noyau : $T = \sqrt{U/a}$.

D'une façon générale, pour une énergie d'excitation égale à l'énergie de liaison des neutrons, on observe les comportements suivants :

- la densité de niveaux au seuil d'émission de neutrons augmente avec la masse des noyaux. L'espacement entre niveaux atteint le MeV pour les noyaux très légers et est inférieur à l'électron-volt pour les noyaux très lourds ;
- toujours au seuil d'émission de neutron, la densité de niveaux est plus faible pour les noyaux ayant un nombre de neutrons impair (^{239}U) que pour les noyaux ayant un nombre de neutrons pair (^{236}U). Ce comportement est le résultat de deux effets antagonistes :
 - au seuil d'émission de neutrons, l'énergie d'excitation des noyaux ayant un nombre de neutrons impair est plus faible ;
 - à énergie d'excitation donnée, la densité de niveaux des noyaux ayant un nombre de neutrons impair est plus forte ;
- les densités de niveaux passent par un minimum aux environs des couches magiques. C'est ainsi que les espacements de niveaux dans le plomb 208 dépassent plusieurs dizaines de keV, alors que pour les isotopes du tungstène ou de l'uranium elles sont de l'ordre de 1 eV ;
- la section efficace de réaction des neutrons de faible énergie avec les noyaux est d'autant plus grande, en général, que la densité de niveaux au seuil d'émission du neutron est grande. C'est ainsi que la section efficace de réaction des neutrons avec le plomb est très faible, alors qu'elle est très élevée avec l'uranium 235, le cas de l'uranium 238 étant intermédiaire.

6. Morphologie des sections efficaces

6.1. Section efficace microscopique

Le nombre d'interactions nucléaires par unité de temps, noté N , obtenu par un flux incident ϕ de particules sur une surface S d'épaisseur d est donné par l'expression :

$$N = 6 \times 10^{23} S \phi \frac{\rho d}{A} 10^{-24} \sigma = 0,6 n \phi \sigma S$$

où ρ est le poids spécifique du milieu, n le nombre d'atomes par unité de surface, σ la section efficace exprimée en barns. Ici, σ est la section efficace totale d'interaction. Si l'on s'intéresse à un phénomène particulier, on est amené à parler d'une section efficace partielle $\sigma_{(i)}$. Le rapport de la section efficace partielle à celui de la section efficace totale définit la largeur partielle $\Gamma_{(i)}$ de réaction, $\Gamma_{(i)} / \Gamma = \sigma_{(i)} / \sigma$, où Γ est la largeur totale de réaction.

6.2. Les états résonants

Les niveaux du noyau composé ou résonances ne sont pas stables. Ils ont une durée

de vie τ finie et donc une largeur en énergie non nulle $\Gamma = \hbar/2\pi\tau$. Le mouvement interne des protons peut donner lieu à émission de photons, tout comme celui des électrons dans le cas atomique. Ce processus correspond à la largeur radiative de la résonance Γ_γ . En l'absence d'autres phénomènes, le noyau composé peut, avec une fréquence dite fréquence de Poincaré, retrouver son état initial et donc, réémettre le neutron. Ce processus correspond à la diffusion élastique résonante dont la largeur est Γ_n . Si l'énergie d'excitation est suffisante, le neutron peut être réémis alors qu'une énergie d'excitation résiduelle demeure dans le noyau. C'est la diffusion inélastique, de largeur Γ_n^{in} . Particulièrement pour les noyaux légers, des particules chargées peuvent être émises. Nous regrouperons les largeurs correspondantes sous le symbole Γ_{part} . Enfin, dans certains cas, et tout particulièrement pour les noyaux lourds, une fission peut survenir, la largeur correspondante étant Γ_f . La largeur totale de la résonance est simplement égale à la somme des largeurs partielles : $\Gamma = \Gamma_n + \Gamma_n^{in} + \Gamma_{part} + \Gamma_f + \Gamma_\gamma$.

La forme des résonances individuelles est donnée par l'expression de Breit-Wigner, écrite ici pour la capture radiative :

$$\sigma_{c(E)} = g \frac{\lambda^2}{4\pi} \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{(E - E_R)^2 + (\Gamma/2)^2}$$

où E_R est l'énergie de la résonance, $\lambda = 2,87 \times 10^{-9} E_{ev}^{-1/2}$ cm et g un facteur de spin.

Les autres sections efficaces sont obtenues en remplaçant Γ_γ par la largeur correspondante. La section efficace totale est obtenue en remplaçant Γ_γ par la largeur Γ . En particulier l'intégrale sur l'énergie de la section efficace totale est égale à $0,5 g \lambda^2 \Gamma_n$. La figure 7 montre un exemple de section efficace de fission. On remarque une région où les résonances sont bien individualisées. La largeur des résonances augmente rapidement en fonction de l'énergie, au point qu'elle peut devenir supérieure à l'espacement entre résonances. Cette région est celle du continuum.

6.3. Comportement au seuil d'émission de neutrons

On voit sur la figure 7 un comportement caractéristique pour les très basses énergies des neutrons incidents : la section efficace varie comme l'inverse de la vitesse des neutrons. Ce comportement est la résultante de deux effets :

- la section efficace totale est proportionnelle au carré de la somme des rayons du noyau et du neutron soit à $(R + \lambda/2\pi)^2$. Ici R est le rayon du noyau et $\lambda/2\pi$ est la longueur d'onde réduite du neutron qui lui tient lieu de rayon. Cette longueur d'onde est inversement proportionnelle à la vitesse du neutron. Par conséquent, aux faibles vitesses, la section efficace totale est inversement proportionnelle au carré de la vitesse ;

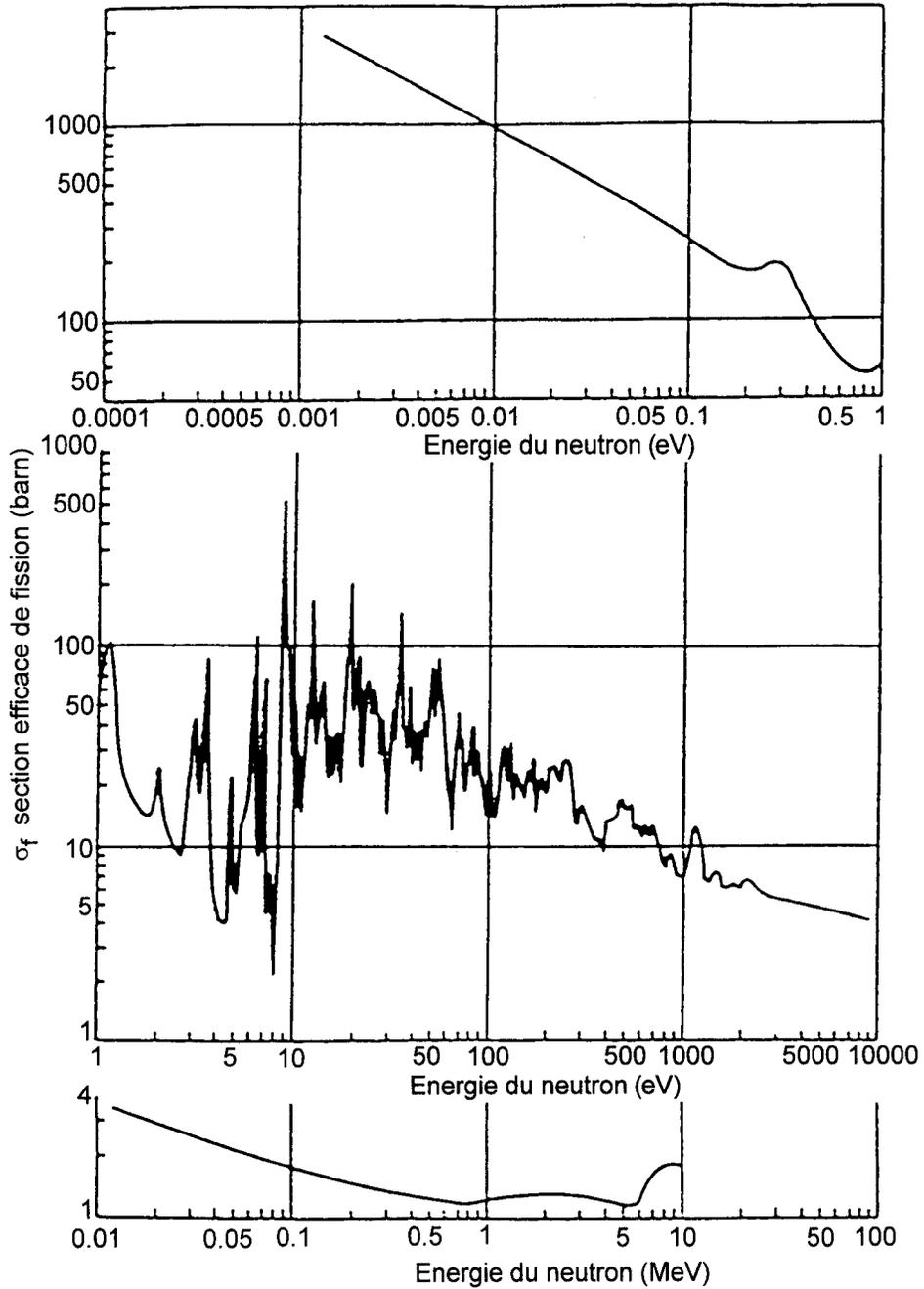


Figure 7 : Section efficace de fission de l'uranium 235 pour trois domaines d'énergie de neutrons.

- la probabilité de pénétration du neutron à l'intérieur du noyau est proportionnelle à la transmission de la barrière de potentiel qui, pour les faibles énergies de neutrons, est proportionnelle au nombre d'onde k , et donc à la vitesse.

Le produit des deux dépendances ci-dessus conduit à une dépendance inversement proportionnelle à la vitesse du neutron. Remarquons que, dans le cas de la diffusion élastique résonante, le terme de transmission intervient une deuxième fois à la sortie du neutron, ce qui conduit à une section efficace indépendante de la vitesse.

6.4. La région du continuum

Lorsque la largeur des résonances excède leur espacement, on entre dans le domaine du continuum. Lorsque l'énergie des neutrons approche d'un niveau non lié du potentiel nucléaire sa probabilité d'interaction, et donc la section efficace de réaction augmentent. Cet effet conduit à une modulation notable des sections efficaces.

7. Ralentissement des neutrons

Les processus de diffusions élastique et inélastique conduisent à une perte d'énergie du neutron diffusé. Ceci est évident dans le cas de la diffusion inélastique qui laisse le noyau diffuseur dans un état excité, dont l'énergie d'excitation est prise au détriment du neutron incident. Dans le cas de la diffusion élastique, la perte d'énergie résulte de la mise en mouvement du noyau diffuseur. En effet, la diffusion n'est élastique que dans le système du centre de masse de l'ensemble neutron-noyau diffuseur. Toute diffusion du neutron à un angle différent de zéro conduit, dans le référentiel du laboratoire, à un partage de l'impulsion initiale entre le neutron et le noyau diffuseur. La plus grande perte d'impulsion du neutron survient lors d'une rétrodiffusion.

Il existe une relation entre énergies finale et initiale. Dans le cas de la rétrodiffusion, l'énergie finale des neutrons est $E'_n = E_n [1 - 4A/(A+1)^2]$. Dans le cas d'une diffusion à un angle θ , l'énergie finale est donnée par :

$$E_n - E'_n(\theta) = 2AE_n \frac{1 - \cos\theta}{(A+1)^2}$$

Il s'ensuit que, après une diffusion isotrope, l'énergie du neutron est équiprobable entre E_n et $E'_n(\pi)$. La perte relative d'énergie après une diffusion élastique est alors indépendante de l'énergie et vaut $\Delta E/E = 2A/(A+1)^2$.

8. Le processus de fission

L'énergie de surface des noyaux est minimale pour la configuration sphérique, configuration qui minimise la surface. Au contraire, l'énergie coulombienne entre protons est maximale pour la configuration sphérique qui présente la compacité maximale. On conçoit donc que, pour des charges suffisamment élevées, les noyaux deviennent instables. Cette instabilité doit se développer quand le rapport de l'énergie coulombienne à l'énergie de surface excède une valeur critique. Compte tenu de l'expression de ces deux énergies en fonction de Z et de A , cette valeur critique correspond à une valeur déterminée de l'ordre de $Z^2/A \cong 50$. Cette valeur est modifiée par les effets de couche au point que les derniers noyaux découverts ($Z = 110, 111, 112$) ne doivent leur stabilité qu'à ceux-ci.

8.1. La barrière de fission

Pour décrire plus en détail comment cette instabilité peut se développer, on étudie la variation de l'énergie du noyau pour des déformations caractérisées par un paramètre de d'allongement α . On trouve alors que, pour les valeurs de $Z^2/A < (Z^2/A)_{\text{crit}}$ la forme sphérique est localement stable, mais qu'il existe une déformation critique au-delà de laquelle le noyau évolue vers une configuration dinucléaire. Cette déformation critique est dénommée point selle⁽⁴⁾. En effet, la configuration ressemble alors à un col ou à une selle. La différence entre l'énergie du noyau au point selle et celle du noyau sphérique est appelée, de manière abrégée, la barrière de fission notée B_f :

$$B_f = E(\alpha_{\text{sp}}) - E(\alpha = 0)$$

La figure 8 représente la forme de la barrière de fission. Les effets de couche peuvent modifier considérablement la forme de cette barrière, en allant jusqu'à la dédoubler.

Lorsque l'énergie d'excitation du noyau composé excède la barrière de fission, la fission devient une voie possible de désexcitation, caractérisée par la largeur Γ_f . Même lorsque l'énergie d'excitation est inférieure à la barrière de fission la fission est possible par effet tunnel sous la barrière : c'est la fission spontanée. La probabilité de ce phénomène est toutefois très faible comparée à l'émission de photon ou à la réémission du neutron. Pour les noyaux dans leur état fondamental, elle peut entrer en compétition avec d'autres modes de radioactivité comme la radioactivité α .

(4) Car dans une description de la déformation par un développement multipolaire tous les termes du développement de l'énergie présentent un minimum en ce point, à l'exception du terme quadrupolaire.

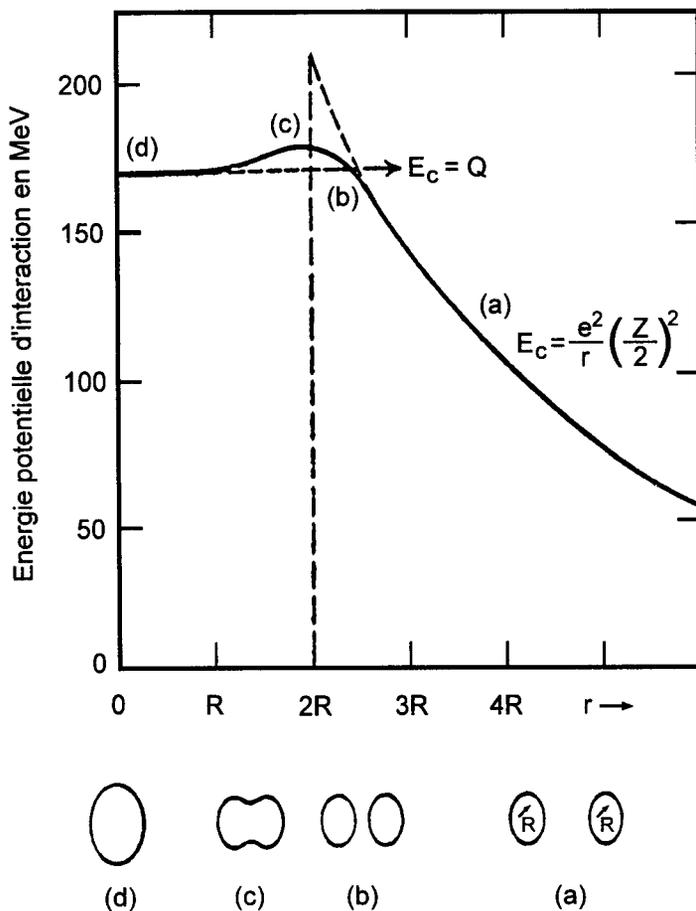


Figure 8 : Représentation schématique de la barrière de fission telle que calculée par le modèle de la goutte liquide.

La barrière de fission est analogue à l'énergie d'activation des réactions chimiques. La figure 9 représente les valeurs des barrières de fission d'un certain nombre de noyaux lourds. On observe que ces barrières varient peu (cette constance est reliée à des effets de couche) et valent environ 6 MeV.

8.2. Distribution des masses des fragments de fission

Pour les noyaux lourds, le processus de fission donne naissance à deux noyaux de masse équivalente, les fragments de fission. En l'absence d'effets de couche, la distribution des masses de ces fragments serait donnée par le modèle de la goutte liquide, et caractérisée par un seul maximum de probabilité pour une fission

symétrique en deux noyaux de masse égale. Les effets de couche conduisent à une distribution bimodale comme on le voit sur la figure 10.

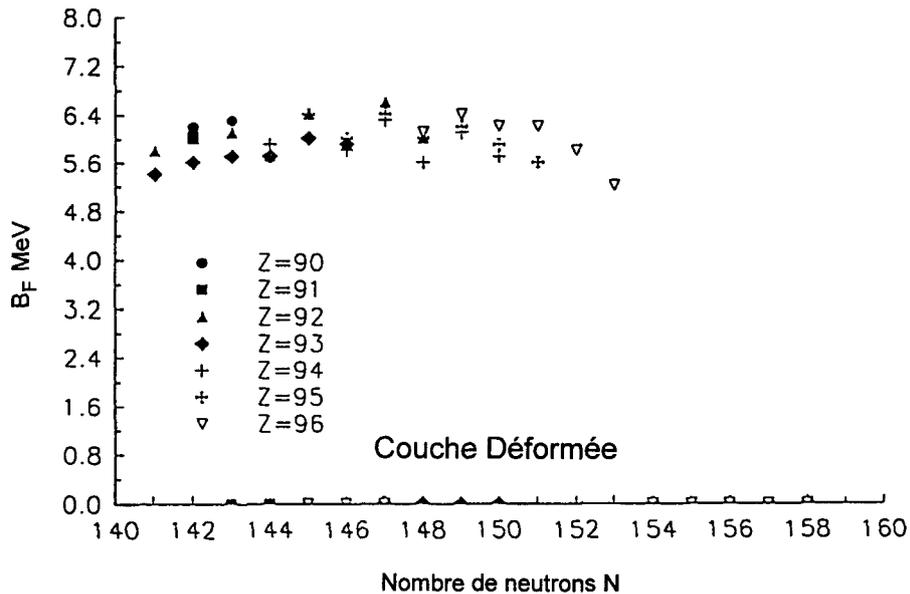


Figure 9 : Valeurs des barrières de fission dans la région des actinides.

Les effets de couche dominant ici sont ceux des couches à 50 et à 82 nucléons. En particulier, le noyau doublement magique, l'étain 132, étant particulièrement lié, stabilise le flanc gauche de la distribution de masse des fragments lourds. Il faut remarquer que la distribution se rapproche de la distribution symétrique unimodale lorsque l'énergie d'excitation du noyau croît. Ce comportement illustré sur la figure 11 est un effet de l'atténuation progressive des effets de couche pour les énergies croissantes. Du fait de la répulsion coulombienne entre protons, les noyaux stables sont de plus en plus riches en neutrons lorsque leur masse augmente. Cette tendance a pour conséquence que les fragments de fission sont riches en neutrons par rapport aux noyaux stables de même masse. De ce fait, ils sont radioactifs β^- . Les noyaux résultant de cette désintégration β sont dénommés les produits de fission.

8.3. Énergie cinétique des fragments

À la fin du processus de fission les deux noyaux résultants ne sont plus en interaction nucléaire. Par contre, la répulsion coulombienne s'exerce toujours entre eux. Cette configuration limite est appelée configuration de scission. Dans une

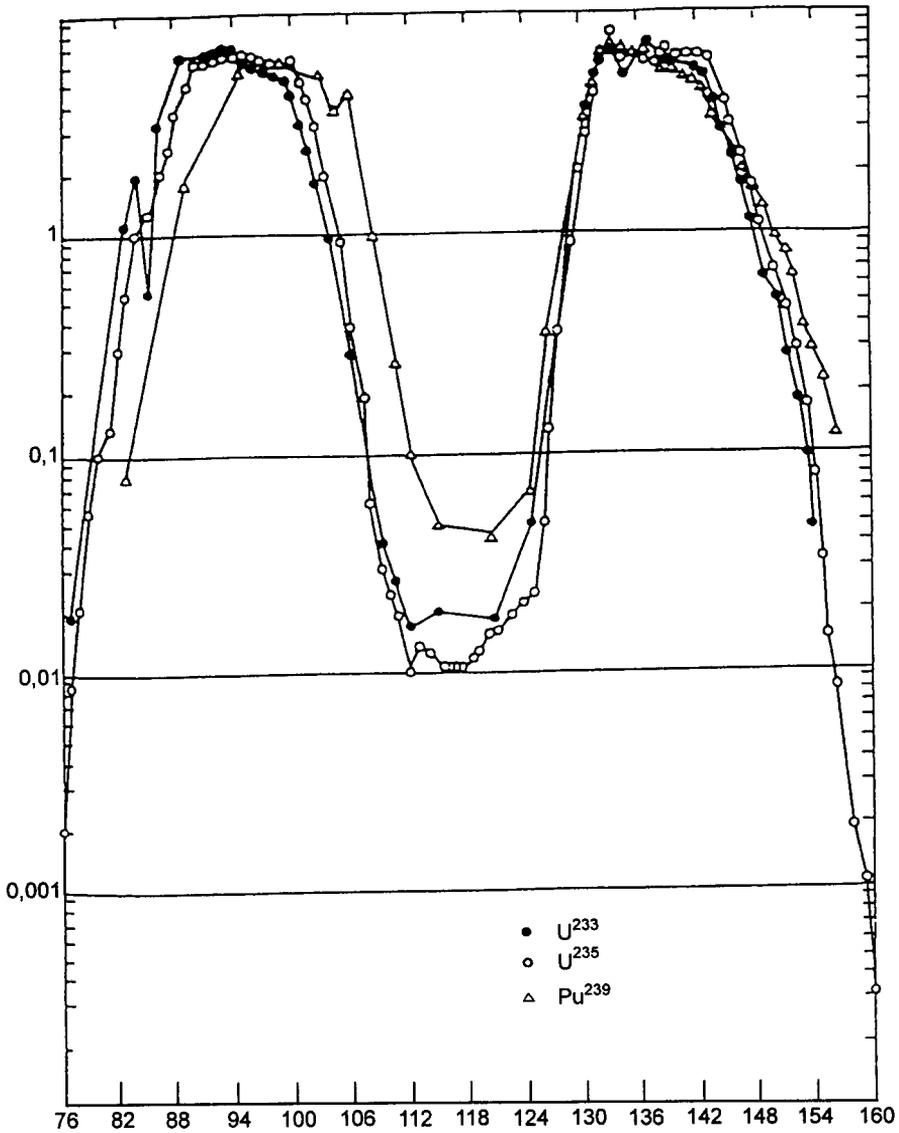


Figure 10 : Distribution en nombre de masse des fragments de fission induite par neutrons thermiques pour les noyaux ^{233}U , ^{235}U et ^{239}Pu .

dernière étape, les deux fragments sont accélérés dans leur champ coulombien mutuel. Une estimation de l'énergie potentielle de répulsion coulombienne entre les deux fragments est donnée par :

$$V_c = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{(R_1 + R_2)} = \frac{1,44 Z_1 Z_2}{1,35 (A_1^{1/3} + A_2^{1/3})}$$

où nous avons pris les rayons nucléaires égaux à $1,35 A^{1/3}$. En supposant une fission symétrique de l'uranium 236, nous trouvons $V_c = 230$ MeV. En réalité la configuration de scission est plus allongée que celle correspondant à deux sphères en contact, les fragments ayant des déformations allongées. Expérimentalement, on trouve que l'énergie cinétique totale des fragments vaut environ 185 MeV pour l'uranium 236.

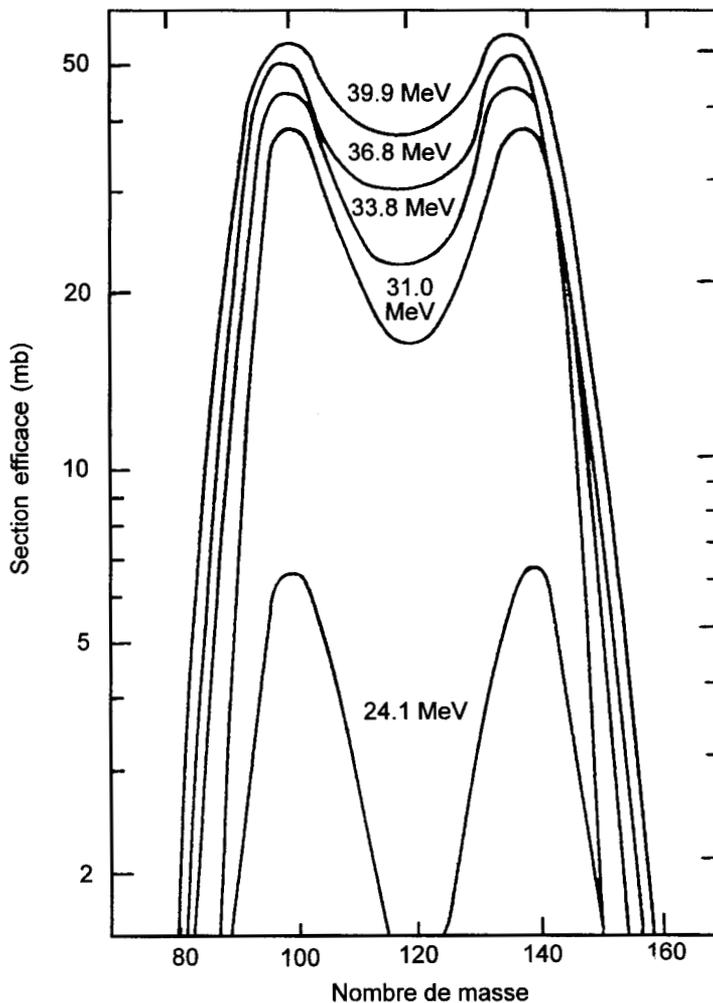


Figure 11 : Évolution de la distribution en nombre de masse des fragments de fission en fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé.

8.4. Émission de neutrons par les fragments de fission

À la fin du processus de fission les fragments sont à la fois déformés par l'effet de polarisation mutuelle qu'ils exercent l'un sur l'autre et échauffés par le couplage entre le mode collectif correspondant à la fission et les modes d'excitation de particules. Typiquement l'énergie d'excitation totale des fragments, immédiatement après la fission est de l'ordre de 20 MeV. Cette énergie donne très rapidement lieu à l'émission de neutrons et de photons. Le nombre de neutrons ainsi émis par les fragments est de l'ordre de 2,5. La température des fragments avant émission de neutrons est de l'ordre de 0,8 MeV, comme on peut le vérifier d'après les considérations de la section 5. Dans le système mobile attaché aux fragments, le spectre énergétique des neutrons est donc un spectre de Maxwell de température égale à 0,8 MeV. La valeur moyenne de l'énergie du neutron dans le système propre aux fragments est donc égale à $2T = 1,6$ MeV. L'énergie cinétique par nucléon des fragments vaut, en moyenne $185/236 \cong 0,8$ MeV. *Dans le système du laboratoire, l'énergie moyenne des neutrons vaut donc environ 2,4 MeV.*

Neutrons retardés

Après émission des neutrons "prompts" les fragments résiduels restent riches en neutron. Ils subissent alors une chaîne de désintégration β^- , d'autant plus rapides et énergétiques que le fragment est riche en neutron. Dans certains cas l'énergie disponible dans la désintégration β est si élevée que le noyau résiduel peut être laissé dans un état d'excitation suffisant pour émettre un neutron. On dit qu'il y a alors émission de neutron retardé. En effet, par rapport à la fission, cette émission a lieu avec un retard déterminé par les constantes radioactives β . Les retards s'étagent entre la fraction de seconde et plusieurs dizaines de secondes. La probabilité d'émission de neutrons retardés est faible, de l'ordre de ou inférieure à 1 % par fission. *Malgré cette faible proportion, ce sont ces neutrons qui autorisent le pilotage des réacteurs.*

8.5. Compétition entre fission et capture

Dans les réacteurs nucléaires la compétition entre réactions de fission et réactions inélastiques est cruciale. Cette compétition est déterminée par les valeurs relatives de la barrière de fission B_f et de l'énergie de liaison du neutron B_n . Rappelons que l'énergie d'excitation du noyau composé est égale à la somme des énergies de séparation et cinétique du neutron absorbé :

$$E^* = B_n + \epsilon$$

Qualitativement la compétition sera déterminée par la grandeur relative des trois quantités E^* , B_n , B_f . Il est évident que E^* est supérieure à B_n . Deux types de réactions sont donc toujours possibles : la capture radiative, avec formation du noyau $(Z, A + 1)$ en partant du noyau (Z, A) et émission de photons, et la diffusion élastique résonnante. Dans le cas de noyaux cibles lourds, cette dernière réaction ne modifie pas notablement les propriétés du neutron, sauf un léger ralentissement. La capture radiative conduit à la disparition du neutron et à la transmutation du noyau. Si l'énergie d'excitation E^* est inférieure à B_f , la fission est interdite ou très fortement inhibée. Dans le cas contraire elle est autorisée. Le cas de l'interaction des neutrons thermiques est particulièrement intéressant et important.

Interactions avec les neutrons lents

Dans ce cas, $\epsilon \cong 0$. Les noyaux A pour lesquels $B_f < B_n$ (dans le noyau $A + 1$) sont dits, par extension, fissiles. Ils sont en effet fissiles par capture d'un neutron lent. Dans la région des actinides, comme on le voit sur la figure 9 les barrières de fission sont de l'ordre de 6 MeV. Il faut d'ailleurs remarquer la relative constance de ces barrières qui est la conséquence d'un effet de couche déformée aux environs de 148 neutrons. Ces barrières de fission sont à comparer aux énergies de séparation des neutrons. La figure 12 présente les valeurs de ces énergies de séparation pour les actinides. Comme indiqué plus haut on remarque que les noyaux ayant un nombre pair de neutrons ont des énergies de séparation

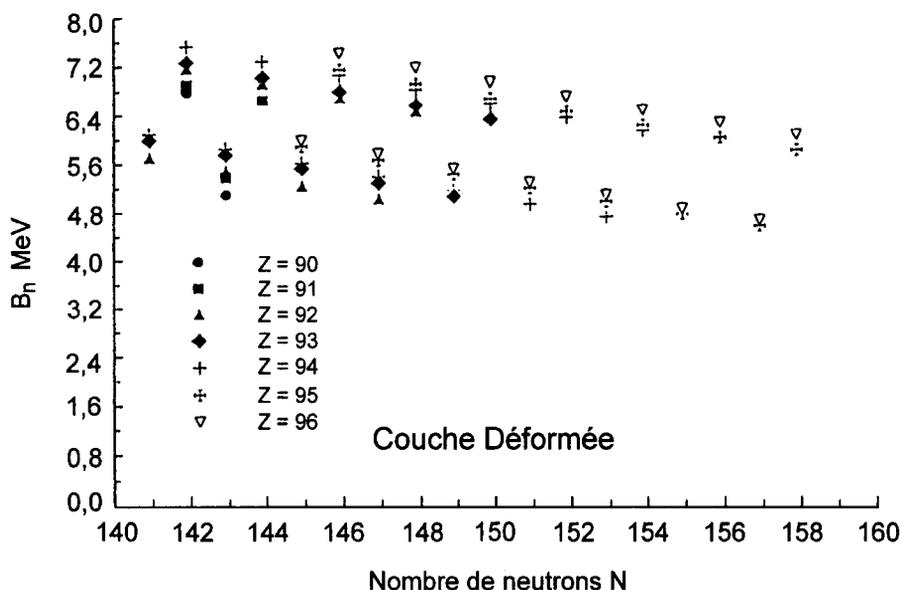


Figure 12 : Énergies de séparation des neutrons dans la région des actinides. On distingue nettement l'effet pair-impair du nombre de neutrons du noyau.

systématiquement plus grandes d'environ 1 MeV. L'énergie de séparation des neutrons des noyaux ayant un nombre de neutrons impair est inférieure à la barrière de fission, alors que l'inverse est vrai pour les noyaux ayant un nombre de neutrons pair. *Il s'ensuit que les noyaux ayant un nombre de neutrons impair sont fissiles* (après capture le noyau composé est excité au-dessus de la barrière de fission). *Les noyaux ayant un nombre de neutrons pair sont dits fertiles*. En effet, par capture neutronique, ils se transforment en noyaux fissiles. *De ce fait, les noyaux ^{229}Th , ^{233}U , ^{235}U , ^{237}Np , ^{239}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am sont fissiles tandis que les noyaux ^{232}Th , ^{236}U , ^{238}U , ^{238}Np , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{242}Am sont fertiles*. Ces derniers peuvent subir la fission si l'énergie des neutrons dépasse une énergie seuil $\epsilon_{th} = B_f - B_n$, de l'ordre du MeV. Il faut remarquer que, même dans ce cas, la probabilité relative de fission reste inférieure à celle des autres voies d'absorption du neutron.

9. Données nucléaires pour réacteurs

Un réacteur nucléaire est un milieu au sein duquel des neutrons sont produits, ralentis et capturés. De plus, de l'énergie y est produite grâce au processus de fission. Il s'ensuit que les propriétés nucléaires importantes sont principalement :

- la section efficace de fission σ_f . Cette section efficace commandera le nombre de fissions produites par les noyaux considérés ;
- la section efficace de capture σ_c qui mesure la capacité de transmutation des noyaux ;
- le nombre de neutrons η émis par capture d'un neutron. Cette quantité est évidemment fondamentale pour l'établissement d'une réaction en chaîne. Elle se décompose en deux facteurs :
 - la probabilité pour que l'absorption du neutron conduise à la fission :

$$\sigma_f / (\sigma_f + \sigma_c) = 1 / (1 + \alpha)$$

où α est la notation traditionnelle pour le rapport σ_c / σ_f ;

- le nombre de neutrons ν émis par fission. Il s'ensuit que le nombre de neutrons émis par capture est : $\eta = \nu / (1 + \alpha)$;
- la section efficace de diffusion σ_s qui commande la propagation des neutrons.

10. Milieux multiplicateurs

10.1. Section efficace macroscopique

Dans les milieux macroscopiques, il est commode d'utiliser, au lieu de la section efficace microscopique, la section efficace macroscopique donnée par :

$$\Sigma = 0,6 \frac{\rho}{A} \sigma_{\text{barms}}$$

ρ est le poids spécifique par cm^3 . Σ s'exprime en cm^{-1} et donne le nombre d'interactions par cm^3 en multipliant simplement par le flux, soit $\Sigma\phi$. Le libre parcours des particules pour la réaction considérée est alors : $\Lambda = 1/\Sigma$.

On peut définir aussi bien des sections efficaces et des libres parcours moyens totaux que partiels. Dans le cas où le milieu compte plusieurs espèces de noyaux les sections efficaces macroscopiques s'ajoutent.

10.2. Sections efficaces importantes

Dans un réacteur on doit traiter l'interaction des neutrons avec les noyaux du milieu. Comme indiqué plus haut, les neutrons peuvent être diffusés (ils changent alors d'énergie) avec la section efficace Σ_s , ou absorbés avec la section efficace Σ_a . Si un noyau absorbe un neutron, il peut soit être transmuté dans le noyau de masse $A + 1$, soit fissionner. On définit une section efficace de fission $\Sigma_f = \Sigma_a P_f$ où P_f est la probabilité de fission. Dans le cas de la fission, de nouveaux neutrons sont émis avec une multiplicité ν . On a donc un gain net de neutrons $(\nu - 1)$. Si $\eta = \nu\sigma_f/\sigma_a$ est supérieur à 1, la réaction en chaîne est possible.

10.3. Criticité et surrégénération

Dans les réacteurs nucléaires, la fission d'un noyau dit fissile est provoquée par l'absorption d'un neutron. Comme indiqué ci-dessus, cette fission s'accompagne de l'émission de neutrons, en nombre ν compris en général entre 2,2 et 2,6 selon les noyaux fissiles. Ces neutrons peuvent à leur tour provoquer de nouvelles fissions, et donc donner naissance à de nouveaux neutrons. Chaque neutron ne provoque toutefois pas automatiquement une fission. Il peut, en effet, être absorbé dans un noyau non fissile ou dans un noyau fissile sans provoquer de fission pour autant (voir 10.2.). Un neutron pénétrant dans un milieu comportant des noyaux fissiles donnera donc naissance à une deuxième génération de neutrons en nombre k .

Il est facile de calculer la valeur de k pour un milieu infini homogène. Rappelons tout d'abord que le nombre de réactions prenant place par élément de volume d'un milieu formé de noyaux d'une seule espèce est donné par le produit $n\sigma\phi$, où n est le nombre de noyaux par cm^3 , σ la section efficace⁽⁵⁾ et ϕ le flux de neutrons. Soit, alors, un ensemble de noyaux appartenant à N espèces différentes.

(5) La section efficace est une mesure de la probabilité d'interaction du neutron avec un noyau. On peut faire l'analogie d'un rayon lumineux se déplaçant au milieu d'un ensemble de sphères opaques. La probabilité pour que le rayon rencontre une sphère est proportionnelle à la section de la sphère.

Ceux-ci sont caractérisés par leur densité ρ_i , leur section efficace de capture σ_c^j , leur section efficace de fission $\sigma_f^j = P_f \sigma_a^j$ (P_f est la probabilité de fission du noyau considéré après absorption d'un neutron), leur section efficace totale (capture + fission) d'absorption pour les neutrons σ_a^j , et le nombre de neutrons ν_j produits lors de la fission. La valeur de k , qui dans le cas d'un milieu infini est notée k_∞ , est alors égale à :

$$k_\infty = \frac{\sum_{i=1}^N \nu_i \rho_i \sigma_f^i}{\sum_{i=1}^N \rho_i \sigma_a^i}$$

Dans la pratique les milieux sont finis et la valeur effective du coefficient multiplicateur k_{eff} est inférieure à k_∞ à cause des neutrons échappant au système. Si k_{eff} est supérieur à 1, la réaction diverge, ce qui signifie qu'à partir d'un neutron initial on obtient un nombre final de neutrons tendant vers l'infini. Une divergence contrôlée permet le démarrage d'un réacteur. Incontrôlée, la divergence conduit à un accident de criticité comme à Tchernobyl. Dans les armes nucléaires, cette divergence est favorisée. Lorsque k est maintenu égal à 1, on obtient un réacteur. Pratiquement, le maintien de la condition de criticité $k = 1$ est obtenu grâce à l'existence d'une petite fraction de neutrons retardés⁽⁶⁾ qui permettent la correction des écarts à l'unité du coefficient de criticité k .

Supposons, pour fixer les idées, que le milieu homogène infini comporte un isotope fissile, un isotope fertile et un absorbeur de neutrons. Les densités volumiques de ces isotopes sont n_{fis} , n_{fert} , n_{abs} . Les sections efficaces correspondantes sont $\sigma_{a(fis)}$, $\sigma_{a(fert)}$, $\sigma_{a(abs)}$. Le coefficient de criticité vaut alors:

$$\begin{aligned} k &= \frac{\nu n_{fis} \sigma_{f(fis)}}{n_{fis} \sigma_{a(fis)} + n_{fert} \sigma_{a(fert)} + n_{abs} \sigma_{a(abs)}} \\ &= \frac{\eta \Sigma_{a(fis)}}{\Sigma_{a(fis)} + \Sigma_{a(fert)} + \Sigma_{a(abs)}} \\ &= \frac{\eta}{1 + \Sigma_{a(fert)} / \Sigma_{a(fis)} + \Sigma_{a(abs)} / \Sigma_{a(fis)}} \end{aligned}$$

Le nombre de noyaux fissiles disparaissant par unité de temps, soit par capture, soit par fission, vaut $\Sigma_{a(fis)} \Phi$, Φ étant le flux neutronique. Inversement, le nombre de noyaux fissiles créés par capture d'un neutron par un noyau fertile vaut $\Sigma_{a(fert)} \Phi$. Il s'ensuit que si $\Sigma_{a(fis)} = \Sigma_{a(fert)}$ le nombre de noyaux fissiles reste constant : on dit que le système est régénérateur. Si le nombre de noyaux fissiles décroît, le système est sous-régénérateur, et au contraire, si ce nombre croît, le système est sur-

(6) Nous avons vu qu'une fraction inférieure à 1 % des neutrons est émise par les fragments de fission avec un retard de quelques secondes après la fission.

régénérateur. La valeur du coefficient de criticité pour un système régénérateur vaut donc :

$$k = \frac{\eta}{2 + \frac{\Sigma_{a(abc)}}{\Sigma_{a(fis)}}}$$

Compte tenu des valeurs de η observées on trouve que la condition de criticité $k = 1$ est assez restrictive. Les réacteurs à neutrons rapides sont, à cet égard, favorisés. Parmi les réacteurs à neutrons thermiques seuls ceux faisant appel au couple ^{233}U – ^{232}Th (fissile–fertile) peuvent être surrégénérateurs, encore que faiblement.

Bibliographie

Ouvrages en français

Les ouvrages en français traitant de la physique nucléaire des réacteurs sont peu nombreux et assez sommaires. Citons :

- [1] Blanc D., Physique nucléaire (Masson, 1980) page 190 et suivantes. Cet ouvrage est une introduction générale à la physique nucléaire.
- [2] Barjon R., Physique des réacteurs nucléaires (publié à compte d'auteur, Barjon R. ISN Grenoble) chapitres 1, 2 et 8. Cet ouvrage est une présentation très complète de la physique des réacteurs REP.
- [3] Lefort M., La chimie nucléaire (Dunod, 1966). Contrairement à ce que laisse entendre son titre il s'agit bien là d'un ouvrage sur la physique nucléaire.

Ouvrages de référence en anglais

- [4] Hughes D.J., Pile neutron research (Addison-Wesley, 1953). Bien que datant cet ouvrage reste un classique en ce qui concerne les principes de physique auprès des réacteurs.
- [5] Evans D., The atomic nucleus (Mc Graw Hill, 1955). Surtout intéressant en ce qui concerne la radioactivité.
- [6] Yaffe L., Nuclear chemistry (Academic Press, 1968).
- [7] Vandenbosch R. and Huizenga J.R., Nuclear fission (Academic Press, 1973). Un classique sur la fission nucléaire.

Ouvrages récents

Les ouvrages suivants concernent surtout la fission nucléaire et rendent compte des découvertes les plus récentes sur ce sujet.

- [8] Wagemans C., *The nuclear fission process* (CRC Press, 1991). Ouvrage très documenté faisant le point sur les développements les plus récents concernant la fission nucléaire.
- [9] Bromley D.A., *Treatise on heavy-ion science* **4**, 3 (Plenum Press, 1984). L'article de Oganessian Y.T. et Lazarev Y.A. est une mise au point remarquable sur la physique de la fission aussi bien que sur celle de la fusion de noyaux lourds.

Séparation et transmutation

4 Retraitement et séparation des radionucléides à vie longue

Bernard Boullis^(★)

1. Introduction

Séparer les divers radionucléides présents dans les combustibles nucléaires usés relève pour l'essentiel d'un double objectif : il s'agit d'une part *de récupérer, pour les recycler, les éléments valorisables* qui peuvent constituer une part essentielle de la matière présente, et présenter un potentiel d'énergie significatif ; et d'autre part de dégager, pour ce que l'on considérera comme le *déchet*, la ou les solutions qui apparaissent les plus appropriées (en particulier au regard des considérations de sûreté).

Le retraitement des combustibles nucléaires usés, tel qu'il est aujourd'hui mis en œuvre en France, procède d'une telle stratégie (voir figure 1) : l'extraction et le

(★) Commissariat à l'énergie atomique, CEA/Valrho/DCC/DRDD, BP 171, 30207 Bagnols-sur-Cèze Cedex.

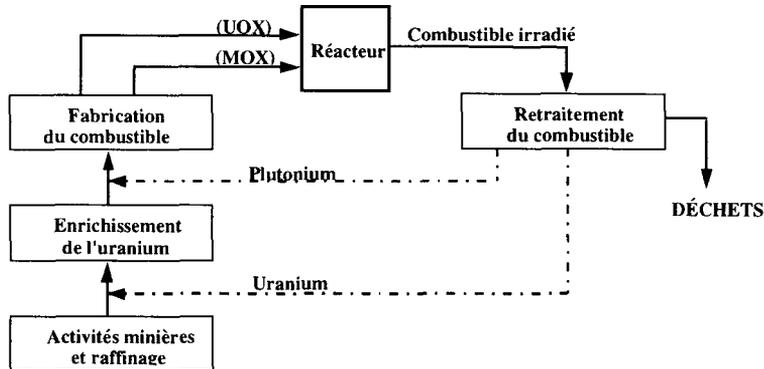


Figure 1 : Schéma de principe du retraitement-recyclage.

recyclage du plutonium (sous la forme de combustible MOX, combustible mixte d'oxyde d'uranium et d'oxyde de plutonium) sont aujourd'hui une réalité industrielle, et les produits de fission (qui constituent à proprement parler le déchet radioactif) sont pour l'essentiel concentrés et conditionnés sous la forme de blocs de verre dont il est établi qu'ils peuvent constituer un confinement efficace pour de longues durées. Un tel schéma peut être considéré comme la transposition au domaine nucléaire du concept plus général de préservation des ressources naturelles et de limitation de l'impact à l'environnement par un recyclage systématique ; il n'est toutefois pas mis en œuvre par tous les pays qui disposent d'un parc électronucléaire. Certains, tels les États-Unis ou la Suède, envisagent plutôt le stockage en l'état du combustible usé, au regard de diverses considérations d'ordre économique, technique, politique... Le Japon et le Royaume-Uni se sont, comme la France, résolument engagés dans la voie du retraitement-recyclage. D'autres enfin entreposent pour l'instant leurs combustibles usés dans l'attente du choix d'une stratégie pour le long terme.

Le devenir des déchets ultimes fait donc encore l'objet de recherches et de questions. L'un des axes de la loi votée le 30 décembre 1991 par le Parlement consiste, avant toute décision quant au devenir des déchets nucléaires de haute activité, à explorer plus avant les possibilités de séparation. Il s'agit d'étudier la possibilité d'opérer un tri complémentaire parmi les éléments jusque-là réputés non recyclables, afin d'isoler les radionucléides présentant les périodes les plus longues (de quelques milliers à quelques millions d'années), qui pourraient relever d'une gestion particulière : on imagine ainsi la transmutation de tels éléments qui permettrait de réduire l'échelle des temps à considérer pour la gestion du déchet ultime (voir le chapitre 5). Ces perspectives ouvrent des champs d'investigation nouveaux, porteurs de défis scientifiques parfois considérables qui mobilisent aujourd'hui des efforts de recherche très importants.

Quelles sont les grandes caractéristiques des combustibles nucléaires usés ?
 Quels sont les principes des opérations de séparation mis en œuvre dans le cadre de

leur retraitement, et quelles sont les performances que l'on obtient aujourd'hui ? Enfin, quels sont les principaux axes, les perspectives et les premiers résultats des recherches entreprises pour la séparation complémentaire des éléments à vie longue ? Ce sont les questions auxquelles on s'efforce dans ce qui suit d'apporter des éléments de réponse dans un triple souci de clarté, de rigueur, mais aussi de concision (ce qui conduira à ne donner qu'une vision parfois schématique des différents aspects).

2. Les combustibles nucléaires usés

L'essentiel des déchets radioactifs de haute activité provient de l'irradiation dans les réacteurs électronucléaires de pastilles d'oxyde d'uranium enrichi (et aujourd'hui aussi, pour partie, d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium). Du parc des quelque 54 réacteurs de la filière à eau pressurisée qu'exploite la compagnie EDF, et qui fournit de l'ordre de 400 TWh par an, soit les trois quarts de la consommation électrique de la France, on décharge annuellement de l'ordre de 1 000 tonnes d'uranium irradié.

La composition du combustible a évidemment évolué au cours de l'irradiation en réacteur pour aboutir, au moment du déchargement, à la composition moyenne suivante⁽¹⁾ :

- de l'ordre de 96 % d'uranium résiduel ;
- environ 1 % de plutonium ;
- de l'ordre de 3 % de produits issus de la fission, mais aussi de phénomènes de capture neutronique, et présentant une radioactivité très importante (environ 10^{17} Bq par tonne d'uranium irradié !).

L'uranium contenu dans le combustible usé présente une composition évidemment différente de celle du combustible initial : plus l'irradiation aura été importante, plus la consommation de noyaux fissiles aura été importante, et plus on aura donc appauvri l'uranium en isotope 235. Les conditions d'irradiation généralement mises en œuvre dans les réacteurs du parc français, avec un temps de séjour moyen du combustible en réacteur de l'ordre de trois ou quatre années pour un taux de combustion (énergie thermique produite par unité de masse d'uranium chargé) de 30 à 50 GWj/t, conduisent à abaisser, de quelques pourcent à de l'ordre de un pourcent, la teneur en isotope 235 de l'uranium (en standard, les combustibles initiaux et irradiés contiennent respectivement 3,5 % et 0,9 %

(1) Il convient de considérer ces valeurs, comme d'ailleurs l'ensemble des données fournies dans ce chapitre, comme indicatives ; elles permettent de situer les ordres de grandeur pour les combustibles à oxyde d'uranium enrichi issus de la principale filière nucléaire française actuelle, mais dépendent évidemment de divers paramètres, tels que la composition du combustible initial et les conditions d'irradiation, aujourd'hui sujets à des évolutions significatives.

d'uranium 235). L'uranium présent dans le combustible utilisé reste donc légèrement plus riche en isotope fissile que l'uranium naturel (pour lequel la teneur en uranium 235 est de 0,7 %). Mais il faut également mentionner la présence, en quantités plus faibles mais significatives parce que gênantes au regard de certains critères (propriétés neutroniques et radiologiques en particulier), d'autres isotopes (^{232}U , ^{236}U) absents du combustible initial (voir tableau I).

Tableau I : Inventaire en actinides majeurs du combustible irradié "de référence" ^a.

Élément	Isotope	Quantité (g/t)	Teneur isotopique (%)
U	234	222	0,02
	235	10 300	1,07
	236	4224	0,46
	238	940 000	98,4
Pu	238	176	1,8
	239	5673	58,3
	240	2214	22,7
	241	1187	12,2
	242	490	5,0

^a Oxyde d'uranium enrichi à 3,5 %, irradié au taux de 33 GW/t.

Les processus de captures neutroniques et de désintégrations successives ont donné lieu à la formation de noyaux lourds présentant eux-mêmes, ou par l'intermédiaire de leurs produits de filiation une période radioactive longue : ce sont les éléments de la famille des *actinides*, et parmi eux essentiellement le plutonium (^{238}Pu à ^{242}Pu , les isotopes impairs formés ayant pour partie eux aussi été fissionnés durant l'irradiation), mais aussi pour l'essentiel le neptunium, l'américium et le curium, dénommés actinides mineurs en raison de leur abondance moindre. Quant aux *phénomènes d'activation* de noyaux d'éléments non radioactifs, ils concernent surtout les matériaux de structure et conduisent, pour ce qui est du combustible, essentiellement à la formation de carbone 14, en quantités toutefois très limitées (largement inférieures au gramme par tonne d'uranium irradié dans les conditions usuelles).

Ce sont les *produits issus de la fission* de l'uranium 235 initial mais aussi de celle du plutonium formé (isotopes 239 et 241) qui constituent la source essentielle de la radioactivité du combustible utilisé au moment de son déchargement. On dénombre plus de 300 *radionucléides* (dont les deux tiers auront toutefois disparu, par décroissance radioactive, dans les quelques années qui suivent l'irradiation) répartis selon une quarantaine d'éléments de la classification périodique, du germanium ($Z = 32$) au dysprosium ($Z = 66$), avec la présence de tritium issu de fissions ternaires (voir le tableau périodique des éléments simples à la fin de

l'ouvrage). Ils sont donc caractérisés par une extrême diversité : diversité des propriétés radioactives (avec des nucléides très radioactifs, à durée de vie très courte, et à l'opposé, d'autres dont la période radioactive se mesure en millions d'années !) et diversité des propriétés chimiques, telle qu'elle apparaît lorsque l'on analyse, pour les combustibles "de référence" des réacteurs à eau ordinaire du parc français, la répartition des produits de fission formés selon les familles de la classification périodique (voir tableau II). Ces produits de fission, ainsi que les actinides formés sont pour la plupart présents sous la forme d'oxydes inclus dans la matrice que constitue l'oxyde d'uranium initial (encore très majoritaire, ainsi que cela a été vu plus haut) ; parmi les exceptions notables, il convient de citer l'iode, présent sous la forme d'iodure de césium, les gaz rares (le krypton et le xénon), ou certains métaux nobles comme le ruthénium, le rhodium, le palladium susceptibles de former des inclusions métalliques au sein de la matrice oxyde.

Tableau II : Répartition selon famille chimique des produits de fission.

Famille	Masse en kg/t ^a
Gaz rares (Kr, Xe)	5
Alcalins (Cs, Rb)	4
Alcalino-terreux (Sr, Ba)	2
Yttrium et lanthanides	10
Zirconium	4
Chalcogènes (Se, Te)	0,5
Molybdène	3
Halogènes (I, Br)	0,2
Technétium	1
Ru, Rh, Pd	4
Divers : Ag, Cd, Sn, Sb...	0,3

^a Valeurs indicatives pour un combustible d'oxyde d'uranium enrichi, 3 ans après déchargement.

3. Le procédé PUREX de retraitement

3.1. Principes généraux

Le procédé mis en œuvre pour retraiter les combustibles nucléaires usés est aujourd'hui, de façon quasi-exclusive, le procédé PUREX pour *Plutonium Uranium Refining by Extraction*. Ce procédé, basé sur l'extraction sélective de l'uranium et du plutonium par un composé organique, le phosphate tributylque noté TBP en

abrégé, est aujourd'hui fort d'un demi-siècle d'études et de développements puisque le concept a été établi au cours des années 1940 aux États-Unis. Il a, dès la décennie suivante, supplanté les diverses voies explorées pour la récupération du plutonium de matières irradiées, et débouché sur des applications industrielles aux États-Unis (Savannah River, 1954), au Royaume-Uni (Windscale, 1964) et en France (Marcoule, usine UP1, 1958). Il est aujourd'hui mis en œuvre dans le cadre de la stratégie de retraitement-recyclage par la COGEMA à La Hague (complexe UP2/UP3, d'une capacité nominale de retraitement de 1 600 tonnes par an d'uranium irradié), par la compagnie BNFL au Royaume-Uni (complexe THORP) et une unité analogue doit être mise en service à Rokkashomura au Japon au début du XXI^e siècle.

Le procédé consiste dans une première phase à *mettre en solution* l'ensemble des éléments qui constituent le combustible utilisé (voir figure 2), puis à *extraire sélectivement l'uranium et le plutonium* de cette solution en mettant à profit l'affinité du phosphate tributylrique envers ces éléments. Ces opérations, rendues complexes par la diversité des espèces présentes, mais aussi par les conditions particulières de leur mise en œuvre et la rigueur des contraintes à considérer, permettent d'obtenir des taux de séparation très élevés, et par là l'obtention :

- d'uranium et de plutonium récupérés à mieux que 99,8 % et ne présentant *in fine* qu'une contamination résiduelle très faible (facteurs d'épuration de l'ordre de 10^7) en vue de leur recyclage ;
- des produits d'activation, actinides mineurs et produits de fission qui constituent le déchet.

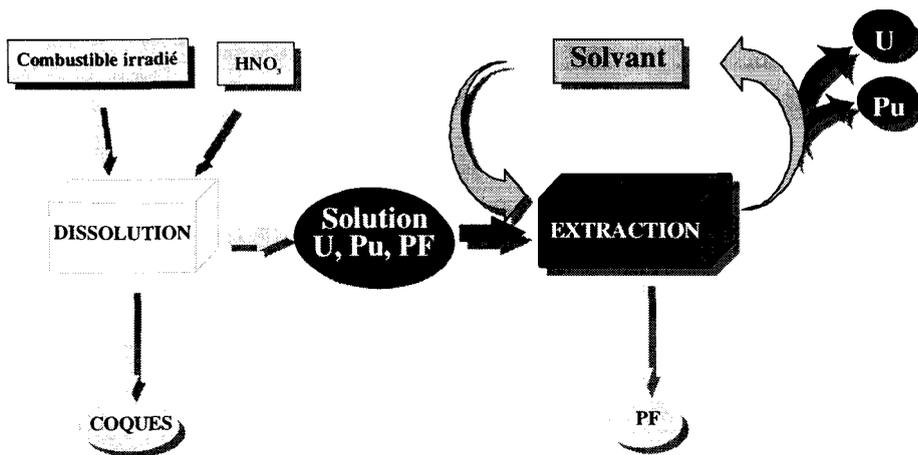


Figure 2 : Principe du procédé PUREX.

3.2. Revue des principales opérations élémentaires

Les opérations de retraitement ne sont menées qu'à l'issue d'une phase d'entreposage, aujourd'hui de l'ordre de quelques années en moyenne, qui permet une décroissance significative de la radioactivité du combustible utilisé et donc une réduction de la puissance thermique dégagée. Ainsi, trois années après le déchargement, les niveaux résiduels de puissance et d'activité s'élèvent, pour une tonne d'uranium initial, respectivement à quelques kW et à environ 10^{13} Bq.

Les opérations "de tête" consistent, après le démantèlement des assemblages combustibles, à opérer successivement :

- 1) le cisailage des aiguilles (voir figure 3) pour une "mise à nu" du combustible utilisé (découpage en tronçons de quelques centimètres de longueur) ;

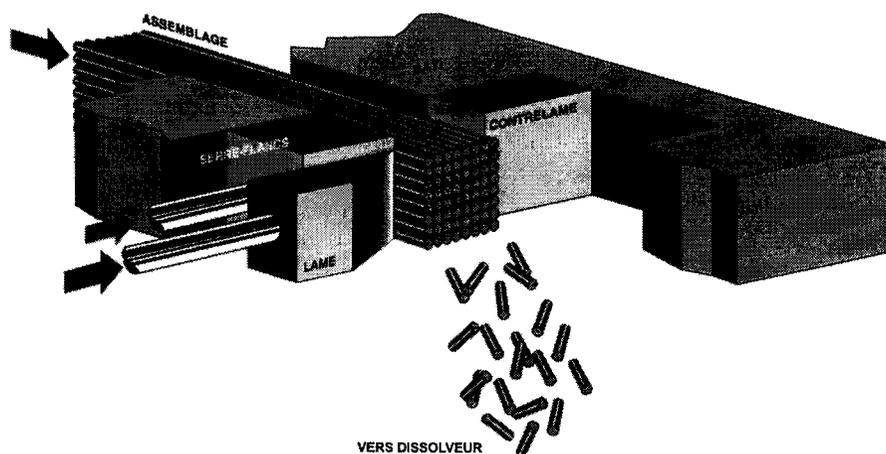
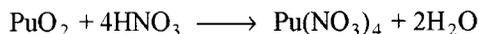
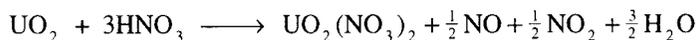


Figure 3 : Principe du cisailage des éléments combustibles.

- 2) la dissolution du combustible à chaud dans une solution aqueuse d'acide nitrique concentré ; l'uranium et le plutonium sont ainsi mis en solution selon les réactions principales suivantes :



Cette dissolution ne concerne pas les éléments de gainage du combustible et autres pièces de structures diverses ; en raison de leur composition (acier inoxydable, zircaloy...), ceux-ci restent en l'état lors de cette opération. Une fraction de certains éléments (platinoïdes, technétium) est par ailleurs réfractaire à la mise en solution, ce qui conduit à la présence dans la solution de dissolution de composés solides (particules submicroniques pour la plupart). Ceux-ci seront généralement séparés par des techniques classiques de

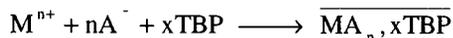
décantation (gravitaire ou centrifuge) ou de filtration, et le résidu obtenu est, en masse, de l'ordre de quelques pour mille ;

- 3) le traitement des gaz issus de l'opération : le cisailage puis l'attaque acide du combustible libèrent en effet les produits de fission gazeux (krypton, xénon, mais aussi iode⁽²⁾ formé et désorbé suite à la dissolution de l'iodure de césium, ou du CO₂ provenant de la présence de carbone 14), mais génèrent aussi des oxydes d'azote, des aérosols radioactifs et de la vapeur d'eau tritiée. L'air utilisé pour la ventilation des ateliers, qui entraîne ces divers composés, doit être épuré avant rejet. Ainsi, ce flux gazeux fait l'objet d'un lavage pour arrêt des particules entraînées, recombinaison des oxydes d'azote en acide nitrique, et reflux du tritium. L'iode est piégé sous forme d'iodure dans une solution basique ou sur des sorbants solides ; quant aux gaz rares, seul le krypton 85 est radioactif (le xénon 133, autre nucléide présent, est un isotope stable) : il est possible d'imaginer le piégeage par voie cryogénique de ce composé, mais cela n'est généralement pas opéré au regard de la grande inertie chimique des gaz rares et donc d'un faible impact dans la biosphère.

Les opérations d'extraction de l'uranium et du plutonium par le phosphate tributylque constituent le "cœur" du procédé PUREX. L'analyse des espèces mises en solution (voir tableau III) montre que :

- l'uranium est présent au degré d'oxydation (+VI) [ion uranyle UO₂²⁺]
- le plutonium est présent essentiellement au degré d'oxydation (+IV) [ion Pu⁴⁺]
- la plupart des actinides mineurs, ainsi qu'une très large part des produits de fission sont présents au degré d'oxydation (+III) [ions PF³⁺].

Le phosphate de tributyle, (C₄H₉O)₃PO, est très peu miscible à une solution aqueuse. Il présente, de par la densité électronique élevée sur l'atome oxygène phosphorylé, la propriété d'engager certains cations métalliques par une liaison de type ionique, dans un complexe de coordination. Le mécanisme est celui de la solvatation selon :



où M est l'élément métallique extrait, A⁻ est l'anion coextrait (équilibre des charges), TBP est le phosphate de tributyle et la barre au-dessus de l'élément désigne une espèce en phase organique.

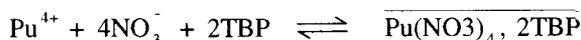
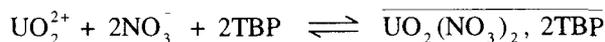
Ce mécanisme peut *a priori* s'appliquer à l'ensemble des cations métalliques présents dans la solution de dissolution d'un combustible irradié, l'anion A⁻ étant dans ce cas l'ion nitrate, largement présent dans le milieu. Mais le TBP s'avère, d'une façon générale, présenter une affinité beaucoup plus élevée envers les éléments au degré d'oxydation (+IV) ou (+VI) qu'envers les éléments

(2) Il est important de noter que les seuls isotopes d'iode à considérer dans les opérations de retraitement sont les isotopes 127 (stable) et 129 (de période très longue) ; l'isotope 131, très radioactif, formé durant l'irradiation et présent en quantités significatives dans le combustible en réacteur, a rapidement disparu au cours de la période d'entreposage intérimaire, en raison de sa courte période (8 jours).

Tableau III : Espèces en solution dans le procédé PUREX.

Éléments	Degré d'oxydation			
	(III)	(IV)	(V)	(VI)
Uranium				○
Plutonium	(○)	○		
Neptunium			○	○
Américium	○			
Curium	○			
Lanthanides	○			

trivalents : cela est généralement attribué à la plus forte densité de charge portée par les premiers, apte à renforcer la liaison entre le métal et l'atome d'oxygène de l'extractant. Ainsi, l'ion uranyle et l'ion plutonium seront significativement extraits par le phosphate de tributyle, avec des constantes d'équilibre élevées pour les réactions :



À l'inverse, l'extraction des actinides mineurs et des produits de fission majoritairement trivalents sera très limitée, voire pour certains négligeable ; l'extraction concomitante de l'acide nitrique (pour l'essentiel sous forme du complexe $\overline{\text{HNO}_3}, \text{TBP}$) contribue en outre, par effet de compétition, à diminuer encore leur extractibilité.

On tient ici la clef du procédé PUREX : extraction des actinides majeurs (uranium et plutonium respectivement hexavalent et tétravalent), non extraction pour l'essentiel des actinides mineurs et produits de fission trivalents ; et réversibilité de l'extraction pour les premiers, dans la mesure où il suffit de modifier certaines conditions chimiques (diminution de la teneur en nitrates du milieu, ou réduction du plutonium à l'état +III qui présente très peu d'affinité pour le TBP) pour inverser le phénomène, et par là ramener en solution aqueuse les espèces préalablement extraites. Le procédé PUREX met donc en œuvre des "cycles" successifs d'extraction et d'extraCTION de l'uranium et du plutonium, dont le principe est présenté ci-après (voir figure 4) pour aboutir à la récupération et à la purification de ces éléments.

Bien évidemment, il ne s'agit ici que d'une vision schématique, la réalité étant plus complexe et donc plus nuancée. Il est des produits de fission tétravalents, qui, tel le zirconium (l'un des plus abondants dans le combustible usé) sont donc significativement extractibles par le phosphate tributylque ; il en est d'autres qui, tel le technétium ou le ruthénium, sont présents en solution sous des formes qui leur confèrent un comportement singulier. C'est pour cela que les "cycles"

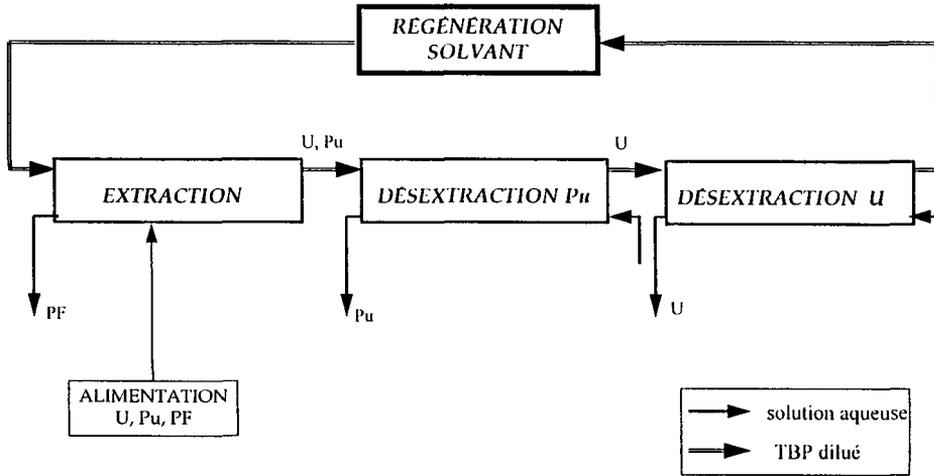


Figure 4 : Schéma de principe d'un cycle d'extraction dans le procédé PUREX.

d'extraction/désextraction doivent être renouvelés plusieurs fois, en s'attachant, pour chacune de ces opérations unitaires, à réunir les conditions chimiques aptes à procurer la décontamination des produits (uranium et plutonium) vis-à-vis successivement des divers éléments "singuliers" à considérer.

Si la diversité des espèces en présence est un élément de complexité, il en est un autre, tout aussi évident : c'est la présence tout au long des opérations d'un niveau de radioactivité significatif, voire pour certaines très important. La radiosensibilité de certaines espèces, et en particulier celle de l'extractant, même modérée, doit être prise en compte et l'on doit mettre en œuvre en particulier des opérations de séparation complémentaires pour isoler les sous-produits générés et permettre le recyclage des réactifs utilisés, recyclage qui est (compte tenu de la stricte nécessité de limiter les déchets secondaires) une des conditions de la viabilité industrielle du procédé.

3.3. "Bilan" du procédé

Le procédé PUREX permet donc, par une succession d'opérations mécaniques puis chimiques, d'aboutir aux séparations visées. On obtient ainsi à l'issue du traitement les produits suivants (voir figure 5) :

- 1) *les produits recyclables*, uranium et plutonium, pour lesquels le degré de pureté est (comme dit plus haut) très élevé compte tenu de "l'écart d'affinité" (sélectivité) très important du phosphate tributylrique envers les éléments à séparer ; ces produits seront conditionnés sous la forme adaptée aux

spécifications du recyclage (dioxyde de plutonium par exemple pour la fabrication de combustible MOX) ;

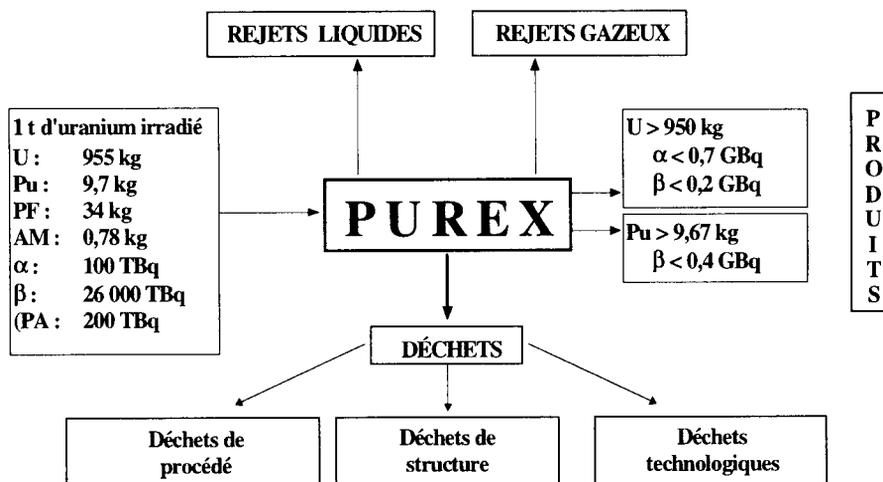


Figure 5 : Bilan des opérations de retraitement dans le procédé PUREX

- 2) les déchets dits "de structure" (gainés, pièces mécaniques des assemblages) qui renferment l'essentiel des produits d'activation formés au cours de l'irradiation (et qui représentent de l'ordre de 1 % de la radioactivité du combustible irradié quelques années après déchargement) ;
- 3) l'ensemble des actinides mineurs et la quasi-totalité des produits de fission initialement présents dans le combustible usé, groupés dans une même solution suite à la réunion des divers flux issus des cycles successifs d'extraction. On procède aujourd'hui généralement, pour cette solution, à une opération de *concentration* puis l'on cherche à élaborer un *conditionnement* particulièrement stable. Dans les trois pays (France, Royaume-Uni et Japon) qui utilisent le procédé PUREX à l'échelle industrielle, le procédé de vitrification, c'est-à-dire d'incorporation dans une matrice vitreuse spécifique est mis en œuvre.

À côté de ces trois principaux produits, il convient d'ajouter :

- 4) les postes découlant de la séparation spécifique de certains radio-éléments, comme les divers éléments isolés lors du traitement des effluents gazeux (le krypton 85, l'iode et le tritium), peuvent ainsi être isolés par piégeage sur adsorbant solide, par des solutions de composition particulière... Il peut en résulter un conditionnement spécial, comme on peut aussi, et c'est souvent le cas, retenir comme mode de gestion la dilution de ces radio-éléments dans l'atmosphère ou le milieu marin (qui est susceptible d'apporter, pour le tritium et l'iode 129, une dilution isotopique considérable !) ;

- 5) les autres radio-éléments présents, à des teneurs extrêmement faibles, dans les effluents rejetés dans la biosphère dans la limite bien évidemment des dispositions réglementaires et qui peuvent être de l'ordre du millionième de la radioactivité traitée⁽³⁾ ;
- 6) les déchets dits "technologiques" associés à la mise en œuvre du procédé : la majeure partie d'entre eux ne présente qu'un faible niveau de radioactivité et relèvent aujourd'hui d'un stockage de surface (déchets de type A au sens de la classification adoptée en France).

Si d'autres procédés ont été et restent aujourd'hui étudiés en alternative au procédé PUREX pour le retraitement des combustibles nucléaires, force est de constater qu'après un demi-siècle, celui-ci reste le procédé de référence, voire l'unique procédé mis en œuvre ou envisagé pour des applications industrielles. À cela, on peut avancer plusieurs raisons : les plus importantes paraissent résider d'une part dans le *niveau très élevé des performances de séparation (récupération et purification)*, d'autre part dans la *faible quantité de déchets technologiques générés* par sa mise en œuvre. Le retour d'expérience dont on dispose aujourd'hui en atteste, mais ce sont aussi, plus généralement, des qualités intrinsèques des procédés hydrométallurgiques. Les éventuels procédés de substitution que l'on imagine aujourd'hui, tels ceux dits à voies sèches comme la volatilisation sélective de fluorure, s'ils peuvent apparaître plus favorablement au regard de certains critères (compacité des opérations par exemple avec les procédés "non aqueux" tels que les procédés pyrométallurgiques), semblent en revanche supporter plus difficilement la comparaison sur ces points essentiels. Il apparaît ainsi aujourd'hui que si l'on doit envisager des mutations profondes dans le procédé mis en œuvre, c'est plutôt dans le cadre élargi (et très prospectif) d'éventuelles évolutions importantes des stratégies et des filières, que dans un effort d'optimisation concernant le seul "périmètre" des opérations de retraitement.

4. Séparations complémentaires

4.1. Objectifs poursuivis

L'un des axes de recherche identifiés dans la loi votée par le Parlement le 30 décembre 1991 concerne la possibilité de séparer, en vue de les transmuter, les radionucléides à vie longue présents dans ce qui pouvait être considéré jusqu'ici comme le déchet ultime. Le programme SPIN, pour séparation-incinération, a été

(3) Les rejets liquides aujourd'hui opérés par l'usine de La Hague, par exemple, sont bien en deçà des autorisations délivrées et ont connu une constante diminution sur la décennie écoulée.

mis en place au Commissariat à l'énergie atomique dans un contexte de large coopération pour amener d'ici 2006 (échéance fixée par la loi) les éléments scientifiques et techniques permettant l'évaluation d'une telle stratégie. Cette idée d'une gestion différenciée des divers composants, selon la durée dans laquelle s'inscrivent leur radiotoxicité, fait également l'objet de recherches au Japon avec le projet OMEGA comparable au programme SPIN.

Quels sont les radionucléides concernés ? *On fixe généralement à 30 ans la valeur de la période radioactive au-delà de laquelle un radionucléide est considéré comme radionucléide à vie longue* : les radionucléides de période plus courte auront vu leur radioactivité chuter considérablement, jusqu'à devenir négligeable, en quelques siècles. Et l'approche de la question d'un éventuel stockage "définitif" des déchets nucléaires peut apparaître différente pour des radionucléides aux caractéristiques radioactives très éloignées (radioactivité intense durant un temps court pour les uns, radioactivité bien moindre mais s'exerçant sur une durée beaucoup plus grande pour les autres). Si l'on dresse un inventaire des radionucléides concernés dans un combustible usé⁽⁴⁾, on recense :

- l'ensemble des *actinides*, majeurs et mineurs. Tous leurs isotopes présentent une période radioactive supérieure à 30 ans, ou bien ont un élément de filiation dont c'est le cas (voir tableau IV). En se ramenant encore à notre tonne d'uranium irradié, et si l'on écarte les isotopes de l'uranium et du plutonium, déjà séparés ou du moins séparables par le procédé PUREX, on retrouve les *actinides mineurs* (neptunium, américium, curium) avec une abondance de l'ordre du kilogramme ;
- certains produits de fission (du sélénium 79 au samarium 151) et aussi le carbone 14 (produit d'activation de l'azote présent initialement dans le combustible) : si ce dernier n'est présent qu'à hauteur de la centaine de mg, l'abondance des premiers avoisine 2,5 kg par tonne d'uranium irradié ; et si l'on considère les *produits de fission à vie longue et tous leurs isotopes présents, on atteint les 10 kg, soit presque le tiers de l'ensemble des produits de fission formés* ;
- certains *produits d'activation* présents dans les éléments de structure, tels les isotopes 59 et 63 du nickel (respectivement de périodes 75 000 ans et 100 ans) dans le zircalloy irradié : les quantités formées sont toutefois limitées à *quelques dizaines de grammes par tonne d'uranium irradié* dans les combustibles "standard" de la filière mise en œuvre en France.

Il apparaît donc que l'ensemble des éléments potentiellement concernés est vaste et divers. Et ici encore, puisqu'il s'agit de séparer, donc de mettre à profit certaines différences dans les propriétés physiques ou chimiques des radioéléments présents, la diversité des cas à considérer est une source de complexité du problème : les éléments à séparer ne constituent pas un groupe homogène, que l'on

(4) Il s'agit là encore de données se rapportant à l'actuel combustible "de référence" ; si la nature des problèmes de séparation sous-tendus peut apparaître dans une certaine mesure une constante, leur ampleur, leur acuité respectives, pourraient être très sensiblement modifiées par les évolutions des caractéristiques du combustible ou de ses conditions d'irradiation.

Tableau IV : Inventaire des éléments à vie longue^a dans les combustibles nucléaires usés de référence.

	Élément	Isotope	Période (années)	Masse (g/t)	Composition isotopique
Actinides mineurs	Np	237	$2,1 \times 10^6$	430	100 %
	Am	241	430	220	67 %
		243	7 400	100	31 %
	Cm	243	28	0,3	1 %
		244	18	24	94 %
		245	8 500	1	5 %
Produit d'activation ^b	C	14	$5,7 \times 10^3$	0,13	100 %
Produits de fission	Se	79	$6,5 \times 10^4$	4,7	9 %
	Zr	93	$1,5 \times 10^6$	710	20 %
	Tc	99	$2,1 \times 10^5$	810	100 %
	Pd	107	$6,5 \times 10^6$	200	16 %
	Sn	126	$1,0 \times 10^5$	20	40 %
	I	129	$1,6 \times 10^7$	170	81 %
	Cs	135	$2,3 \times 10^6$	360	10 %
	Sm	151	90	16	2 %

^a Radionucléides dont la période radioactive, ou celle de l'un de ses produits de filiation est supérieure à 30 ans.

^b Ne sont pas considérés ici les produits d'activation formés dans les éléments de structure.

considère leur nombre de masse ou leur place dans la classification périodique (voir le tableau de la classification périodique à la fin de l'ouvrage). Il faut donc se résoudre à envisager des procédés de séparation spécifiques. Et cela conduit à la notion de hiérarchisation des besoins de séparation : s'il n'est pas possible de traiter globalement la question, *que doit-on chercher à séparer en priorité ?* À cette question aujourd'hui importante, il est difficile d'apporter une réponse claire, de trancher avec assurance : deux concepts, deux critères peuvent en effet être considérés, qui aboutissent à des conclusions différentes voire opposées.

Il paraît raisonnable de chercher à isoler, pour les gérer de façon spécifique (et par exemple les transmuter), les radio-éléments qui, dans les conditions envisagées aujourd'hui pour un éventuel stockage en site géologique profond des déchets, contribueraient de façon prépondérante à la dose (aussi minime soit-elle), pouvant être délivrée, à très long terme, à une éventuelle population "riveraine". De telles analyses sont notamment le fait d'exercices théoriques menés sous l'égide de la Commission européenne : les principales études de cas effectuées indiquent que pour des scénarios d'évolution normale, les premiers relâchements dans la biosphère apparaîtraient au-delà de la centaine de milliers d'années, et les doses engagées correspondantes restent très largement en deçà du seuil admissible aujourd'hui pour le public ; elles mettent toutefois en évidence, toutes proportions gardées, une contribution plus précoce et plus marquée de certains produits de

fission (iode et césium en particulier). Mais de telles prévisions sont délicates, au regard de la complexité des phénomènes, de l'échelle de temps que l'on doit considérer, et parce qu'il est difficile d'envisager de façon exhaustive les divers scénarios de type incidentel. Aussi certains se tournent-ils vers une approche plus simple, qui consiste à évaluer la radiotoxicité intrinsèque du déchet considéré, et à déterminer ceux des radionucléides présents qui y contribuent majoritairement ; on ne cherche plus alors à prévoir la façon dont la radioactivité pourra être relâchée, ni l'effet des "barrières" que l'on pourra interposer, qui sont ici totalement négligées. *Et dans ce cas, quel que soit le temps dans lequel on se place, au-delà de quelques centaines d'années, ce sont les actinides mineurs qui se révèlent, et de loin, apporter la contribution la importante* (voir figure 6).

On peut remarquer que si l'on considère le combustible utilisé avant retraitement, c'est la radiotoxicité du plutonium qui domine largement (un ordre de grandeur au-dessus de tout autre, voir figure 7).

On voit donc que, selon que l'on considère une approche ou une autre, ce seront les actinides, d'une radiotoxicité plus élevée, ou au contraire certains produits de fission, relativement plus mobiles dans les conditions qui prévaudraient dans un site de stockage souterrain, qui apparaîtront comme devant constituer la priorité des recherches en matière de séparations complémentaires.

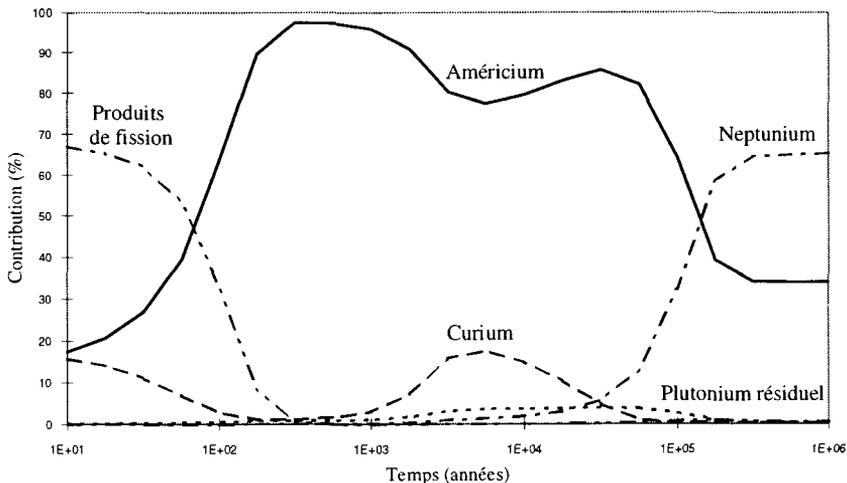


Figure 6 : Contribution des principaux radionucléides à la radiotoxicité des déchets issus du retraitement du combustible UO_2 .

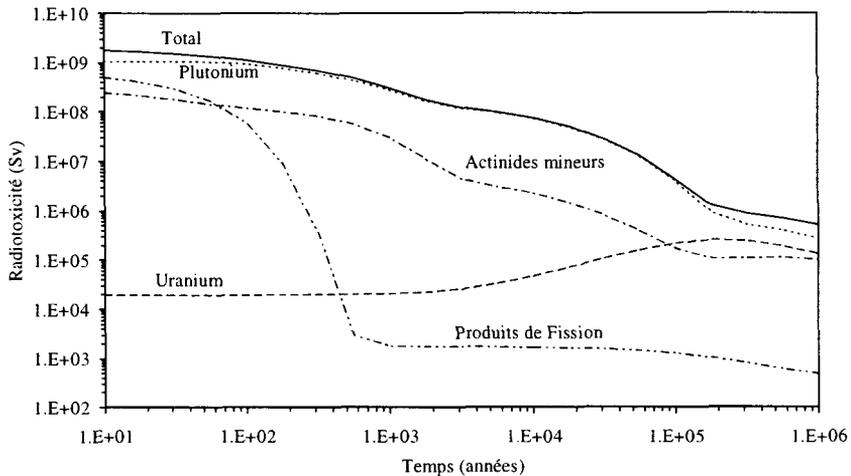


Figure 7 : Évolution de la radiotoxicité du combustible irradié de référence (pour une masse de combustible correspondant à la production de 1 TWhé).

4.2. Stratégie générale des recherches

La séparation des radionucléides à vie longue est donc l'objet d'une recherche active, en particulier en France où la stratégie affichée pour la conduite des études consiste, pour les grandes lignes :

- à considérer comme "cibles" potentielles prioritaires, d'une part les actinides mineurs, et d'autre part les produits de fission mis en évidence dans les résultats des modélisations effectuées (iode 129, césium 135, et dans une moindre mesure, technétium 99) ;
- à chercher en premier lieu à exploiter les potentialités du procédé PUREX pour isoler certains de ces éléments (neptunium, technétium, iode) ;
- à étudier des procédés de séparation complémentaires pour les autres (américium, curium, césium en particulier).

Ces procédés complémentaires peuvent être de nature diverse : on peut imaginer des procédés basés sur des différences de propriétés physiques (par exemple en utilisant les effets d'un champ de gravité pour séparer les éléments les plus lourds) ; mais ce sont encore les procédés de nature chimique qui sont aujourd'hui privilégiés, et parmi eux, encore les procédés hydrométallurgiques, basés sur la complexation et l'extraction sélectives des éléments d'intérêt par des molécules appropriées. À cela, les raisons sont, au-delà de leur meilleure aptitude peut-être à s'insérer dans les schémas de retraitement actuels, vraisemblablement

les mêmes que celles qui expliquent la remarquable longévité du procédé PUREX : possibilité de performances de séparation élevées et faible niveau des déchets technologiques associés.

On s'attache donc, pour chacun des radio-éléments concernés, à la recherche d'extractants spécifiques, lesquels doivent toutefois, dans l'optique d'une éventuelle application industrielle, satisfaire un certain nombre de critères à la base du développement de procédés modernes de séparation dans le domaine nucléaire. Il s'agit bien évidemment en premier lieu d'obtenir une affinité et une sélectivité suffisantes envers les corps à séparer ; il faut également, pour l'opérabilité du procédé, que les réactions mises en jeu soient parfaitement réversibles et non affectées par les conditions particulières de mise en œuvre (chimiques ou radiolytiques) ; il faut évidemment prendre en compte les considérations de sûreté, de fiabilité, de coût ; mais il faut aussi, et cela paraît revêtir une acuité toujours plus importante, veiller à minimiser les déchets secondaires qui seront induits par les opérations. C'est peut être sur ces derniers aspects que réside la principale originalité des études récemment entreprises dans le domaine, en regard des travaux homologues menés par le passé (dans le cadre d'objectifs il est vrai différents, puisqu'il s'agissait de production de radio-éléments à des fins diverses).

Parmi les autres procédés imaginés, seuls les procédés *pyrométallurgiques* font l'objet d'efforts de recherche soutenus et constituent l'alternative la plus crédible à la voie hydrométallurgique. Au Japon, aux États-Unis, et aussi en France, on étudie la possibilité de séparer certains radio-éléments (et en particulier les actinides) dans des milieux constitués de sels ou de métaux fondus. Mais la mise en œuvre de ces procédés, qui auraient des avantages aux plans de la compacité et de la radiosensibilité moindre des espèces, soulève encore divers problèmes en particulier d'ordre technologique et la plupart des développements menés aujourd'hui se situent dans une perspective à moyen ou long terme d'évolution des filières nucléaires.

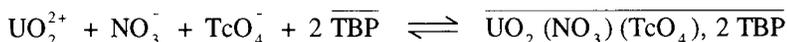
On peut noter que les stratégies aujourd'hui affichées ne font pas apparaître des actions de recherche d'envergure dans le domaine de la séparation isotopique ; la relativement faible abondance de l'isotope à vie longue pour certains éléments considérés, ou des contraintes liées à la gestion ultérieure (et en particulier la transmutation) de ces derniers, pourraient conduire à en identifier l'intérêt sinon le besoin.

4.3. Adaptation du procédé PUREX

Le procédé PUREX présente des potentialités avérées de séparation pour certains des éléments concernés. C'est en particulier le cas de *l'iode*, dont on a vu à la section 3.3. qu'il se retrouvait essentiellement dans les effluents gazeux de l'opération de dissolution du combustible usé, et que l'on peut ainsi, par un piégeage spécifique, isoler dans un flux particulier. La gestion de ce flux peut faire

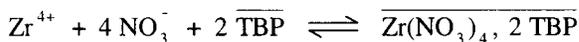
l'objet d'alternatives, mais la question de la séparation peut être considérée comme acquise pour l'essentiel ; seule une faible quantité, non désorbée (provenant en particulier de la présence d'iode dans certains composés polymétalliques insolubles) est donc présente dans les autres flux de déchets issus des opérations de retraitement.

Le *technétium* peut également être considéré comme "virtuellement séparable" par le procédé PUREX. Il présente un comportement tout à fait singulier lors de l'extraction par le phosphate tributylque, car présent sous forme anionique : l'ion pertechnétate TcO_4^- . Cet anion est susceptible de se substituer à l'ion nitrate NO_3^- lors de l'extraction des complexes métalliques par le TBP selon le mécanisme (illustré ici en considérant l'extraction de l'uranium) :

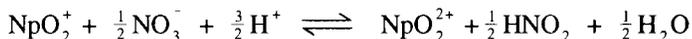


On peut ainsi assister à l'extraction quantitative du technétium présent dans la solution de dissolution, par coextraction avec les principales espèces métalliques. Ce phénomène, considéré comme gênant dans le procédé PUREX (où il s'agit d'extraire sélectivement l'uranium et le plutonium) peut en revanche constituer un levier pour la séparation du technétium si celle-ci est mise en œuvre dans le cadre d'une politique de séparation des éléments à vie longue. Cela constitue l'axe essentiel d'étude pour la récupération sélective de cet élément. Il faut toutefois noter que, comme l'iode, mais dans des proportions parfois beaucoup plus importantes, le technétium est présent dans les résidus (insolubles) de dissolution, ce qui peut limiter la portée de sa séparation par extraction en aval.

Le *zirconium*, très abondant dans le combustible usé, et dont l'isotope 93 présente une très longue période ($1,5 \times 10^6$ ans), peut être également en principe séparé par le procédé PUREX, car il est essentiellement mis en solution, sous la forme Zr^{4+} , extractible par le TBP selon :



Mais c'est surtout la possibilité d'isoler le *neptunium* qui focalise l'essentiel des actions de recherche. Là encore, la potentialité du procédé PUREX est avérée : la dissolution du neptunium présent dans le combustible usé conduit aux espèces NpO_2^+ et NpO_2^{2+} . Si le phosphate tributylque ne présente pas d'affinité particulière pour la première espèce (le neptunium est pentavalent dans ce cas), cela est en revanche le cas pour l'ion neptunyle (dont le degré d'oxydation est de VI, analogue à l'ion uranyle UO_2^{2+}). Une possibilité de séparation réside donc dans l'ajustement de l'état d'oxydation du neptunium dans la solution de dissolution ; celui-ci est régi par l'équilibre schématisé comme suit :



C'est donc par la maîtrise des mécanismes élémentaires mis en jeu, puis l'ajustement précis des conditions opératoires, afin de déplacer quantitativement l'équilibre ci-dessus dans le sens de l'oxydation du neptunium à l'état NpO_2^{2+} , que

l'on pense aboutir à la séparation quantitative du neptunium ; les recherches aujourd'hui publiées laissent augurer très favorablement de l'issue de ces travaux.

Il est important de noter que la présence à très long terme de neptunium ^{237}Np dans les déchets est certes liée à la présence de neptunium "initial", mais résulte aussi (et dans certains cas surtout) de la décroissance α de l'américium ^{241}Am , lui-même issu de la décroissance β^- du plutonium ^{241}Pu (voir figure 8). Cette remarque, peut-être évidente, est à généraliser. Ainsi doit-on, si l'on souhaite éliminer toute présence à long terme de neptunium dans les déchets résiduels, s'attacher à extraire au moment du traitement, non seulement le neptunium présent, mais tous les éléments susceptibles d'en former : la seule séparation du neptunium sans celle, conjointe, de l'américium n'aurait qu'une portée très limitée.

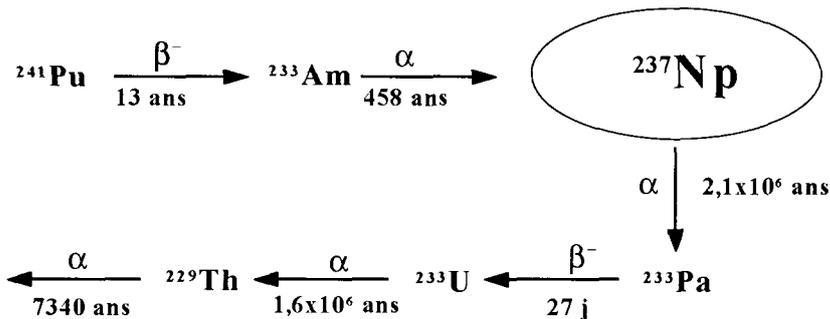
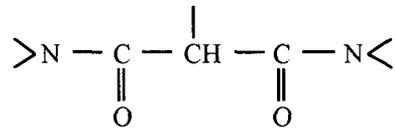


Figure 8 : Aspects de la chaîne de décroissance du neptunium.

4.4. Recherche de procédés complémentaires de séparation

Pour une large part des radio-éléments à vie longue inventoriés, le procédé PUREX n'offre aucune potentialité : c'est en particulier le cas de l'américium et du curium d'une part, du césium d'autre part. Tous trois font l'objet d'un intérêt soutenu, à la lumière de l'évaluation de leur toxicité potentielle (américium, curium) ou des modélisations effectuées quant à leur métabolisme dans les conditions d'un éventuel stockage géologique (cas du césium) ; le phosphate tributylque ne présente que très peu d'affinité envers ces éléments dans les milieux considérés (ce qui est d'ailleurs la base du concept mis en œuvre pour le traitement des combustibles usés). Aussi se tourne-t-on, pour étudier les possibilités de les séparer, vers de nouvelles molécules, aptes à les complexer ou à les extraire de façon sélective, et en tenant compte des diverses contraintes évoquées plus haut.

L'extraction de l'américium et du curium a fait l'objet de nombreux travaux, voire de réalisations à caractère industriel dans certains pays ; mais cela était mené, on l'a dit, dans un souci premier de production et non pas dans une optique de gestion des radio-éléments à vie longue. Les développements plus récents, menés par exemple au Japon, en France, ou dans le cadre de programmes européens, reprennent certains concepts, parfois éprouvés mais, en cherchant à les adapter aux contraintes actuelles. C'est ainsi que sur les bases du procédé TRUEx (*transuranium extraction*) développé aux États-Unis, un considérable effort a été consacré en France au développement du procédé DIAMEX, pour DIAMide EXtraction, qui consiste à extraire sélectivement Am³⁺ et Cm³⁺ des solutions issues du procédé PUREX par un extractant de la famille des diamides, de formule générique :



Ces molécules apparaissent particulièrement adaptées à l'objectif ; en effet :

- les extractants à fonction amide sont *a priori* capables comme le TBP d'engager les ions métalliques dans une liaison de type ionique par l'intermédiaire de l'atome d'oxygène ;
- l'affinité et la sélectivité sont renforcées par un effet de chélation (effet "de pince") obtenu en doublant la fonction amide (extractant dit "bidentate") ;
- les principaux critères à considérer sont respectés, et en particulier la minimisation des déchets secondaires induits par la *totale incinérabilité de l'extractant*, exclusivement constitué de molécules de carbone, hydrogène, oxygène et azote, et exempt de toute charge minérale ; c'est là une des grandes originalités du procédé.

Le développement du procédé DIAMEX se poursuit, la faisabilité du concept ayant été prouvée par des essais de laboratoire. Toutefois, il ne peut constituer, comme les procédés homologues élaborés ailleurs, qu'une première étape dans la séparation de l'américium et du curium (voir figure 9) ; en effet, et c'est là le principal handicap de tels procédés, l'extraction conjointe des lanthanides, très abondants dans le combustible usé, est inéluctable en raison de la grande similitude de leurs comportements chimiques respectifs. Aussi doit-on étudier les moyens d'une *séparation actinides/lanthanides en aval* : ce point, beaucoup plus délicat, peut être considéré comme l'un des principaux défis scientifiques et techniques en matière de séparation des éléments à vie longue. Il s'agit en effet de séparer des éléments aux propriétés très voisines, donc de chercher à exacerber, pour les exploiter, des différences très ténues. La principale voie explorée à ce jour concerne la complexation sélective des actinides par des ligands dits "mous", c'est-à-dire capables d'engager les cations métalliques dans des liaisons de caractère

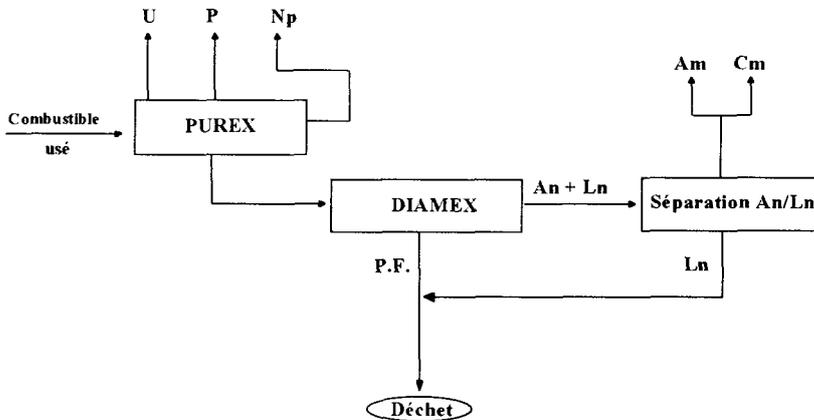


Figure 9 : Schémas envisageables pour la séparation des actinides mineurs (programme SPIN).

partiellement covalent : on sait en effet que les ions actinides y sont légèrement plus enclins (cela étant attribué à une extension spatiale plus prononcée dans le cas des orbitales 5f que celui des orbitales 4f). La recherche en ce domaine apparaît moins avancée et plus ouverte même si, là encore, des antécédents existent ; elle donne lieu à un foisonnement de propositions et d'expérimentations, constituant un terrain de choix pour des approches émergentes comme la mécanique ou la dynamique moléculaires pour la formulation des extractants.

La séparation du seul américium (l'américium représente la principale contribution à la radiotoxicité potentielle des déchets après retraitement) peut être envisagée et abordée en mettant à profit la possibilité de l'amener aux états d'oxydation "extractibles" (+IV) ou (+VI) ; là encore, il s'agit d'une opération particulièrement délicate en raison de la nécessité de disposer d'un complexant puissant pour stabiliser l'américium oxydé, dont il faut maîtriser les interactions avec les nombreux éléments présents en solution.

La séparation du césium dont l'isotope 135 présente une période très longue fait également l'objet de recherches poussées, et qui font aussi appel à des développements récents de l'ingénierie des molécules. Ainsi ont pu être élaborées et expérimentées en France, dans le cadre de partenariats de recherche, des calixarènes fonctionnalisés (voir figure 10), dont la structure a été préorganisée de façon à l'adapter aux caractéristiques précises (position des sites de coordination, taille...) de l'ion césium que l'on cherche à extraire avec une grande sélectivité. Des résultats remarquables ont ainsi été obtenus avec des calixarènes fonctionnalisés par des éther-couronnes, qui procurent des sélectivités spectaculaires. De nombreuses études restent à mener pour la conception et, plus encore pour l'industrialisation d'un procédé basé sur ce concept. Mais au-delà de l'application envisageable, en elle-même très intéressante, c'est aussi ici l'originalité de l'approche basée sur la connaissance précise des entités à extraire et l'organisation

en conséquence de la structure complexante qu'il faut souligner car elle illustre bien les évolutions méthodologiques amorcées en ce domaine.

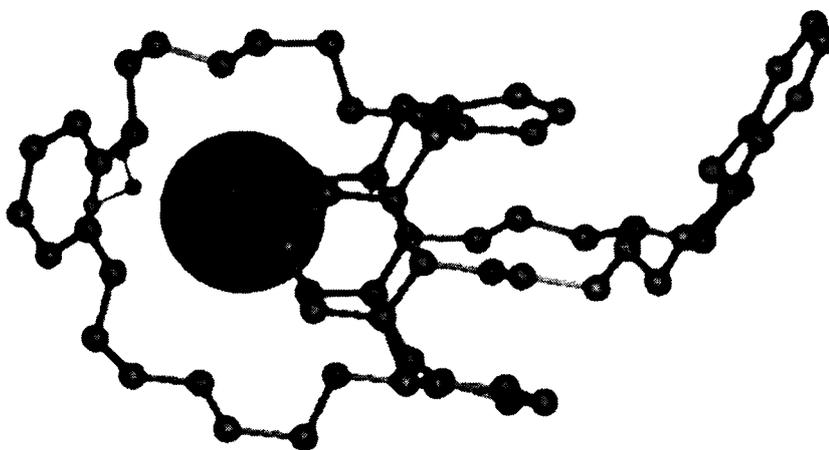


Figure 10 : Complexation du césium par un calix[4]arène-6 couronne.

5. Conclusion

Au terme de ce large panorama, on peut essayer de revenir sur ce qui apparaît comme les idées-force en matière de séparation des éléments présents dans les combustibles nucléaires usés.

Tout d'abord, le retraitement de ces combustibles est une *réalité industrielle*. Le procédé PUREX, fort de près d'un demi-siècle de développements, permet de récupérer, en vue de leur recyclage, l'uranium et le plutonium à des degrés de pureté remarquables.

La séparation complémentaire des radionucléides à vie longue contenus dans le résidu des opérations de retraitement-recyclage est aujourd'hui étudiée en France dans le cadre de la loi votée le 30 décembre 1991. La question est complexe ; elle est aussi très contrastée, car les difficultés ne sont pas de même ampleur ni de même nature pour les divers radio-éléments que l'on peut *a priori* considérer. Certaines séparations paraissent aujourd'hui accessibles au prix de modifications, de portée limitée, du procédé de retraitement. D'autres nécessitent encore de nombreuses recherches, avec parfois des défis scientifiques et techniques importants, conduisant à l'émergence de nouvelles approches.

Enfin, ce n'est évidemment pas dans la seule problématique de la faisabilité des séparations que l'on peut élaborer les contours d'une stratégie de gestion des radionucléides à vie longue. Celle-ci doit en particulier associer l'évolution des

concepts (réflexion sur les filières...) et des recherches dans les autres secteurs scientifiques concernés (tels que par exemple l'étude des possibilités de transmutation ou l'évaluation des confinements) afin de disposer de l'ensemble des éléments nécessaires à une approche globale cohérente de la question.

Éléments de bibliographie

- [1] Bourgeois M., Retraitement du combustible, *Techniques de l'ingénieur, traité mécanique et chaleur* **B 3650** (1994) 1-36.
- [2] Mégy J., Les déchets nucléaires et le retraitement, *Encyclopédie universalis* **13** (1985) 246-251.
- [3] Lefèvre J. *et al.*, Les déchets nucléaires (CEA, Collection CEA, série Synthèses, 1986).
- [4] Bernard C., Miquel P. et Viala M., Advanced PUREX process for the new reprocessing plants in France and Japan, *Recod '91* **1** (1991) 83-88, Sendai (Japan) 14-18 avril 1991.
- [5] Bourgeois M., Déchets nucléaires : le programme SPIN, *Clefs CEA* **24** (1992) 11-20.
- [6] Lefèvre J., Baudin G. and Salvatores M., Partitioning and transmutation of long-lived radionuclides, *International conference on safe management and disposal of nuclear waste* **1** (1993), Avignon (France) 13-18 juin 1993.
- [7] Bush R.P., Mills A.L. and Stearn M.L., Some implications of partitioning processes for high level waste, *Third international information exchange meeting on actinide and fission product partitioning and transmutation*, Cadarache (France) 12-14 décembre 1994.
- [8] Madic C., Bourges J. and Dozol J.-F., Brief overview of the long-lived radionuclide separation processes developed in France in connection with the SPIN program, *International conference on accelerator-driven transmutation technologies and applications*, Las Vegas (USA) 25-29 july 1994.
- [9] Madic C. *et al.*, High-level waste partitioning: status and prospects in Europe, *Fourth conference of the European commission on the management and disposal of radioactive waste*, Luxembourg 25-29 march 1996.
- [10] Kubota M., Research activities on the partitioning and transmutation at JAERI under the framework of the OMEGA program in Japan, *Fourth international conference on nuclear fuel reprocessing and waste management*, *Recod '94* **1** (1994), London (UK) 24-28 april 1994.
- [11] Schulz W.W. and Horwitz E.P., TRUEX process and the management of liquid TRU waste, *Fifth symposium on separation science and technology for energy applications*, Knoxville (USA) 26-29 october 1987.

-
- [12] Ozawa M. *et al.*, Enhancing actinides separation by consolidated PUREX and TRUEX processes intensified by salt-free requisite, International conference on evaluation of emerging nuclear fuel cycle systems, Global '95 1 (1995), Versailles (France) 11-14 Septembre 1995.
- [13] Zhu Y. and Jiao R., Chinese experience on the removal of actinides from highly active waste by trialkyl phosphine-oxide extraction, Global '93, Future nuclear systems: emerging fuel cycles and waste disposal options, Seattle (Washington), 12-17 september 1993.
- [14] Musikas C., Condamines N. and Cuillerdier C., Advance in actinide separations by solvent extraction. research and applications, Isec '90, International solvent extraction conference, Kyoto (Japan) 16-21 july 1990.
- [15] Madic C. *et al.*, Actinide partitioning from high level liquid waste using the DIAMEX process, Fourth international conference on nuclear fuel reprocessing and waste management, Recod '94 3 (1994), London (UK) 24-28 april 1994.
- [16] Adnet J.M., Brossard P. and Bourges J., The selective extraction of oxidized minor actinides: a possible route for the ACTINEX program, Global '93 Future nuclear systems: emerging fuel cycles and aste disposal options, Seattle (Washington) 12-17 september 1993.
- [17] Battles J.E. *et al.*, Pyrometallurgical processing of integral fast reactor metal fuel, Recod '91 1 (1991) 342-347, Sendai (Japan) 14-18 april 1991.
- [18] Hill C., Dozol J.-F., Lamare V. *et al.*, Nuclear waste treatment by means of supported liquid membranes containing calixcrown compounds, *Journal of Inclusion Phenomena and Molecular Recognition in Chemistry* 19 (1994) 399-408.
- [19] Hirano H. *et al.*, The Progress of TRUEX process improvement in PNC-The applicability of "salf-free" reagents, Third international information exchange meeting on actinide and fission product partitioning and transmutation, Cadarache (France) 12-14 décembre 1994.
- [20] Commission nationale d'évaluation relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs :
– Rapport d'évaluation n° 1 (juin 1995)
– Rapport d'évaluation n° 2 (juin 1996)

5 Transmutation : physique et stratégies⁽¹⁾

Massimo Salvatores^(★) et Alain Zaetta^(★)

1. Les données du problème

1.1. Notions de radiotoxicité

Toute évaluation de stratégie vis-à-vis de la gestion des déchets radioactifs à vie longue passe par une revue de données objectives telles que l'analyse d'un combustible standard irradié dans un REP et déchargé après avoir atteint un certain taux de combustion.

Cette analyse devrait être à la base d'une évaluation des nucléides importants. Cependant un critère objectif et unique de classification présupposerait une définition unique des risques représentés par un colis de déchets dans un stockage profond. À l'heure actuelle, sont utilisées deux notions de toxicité qui peuvent servir à la définition de stratégies de séparation/transmutation et en évaluer l'impact. À la base des deux notions que nous appellerons "radiotoxicité

(1) Le contenu de ce chapitre est basé sur une très large bibliographie (plusieurs centaines de titres). On trouvera des références récentes dans les actes des conférences [1, 2, 3].

(★) Commissariat à l'énergie atomique, CEA/Cadarache/DRN, 13108 St-Paul-lez-Durance Cedex.

potentielle" et "radiotoxicité résiduelle", il y a l'évaluation de l'activité d'un combustible irradié. Si l'activité est multipliée par des coefficients de "risque d'ingestion" (exprimés en Sv/Bq), on obtient la "radiotoxicité potentielle" $R(t)$:

$$R(t) = a \sum_i \frac{Q_i(t)}{Q_o(0)} \frac{D_i}{MT_i} \text{ (Sv / g)}$$

où a est une constante ($a = 1,322 \times 10^{16}$). $R(t)$ s'exprime en Sv/g. La radiotoxicité provient de l'isotope père (présent au temps $t = 0$) et de tous ses descendants i . $Q_o(0)$ est le nombre de noyaux de l'isotope père à $t = 0$ et $Q_i(t)$ le nombre de noyaux du descendant i au temps t . M est la masse molaire de l'isotope père. T_i est la période radioactive en années du noyau i . D_i est le coefficient de "danger" à l'ingestion de l'isotope i (exprimé en Sv/Bq). Un exemple est donné sur la figure 1, où l'évolution de la radiotoxicité d'un gramme de plutonium 241 est représentée en fonction du temps, mettant en évidence les contributions successives des descendants du plutonium 241. Il est important de réaliser qu'un gramme de plutonium 241 donne une radiotoxicité sur une échelle de temps bien plus grande que l'échelle de temps liée à la disparition du plutonium 241 initial.

La radiotoxicité potentielle est une notion essentiellement physique liée aux périodes de désintégration. En effet, l'utilisation de l'activité ne change pas de façon significative les conclusions que l'on peut tirer d'une analyse en termes de radiotoxicité potentielle. Cette notion ne prend pas en compte des barrières éventuelles autour de la "source" d'activité dans un stockage. Cependant, elle est utile dans le cas d'évaluation de l'évolution "anormale" (intrusion) des stockages ou des colis stockés.

La deuxième notion, la "radiotoxicité résiduelle", ne considère que la fraction de la source d'activité qui revient à la biosphère (après dissolution, migration, etc.). Cette notion, dont l'évaluation quantitative est très liée aux propriétés physico-chimiques des différents isotopes et des milieux de l'environnement géologique, est essentiellement liée à l'évolution "normale" des stockages.

Par la suite, on fera essentiellement état de la radiotoxicité potentielle, même si certaines conséquences de la prise en compte de la radiotoxicité résiduelle seront aussi évoquées.

1.2. Combustible irradié et radiotoxicité associée

En ce qui concerne la source de radiotoxicité potentielle, le tableau I donne la décomposition des constituants d'un combustible irradié dans un *REP standard* à un *taux de combustion de 33 GWj/t*. En ce qui concerne les actinides mineurs, le tableau II donne les constantes et les modes de décroissance et le tableau III des indications plus détaillées sur les quantités produites.

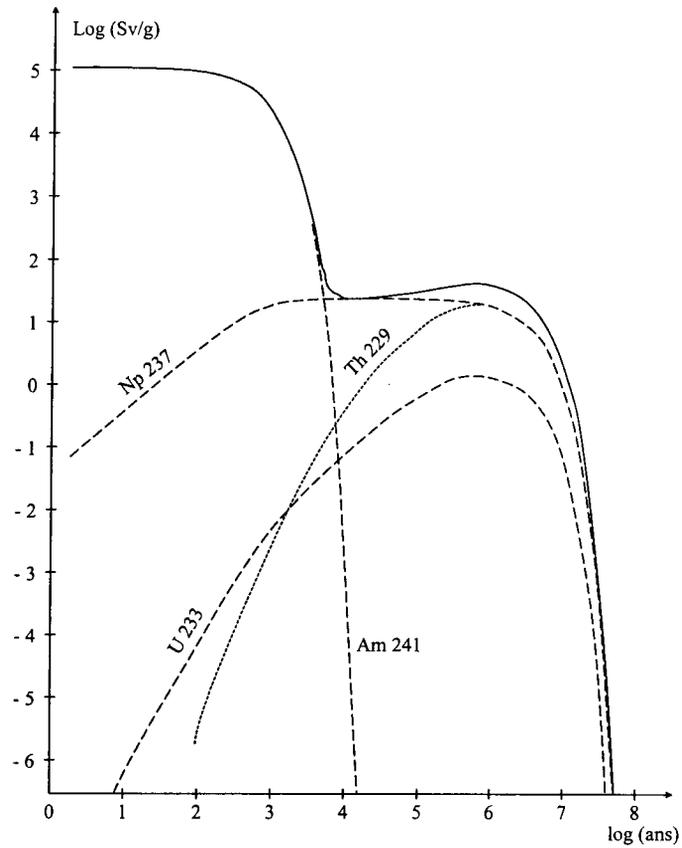


Figure 1 : Radiotoxicité (ingestion) due à 1 g de plutonium 241.

Tableau I : Décomposition des constituants d'un combustible irradié déchargé d'un REP.

1REP de 1000 MWé chargé avec un combustible UOX et qui produit 6 TWhé/an, génère 21 t de combustible irradié par an			
20 t U avec 0,9 % ²³⁵ U	200 kg Pu	21 kg d'Actinides mineurs 10,4 kg Np 9,8 kg Am 0,8kg Cm	760 kg de Produits de Fission 35 kg ¹³⁵ Cs + ¹³⁷ Cs 18 kg ⁹⁹ Tc 16 kg ⁹³ Zr 5 kg ¹⁰⁷ Pd 3 kg ¹²⁹ I

Tableau II : Décroissance naturelle des actinides.

Isotopes	Émission	Période	Éléments de la descendance
^{237}Np	α	$2,1 \times 10^6$ ans	^{233}Pa (27 jours) ^{233}U ($1,6 \times 10^5$ ans)
^{239}Np	β^-	2,3 jours	^{239}Pu
^{241}Am	α	432 ans	^{237}Np
^{242g}Am	β^- (0,83) β^+ (0,17) trans. isoméri.	16 heures	^{242}Cm ^{242}Pu ^{242g}Am
^{243}Am	α	7 380 ans	$^{239}\text{Np} \rightarrow ^{239}\text{Pu}$
^{242}Cm	α	163 jours	^{238}Pu
^{244}Cm	α	18 ans	^{240}Pu
^{245}Cm	α	8 500 ans	$^{241}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np}$
^{236}Pu	α	2,8 ans	^{232}U (72 ans), ..., ^{208}Tl
^{238}Pu	α	87 ans	^{234}U ($2,4 \times 10^5$ ans), ^{230}Th
^{239}Pu	α	24 000 ans	^{235}U
^{240}Pu	α	6 540 ans	^{236}U
^{241}Pu	β^-	14 ans	^{241}Am
^{242}Pu	α	$3,7 \times 10^5$ ans	^{238}U

À partir de ces données, le tableau IV donne l'évolution de la radiotoxicité $R(t)$ de ce type de combustible, normalisée à l'énergie produite. La décomposition met en évidence la contribution prépondérante du plutonium sur toute l'échelle des temps et la contribution très modeste des produits de fission radioactifs à vie longue (PFVL). Le tableau IV indique aussi les contributions à la radiotoxicité de l'uranium de retraitement (URT), de l'uranium appauvri, et des résidus miniers.

Cette radiotoxicité potentielle est celle qui serait à associer à un combustible REP stocké en l'état (hypothèse du stockage direct). Elle servira comme point de comparaison pour les analyses de scénarios, dont il sera question plus loin.

Enfin, il faut rappeler que, en termes de radiotoxicité résiduelle, les produits de fission représentent la composante la plus importante, à cause de leur comportement (solubilité) et leur vitesse de migration dans les différents milieux géologiques (supérieure de plusieurs ordres de grandeur par rapport aux mêmes paramètres pour les actinides). Il est donc intéressant de donner la décomposition par isotopes majeurs du terme relatif au PFVL du tableau IV. Ces valeurs sont indiquées dans le tableau V.

Par ailleurs le tableau Vbis rappelle les quantités de PFVL produites dans le REP standard que nous avons pris comme référence.

Ce dernier tableau montre le fait important que les radio-isotopes à vie longue représentent parfois un pourcentage modeste de l'élément chimique. On reviendra plus loin sur cette caractéristique.

Tableau III : La production d'actinides (parc EDF actuel).

- Plutonium : environ 200 g/MWé/an au total, soit environ 11 t/an.
Dans l'hypothèse de pertes au retraitement de l'ordre de 0,3 % du plutonium, ceci conduit à environ 30 kg/an.
- Neptunium : 10 g/MWé/an pour ^{237}Np .
À long terme, il convient d'ajouter les quantités qui résultent du plutonium 241, de l'américium 241 et du curium 245. Dans l'hypothèse de pertes en plutonium voisines de 0,3 %, le neptunium 237 potentiel est d'environ 800 kg/an.
- Américium :
 - ^{241}Am (T = 432 ans). Il apparaît par décroissance β^- du plutonium 241 (T = 14 ans). Pour un retraitement trois ans après la sortie du réacteur, la production est de 5 g/MWé/an, soit 250 kg/an.
 - ^{242m}Am (T = 141 ans). Sa production est de 0,014 g/MWé/an (faible).
 - ^{243}Am (T = 7 380). Sa production est de 3 g/MWé/an ; la source principale provient du plutonium 239 dans les déchets à partir d'un temps compris entre 10^4 et 10^5 ans (7 à 8 fois plus important que le plutonium 239 résultant de pertes au retraitement).
- Curium :
 - ^{242}Cm (T = 6 mois) donne du plutonium 239.
 - ^{243}Cm (T = 28,5 ans) donne du plutonium 239 en quantité négligeable, par rapport à l'américium 243.
 - ^{244}Cm (T = 18 ans) donne du plutonium 239 en quantité environ cinq fois supérieure aux pertes de retraitement.
 - ^{245}Cm (T = 8500 ans) donne à terme du neptunium 237 mais en quantité plus faible.

Tableau IV : Composantes de la source de radiotoxicité potentielle et évolution avec le temps (pour un combustible REP et un taux de combustion de 33 GWj/t).

	10 ³ ans	10 ⁴ ans	10 ⁵ ans	10 ⁶ ans
Total = URT + Pu + Np + Cm +PF (Sv/TWhé)	3,1 × 10 ⁶	7,7 × 10 ⁷	4,2 × 10 ⁶	5,2 × 10 ⁵
Composantes (%)				
URT	/	/	6	28
Pu	90	97	88	50
Np	/	/	1,3	13
Am	9,2	2,5	2,7	6,8
Cm	0,3	0,4	/	/
PFVL	6,0 × 10 ⁻⁴	2,4 × 10 ⁻³	3,2 × 10 ⁻²	9,6 × 10 ⁻²
Composantes "Uranium" (Sv/TWhé)				
U appauvri	2,4 × 10 ⁴	3,5 × 10 ⁴	1,4 × 10 ⁵	5,7 × 10 ⁵
URT	2,1 × 10 ⁴	4,8 × 10 ⁴	2,2 × 10 ⁵	1,4 × 10 ⁵
Résidus miniers	7,2 × 10 ⁵	6,6 × 10 ⁵	2,6 × 10 ⁵	6,5 × 10 ⁷

Tableau V : Contribution des principaux PFVL (% du total) à la source de radiotoxicité potentielle.

	10 ³ ans	10 ⁴ ans	10 ⁵ ans
⁷⁹ Se (6,5 × 10 ⁴ ans)	6	5	3
⁹³ Zr (1,5 × 10 ⁶ ans)	12	12	14
⁹⁹ Tc (2,1 × 10 ⁵ ans)	36	37	36
¹²⁶ Sn (1,0 × 10 ⁵ ans)	24	24	17
¹²⁹ I (1,6 × 10 ⁶ ans)	16	16	22
¹³⁵ Cs (2,3 × 10 ⁶ ans)	6	6	8

Tableau Vbis : Production des principaux PFVL (réacteurs REP chargé avec un combustible d'oxyde d'uranium, REP-UOX, avec un taux de combustion de 33 GWj/t).

	Quantité d'isotope (kg/TWhé)	Quantité d'élément (kg/TWhé)
⁷⁹ Se (6,5 × 10 ⁴ ans)	0,018	0,209
⁹³ Zr (1,5 × 10 ⁶ ans)	2,8	13,7
⁹⁹ Tc (2,1 × 10 ⁵ ans)	3,2	3,2
¹²⁶ Sn (1,0 × 10 ⁵ ans)	0,079	0,2
¹²⁹ I (1,6 × 10 ⁶ ans)	0,66	0,8
¹³⁵ Cs (2,3 × 10 ⁶ ans)	1,40	14,0
TOTAL	9,0	37

1.3. Rôle de la transmutation dans le contexte d'utilisation du plutonium

Le constat du rôle dominant du plutonium dans la toxicité d'un combustible irradié met en évidence que toute stratégie de gestion des déchets radioactifs est étroitement liée à la stratégie adoptée pour l'utilisation du plutonium. Avant d'aborder la discussion sur la physique de la transmutation et sur les types de réacteurs et les modes de recyclage, il est utile d'indiquer qu'une approche réaliste doit tenir compte d'un ensemble de conditions dont la variabilité peut avoir une influence marquée sur la faisabilité des différentes options. À titre d'illustration, on donne dans le tableau VI des résultats concernant la variation de production d'actinides mineurs si on fait varier le délai intercycle et si on considère la production d'actinides mineurs d'un combustible MOX. Nous reviendrons plus loin sur ces aspects de scénarios "réalistes".

Tableau VI : Production d'actinides mineurs (kg/TWhé) pour un réacteurs REP chargé avec un combustible d'oxyde d'uranium (REP-UOX) et un combustible MOX (REP-MOX).

		À la sortie du réacteur	Après 3 ans	Après 10 ans
Combustible REP-UOX	Np	2	2	2
	Am	0,5	1,1	2,4
	Cm	0,13	0,08	0,03
	Total	2,6	3,2	4,4
Combustible REP-MOX	Np	0,5	0,5	0,5
	Am	6,6	10	17
	Cm	3,0	2,0	1,5
	Total	10	13	19

Pour l'instant, il faut rappeler que, si l'on considère l'option de transmutation, en cohérence avec la demande de l'axe 1 de la loi Bataille de 1991, on ne connaît aujourd'hui d'autres voies réalistes que la transmutation par interaction des isotopes à transmuter avec des neutrons. Les neutrons peuvent être produits de plusieurs façons mais toutes les propositions font essentiellement appel à la fission par neutrons, comme moyen privilégié pour transformer l'isotope radioactif en question, en isotope stable ou radioactif avec une période nettement plus courte.

Faire appel à la fission signifie considérer la transmutation dans le contexte de la réaction en chaîne qui caractérise le fonctionnement du cœur d'un réacteur. Toutefois, étant donné que la transmutation perturbe le bilan neutronique qui permet à un réacteur de fonctionner, on peut se rendre compte simplement que la transmutation est essentiellement une question de "disponibilité de neutrons". Une approche générale de la physique de la transmutation permettra d'éclaircir ce point et de donner des indications quantitatives importantes.

2. Physique de la transmutation par neutrons

Les différents types de réacteurs à fission (critiques ou, comme on le verra par la suite, sous-critiques) sont caractérisés par des spectres différents : à neutrons plus ou moins thermalisés (réacteurs à eau sous pression ou réacteurs à eau lourde, dont le spectre neutronique est très thermalisé) ou à neutrons rapides (RNR). La fission de noyaux dont la transmutation serait à envisager (les actinides mineurs) varie en fonction de l'énergie des neutrons, et est toujours en compétition avec d'autres réactions, notamment la capture neutronique. Les sections efficaces des différents isotopes peuvent être moyennées dans les différents types de spectre, pour avoir une indication synthétique des qualités des différents spectres neutroniques, en particulier si l'on veut favoriser les fissions par rapport aux captures neutroniques.

En effet, ce dernier processus "transmute" un isotope radioactif en un autre isotope, également radioactif.

Le tableau VII donne les sections efficaces moyennes de fission et de capture (et leur rapport α) dans le spectre neutronique d'un REP standard et d'un RNR de type Superphénix. Les données de ce tableau, indiquent que d'un point physique, les RNR présentent des avantages certains pour la transmutation.

Tableau VII : Sections efficaces moyennes^a de fission σ_f et de capture neutronique σ_c , ainsi que leur rapport $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$.

Isotope	Réacteur thermique REP			Réacteur rapide RNR		
	σ_f	σ_c	α	σ_f	σ_c	α
²³⁷ Np	<u>0,52</u>	<u>33</u>	63	<u>0,32</u>	<u>1,7</u>	5,3
²³⁸ Np	134	13,6	0,1	3,6	0,2	0,05
²³⁸ Pu	2,4	27,7	12	1,1	0,58	0,53
²⁴¹ Am	<u>1,1</u>	<u>110</u>	100	<u>0,27</u>	<u>2,0</u>	7,4
²⁴² Am	159	301	1,9	3,2	0,6	0,19
^{242m} Am	595	137	0,23	3,3	0,6	0,18
²⁴³ Am	<u>0,44</u>	<u>49</u>	111	<u>0,21</u>	<u>1,8</u>	0,57
²⁴² Cm	1,14	4,5	3,9	0,58	1,0	1,7
²⁴³ Cm	88	14	0,16	7,2	1,0	0,14
²⁴⁴ Cm	1,0	16	16	0,42	0,6	1,4
²⁴⁵ Cm	116	17	0,15	5,1	0,9	0,18
²³⁵ U	38,8	8,7	0,22	1,98	0,57	0,29
²³⁹ Pu	102	58,7	0,58	1,86	0,56	0,3

^a Les sections efficaces se calculent au moyen de l'expression $\sigma = \int \alpha(E) \phi(E) dE / \int \phi(E) dE$ où ϕ est le flux de neutron.

Cependant cette analyse reste qualitative et approximative, étant donné qu'il faut fournir des réponses plus détaillées et générales aux questions suivantes.

- Le bilan neutronique du cœur du réacteur considéré permet-il l'introduction d'actinides mineurs ou de produits de fission à transmuter ?
- La production d'autres isotopes a-t-elle des conséquences (par exemple sur le cycle du combustible) ?
- La présence dans le cœur d'isotopes à transmuter, introduits "de l'extérieur", a-t-elle des conséquences sur les paramètres du cœur ?

La réponse à la première question fera l'objet des prochains paragraphes de cette section. La section 3 traitera des deux autres questions.

2.1. La consommation de neutrons

L'évolution du nombre de noyaux N_j d'un isotope J est donné par de simples équations différentielles du type :

$$\frac{dN_j}{dt} = AN_j$$

où A est un opérateur qui représente la production et la disparition de l'isotope J pendant l'irradiation en réacteur. Une forme plus explicite de cette équation est donné dans la note (2) et la figure 2 montre l'exemple de la chaîne de désintégration du neptunium.

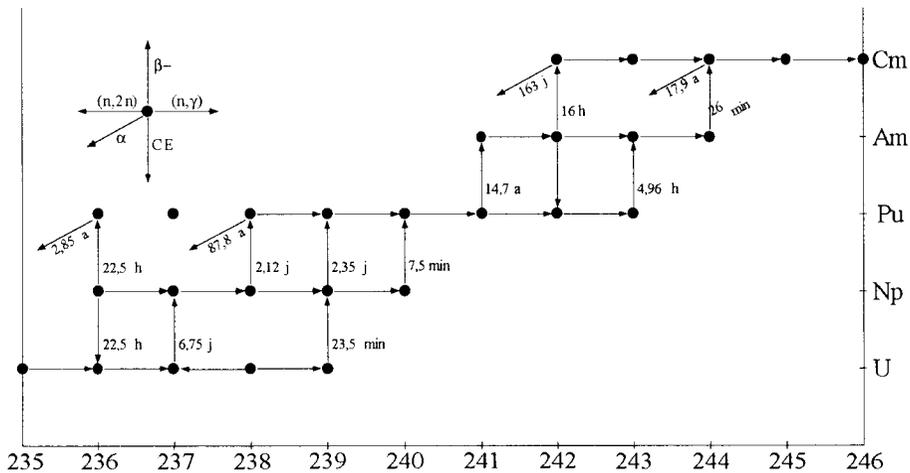


Figure 2 : Chaîne de désintégration du neptunium.

On peut définir des situations d'équilibre, telles que $dN_j/dt = 0$, en injectant (hypothèse de départ) de façon continue un terme "source" à l'équation précédente. Ces configurations d'équilibre permettent d'évaluer très facilement pour chaque isotope J sa consommation de neutrons D_j (normalisée à une fission), définie de la façon suivante : D_j est le nombre de neutrons nécessaires pour transformer l'isotope J (et tous les isotopes produits par réactions successives à partir de J) en isotopes

$$(2) \quad \frac{dN_j}{dt} = (-\sigma_{aj} \Phi - \lambda_j) N_j + \sum_K (\sigma'_{pK} \Phi + \lambda'_K)$$

où N_p , σ_{aj} , λ_j sont respectivement la densité atomique, la section efficace d'absorption et la constante de décroissance de l'isotope J ; σ'_{pK} est la section efficace de production de l'isotope J à partir de l'isotope K ; λ'_K est la constante de décroissance du processus de desintégration de l'isotope K vers l'isotope J ; Φ est le flux de neutron.

stables (ou produits de fission). Il faut noter que $D_j < 0$ signifie "production" de neutrons et $D_j > 0$ signifie "consommation" de neutrons.

L'algorithme pour calculer D_j est le suivant (ayant indiqué par des indices $J1, J2, \dots, JM$ les isotopes successifs produits par réaction neutronique ou par décroissance radioactive, M étant le nombre de générations) :

$$D_j = \sum_{J1_i} P_{J \rightarrow J1_i} \left\{ R_{J1_i} + \sum_{J2_k} P_{J1_i \rightarrow J2_k} (R_{J2_k} + \dots) \right\}$$

où $P_{JN_r \rightarrow (JN+1)_s}$ est la probabilité de la transmutation de type JN_r en type $(JN+1)_s$, normalisée au taux de toutes les réactions possibles JN_c , R_x est la perte ou le gain de neutrons suivant l'apparition de l'isotope M de la génération précédente. On a :

$$R_x = \begin{cases} 1 & \text{pour une transmutation de capture neutronique} \\ 0 & \text{pour une décroissance radioactive} \\ 1 - \nu & \text{pour une fission (donnant lieu à } \nu \text{ neutrons)} \\ -1 & \text{pour les réactions (n, 2n)} \end{cases}$$

Chaque somme concerne tous les isotopes des générations correspondantes. Dans le cas d'un mélange d'isotopes J (cas d'un combustible), on peut calculer un D_{comb} défini comme suit :

$$D_{comb} = \sum_J \epsilon_J D_J$$

ϵ_J étant la fraction de l'isotope J dans le mélange.

Les valeurs de D sont fonction des constantes de décroissance radioactive, des sections efficaces des réactions, du spectre énergétique des neutrons et de l'intensité du flux neutronique. Le tableau VIII donne les valeurs de D pour plusieurs isotopes ou mélange d'isotopes, pour différents spectres neutroniques et différentes intensités de flux, représentatifs de la plupart des cœurs de réacteurs (REP, RNR, CANDU).

Plusieurs constats importants peuvent être faits à partir de ce tableau :

- dans un spectre de réacteurs à neutrons rapides, pratiquement tous les actinides sont "producteurs" de neutrons ;
- dans un spectre de réacteur REP et pour des intensités de flux standard ($\phi \sim 10^{14}$ neutrons/cm²s), plusieurs actinides se comportent comme des "poisons" consommateurs de neutrons (notamment ²³⁷Np, ²⁴¹Am et ²⁴³Am) ;
- un spectre très thermalisé à haut flux est mieux placé qu'un spectre d'un REP standard, mais systématiquement moins bien placé par rapport à un spectre de RNR.

Ces considérations s'appliquent aussi bien aux isotopes individuels et aux mélanges d'isotopes représentatifs de :

- transuraniens déchargés d'un REP standard ;
- transplutoniens (+Np) déchargés d'un REP standard ;
- plutonium déchargé d'un REP standard.

Tableau VIII : Valeurs de D_J : consommation de neutrons (normalisée à une fission) de l'isotope J , ou d'un type de combustible ($D < 0$: production de neutrons).

Isotope (ou type de combustible)	Spectres neutroniques et niveaux de Φ (n/cm ² s)			
	Spectre rapide	REP standard		Spectre thermalisé
	$\Phi = 10^{15}$	$\Phi = 10^{14}$	$\Phi = 10^{16}$	$\Phi = 10^{16}$
Th(avec extraction du ²³³ Pa)	-0,39	-0,24	-0,24	-0,27
Th(sans extraction du ²³³ Pa)	-0,38	-0,20	1,22	1,14
²³⁸ U	-0,62	0,07	0,05	0,01
²³⁸ Pu	-1,36	0,17	0,042	-0,13
²³⁹ Pu	-1,46	-0,67	-0,79	-1,07
²⁴⁰ Pu	-0,96	0,44	0,085	0,14
²⁴¹ Pu	-1,24	-0,56	-0,91	-0,86
²⁴² Pu	-0,44	1,76	1,10	1,12
²³⁷ Np	-0,59	1,12	0,53	-0,463
²⁴¹ Am	-0,60	0,82	0,16	0,21
²⁴³ Am	-0,60	0,82	0,16	0,21
²⁴⁴ Cm	-1,39	-0,15	-0,53	-0,48
²⁴⁵ Cm	-2,51	-1,48	-1,46	-1,37
D_{TRU} (décharge d'un REP)	-1,17	-0,050	-0,35	-0,54
$D_{TRPu} + Np$ (décharge d'un REP)	-0,70	1,1	0,3	-0,4
D_{Pu} (décharge d'un REP)	-1,1	-0,20	-0,40	-0,53

Les valeurs numériques indiquées dans le tableau VIII sont importantes parce que l'on peut exprimer l'excès (positif ou négatif) de neutrons dans le bilan neutronique d'un cœur de réacteur de la façon suivante :

$$G = -D_{comb} - (CM + L)$$

où CM et L sont respectivement le nombre de neutrons (libérés par fission) perdus par captures parasites (dans les structures, etc.) et par fuite.

En effet, étant donné que $(CM + L)$ est égal à environ 0,3 neutron/fission dans la plupart des réacteurs, les valeurs de D_{comb} du tableau VIII indiquent les cas de bilans neutroniques "acceptables" (par exemple tous les cas RNR) et les cas qui nécessitent un apport supplémentaire de neutrons (par exemple dans le cas des REP, à l'aide d'un surenrichissement en uranium 235).

Enfin, dans le cas des produits de fission à vie longue (PFVL), on peut aussi évaluer le nombre de neutrons qui doivent être "consommés" pour les réduire à des isotopes stables. Les valeurs de D_J sont données dans le tableau IX pour des ensembles de PFVL selon différentes hypothèses. Il est difficile de transmuter l'ensemble des PFVL si l'on ne procède au préalable à une opération de séparation isotopique.

Tableau IX : Valeurs de D_{PFVL} selon 5 hypothèses.

Composition des PFVL		REP-UOX	RNR
1	PFVL ($T_{1/2} > 10$ ans) sans séparation isotopique	1,99	1,90
2	PFVL ($T_{1/2} > 10$ ans) sans séparation isotopique Extraction du Ce et Nd	1,41	1,39
3	PFVL ($T_{1/2} > 10$ ans) avec séparation isotopique	0,46	0,44
4	PFVL ($T_{1/2} > 10$ ans) avec séparation isotopique et extraction du Ce et Nd	0,36	0,35
5	PFVL ($T_{1/2} > 30$ ans) avec séparation isotopique et extraction du Ce et Nd	0,27	0,27

Ces simples considérations de physique indiquent que l'on peut envisager la "transmutation" de n'importe quel actinide (^{241}Am , ^{243}Am , ^{237}Np ...) dans un réacteur à neutrons rapides. L'effet de l'intensité du flux est secondaire, sauf dans quelques cas particuliers (^{237}Np).

Par contre, si l'on veut transmuter les produits de fission à vie longue (^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs , ^{79}Se , ^{126}Sn ...) il n'y a pas suffisamment de neutrons disponibles car $D_{PF} \cong 2$ et $D_{PFVL} \cong 0,3-0,5$ (avec séparation isotopique).

Dans les situations du bilan neutronique proche de zéro, on peut envisager un excès supplémentaire de neutrons, avec l'utilisation d'une source externe. Le paragraphe suivant traitera de ce cas particulier.

2.2. Potentiel des systèmes hybrides

Si l'on introduit un combustible composé d'isotopes J dans un système multiplicateur qui a une source externe de S_{ext} neutrons/fission, des fuites L neutrons/fission, des captures parasites CM neutrons/fission, le bilan neutronique doit satisfaire la condition : $S_{ext} - D_{comb} \geq L + CM$. L'excès de neutrons G est défini dans ce cas par l'expression : $G = S_{ext} - D_{comb} - (L + CM)$. Si l'on introduit dans le système des produits de fission que l'on veut transmuter, caractérisés par une "consommation" de neutrons D_{PF} , le bilan neutronique doit satisfaire la condition : $S_{ext} - D_{comb} \geq L + CM + D_{PF}$.

Pour un système sous-critique (le coefficient de multiplication k_{eff} est inférieur à 1), la condition pour avoir un système stationnaire s'exprime de la façon suivante :

$$S_{ext} + v = \frac{v}{k_{eff}}$$

où ν est le nombre de neutrons prompts par fission. Par exemple, dans un système hybride (voir figures 3 et 4) : $S_{ext} = \Gamma f$, où Γ est le nombre de neutrons qui reviennent au milieu sous-critique si toute l'énergie de fission E_f est transformée en courant de protons et où f est la fraction de E_f utilisée pour alimenter l'accélérateur.

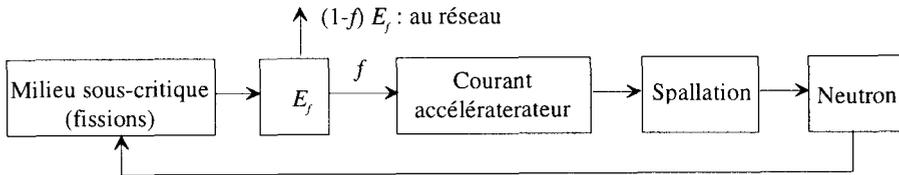


Figure 3 : Principe d'un système hybride.

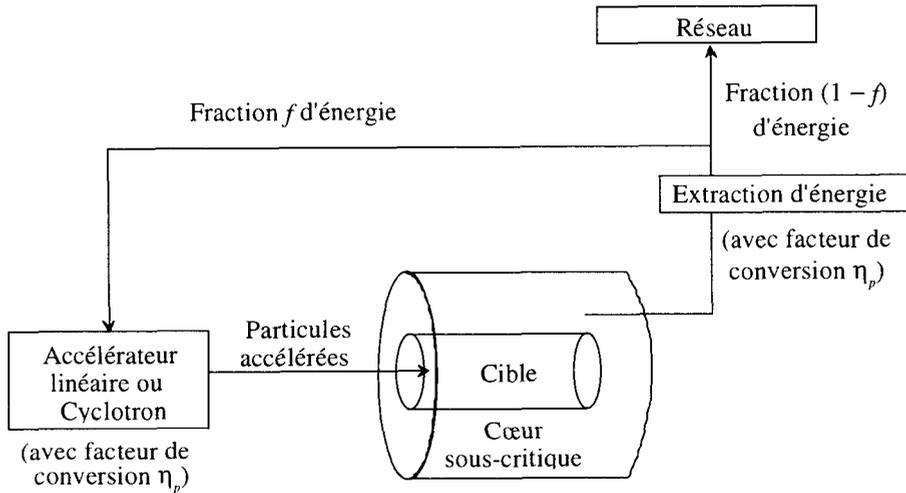


Figure 4 : Système hybride.

Pour évaluer quantitativement un ordre de grandeur pour Γ , on peut faire les simples considérations suivantes. Si l'énergie des protons accélérés est :

$$E_p \approx 1-2 \text{ GeV}$$

et pour des cibles telles que le rapport Z entre les nombres de neutron et de proton est d'environ 40 à 50, on a :

$$\Gamma = Z \eta_e \eta_p \frac{E_f}{E_p} \Rightarrow 1-1,5 \text{ neutrons / fission}$$

avec l'hypothèse sur les rendements $\eta_e \cong 0,4$ et $\eta_p \cong 0,5$. Par ailleurs :

$$\Gamma f + \nu = \frac{\nu}{k_{eff}} \Rightarrow f = \frac{\nu}{\Gamma} \frac{1 - k_{eff}}{k_{eff}}$$

Dans le but d'avoir des ordres de grandeur représentatifs de f , on peut considérer les valeurs suivantes : $\nu \cong 3$, $\Gamma \cong 1,5$ et $k_{eff} \cong 0,95$. Dans ce cas, on a $f \cong 10\%$.

Cela peut être interprété comme une amplification de l'énergie par un facteur 10, ou bien comme une consommation de 10 % de l'énergie pour alimenter le système sous-critique.

Il est utile de rappeler quelques conséquences physiques des relations simples présentées plus haut.

- Si toute l'énergie produite par le réacteur sous-critique est utilisée pour alimenter l'accélérateur, on peut être très sous-critique (par exemple $k_{eff} \cong 0,7$).
- Puisque Γ et f ont des valeurs fixées par E_p et le type de cible, S_{ext} sera d'autant plus importante par rapport à ν ($\approx 2,5-3$) que le système est sous-critique ($f \rightarrow 1$, $S_{ext}^{max} \Rightarrow 1-1,5$).
- Si $f \cong 10-20\%$, l'apport de neutrons/fission est de 0,3-0,4 neutrons/fission ($k_{eff} \cong 0,9$).
- Le courant I de l'accélérateur est donné par l'expression :

$$I = \frac{\Gamma f}{Z} W \frac{1}{E_f}$$

où W est la puissance du milieu multiplicateur. On obtient $I \cong 20-50$ mA/GWth dans le cas $f = 0,2$ et $Z = 30-50$ n/p. Cette relation indique que I sera d'autant plus faible que le système est proche de la criticité et que la puissance du réacteur sous-critique sera faible. Par exemple pour $k_{eff} = 0,95$ et $W = 300$ MWth, on a $I \cong 5$ mA.

L'excès de neutrons que l'on peut obtenir à l'aide d'un système hybride, même s'il a un coût énergétique, peut donc être utilisé pour la transmutation des actinides mineurs. Cette option "physique" représente une alternative par rapport à la transmutation en réacteur rapide (voir section 3.), mais pourrait présenter l'intérêt de concentrer dans un nombre limité d'installations (environ 2-5 % d'un parc de réacteurs) les actinides mineurs (américium, curium...). Ces installations auraient l'avantage de la sous-criticité, pour pallier du moins en partie, aux difficultés liées à la conception de systèmes multiplicateurs avec des combustibles très exotiques.

Par ailleurs, les systèmes hybrides semblent représenter la seule option de transmutation des PFVL, dont la forte consommation de neutrons rendrait rédhitoire la transmutation en réacteur à fission critique.

Un exemple de schéma de parc de réacteurs avec des hybrides pour la transmutation des actinides mineurs est donné dans la figure 5.

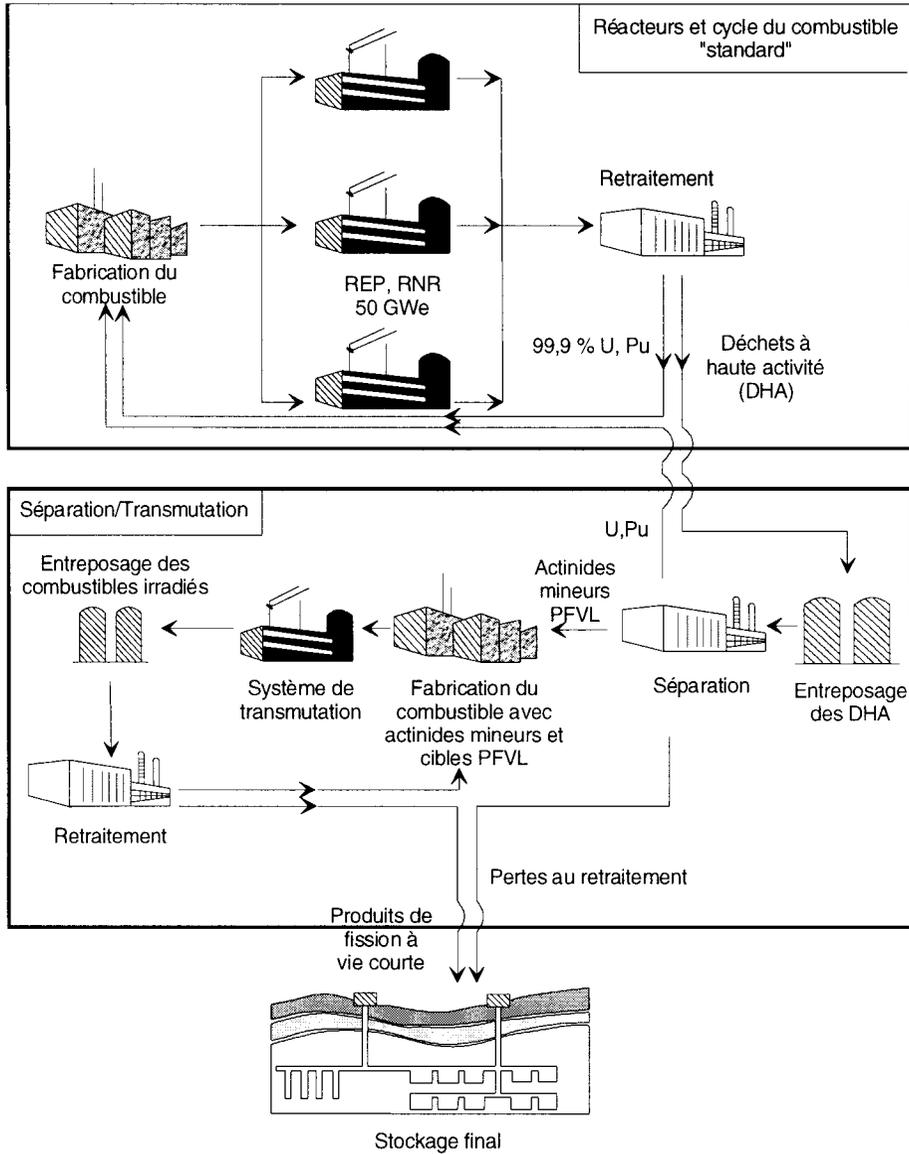


Figure 5 : Une stratégie "à deux strates" pour la gestion des déchets avec séparation/transmutation.

3. Études d'incinération dans les réacteurs nucléaires de technologie actuelle

En ce qui concerne les réacteurs nucléaires de technologie actuelle, le recyclage en réacteurs à fission des déchets à vie longue peut être envisagé selon deux voies :

- une voie dite homogène où les déchets sont mélangés au combustible standard ;
- une voie dite hétérogène où les déchets sont séparés du combustible standard et placés dans des cibles spécifiques.

3.1. Transmutation des actinides mineurs

3.1.1. Conséquences sur les caractéristiques des cœurs

En mode homogène, l'impact sur les caractéristiques physiques du cœur dû à l'introduction d'actinides mineurs tels que le neptunium ou l'américium est quasi proportionnel à la teneur en actinides présents initialement. De manière générale pour les RNR comme pour les REP, les études menées jusqu'ici indiquent les tendances suivantes :

- une réduction de la perte de réactivité sur le cycle (effet généralement favorable) ;
- une dégradation du coefficient de réactivité lié à la température du combustible et de l'efficacité du bore ;
- une augmentation de l'effet en réactivité lié à la vidange du caloporteur dans le sens défavorable vis-à-vis de la sûreté, même si cela est maîtrisable.

Pour les réacteurs thermiques, il est de plus nécessaire de surenrichir le combustible ce qui est particulièrement pénalisant économiquement dans le cas d'un combustible UO_2 . Cet effet est directement lié aux considérations sur le bilan neutronique, développées à la section 2.

Les réseaux d'aiguilles de combustible à rapport de modération accru (RMA) présentent des avantages marqués vis-à-vis de la faisabilité du recyclage des actinides.

Ces conséquences diverses imposent de limiter la quantité maximale admissible d'actinides mineurs dans le combustible à environ 5 % de la masse totale des isotopes lourds pour les réacteurs rapides et de 1 à 2 % pour les réacteurs thermiques.

En mode hétérogène, dans le cas où les cibles sont placées dans le cœur, les conséquences sont voisines de celles du mode homogène. Dans le cas où les cibles sont placées en périphérie du cœur, l'impact sur les caractéristiques physiques du cœur reste faible si la concentration en actinides est limitée pour éviter des problèmes de dégagement de puissance en cours d'irradiation.

3.1.2. Performances de transmutation

Les performances d'incinération des actinides s'expriment en termes de taux de consommation qui traduisent la disparition de l'élément considéré par fission et par capture neutronique entre le début et la fin de l'irradiation. Ces taux varient entre 40 et 70 % selon les différentes voies de recyclage envisagées (tableau X).

Plus intéressante est la proportion de l'élément détruit uniquement par fission. Ce taux de fission varie entre 20 et 30 % dans les RNR et seulement entre 5 % et 15 % dans les REP mettant en évidence l'avantage intrinsèque du spectre neutronique rapide.

Selon les voies d'incinération étudiées, les niveaux de consommation en fonction de l'énergie produite varient entre 10 et 15 kg/TWhé. Ces taux sont nettement supérieurs au taux de production des actinides mineurs dans un REP à combustible standard UO₂ (de l'ordre de 3 kg/TWhé). Ces performances permettent d'envisager des parcs nucléaires mixtes constitués pour une part par des réacteurs classiques et d'autre part par un nombre limité de réacteurs dédiés à l'incinération des déchets nucléaires à vie longue.

Tableau X : Bilans massiques après un recyclage.

	RNR de type EFR ^a		REP	
	(1500 MWé) Recyclage homogène (teneur = 2,5 %) TCT = 120 GWj/t	Recyclage hétérogène dans les couvertures radiales (teneur 40 %)	Combustible MOX avec support de modération = 3 (teneur = 1 %) TCT = 47,5 GWj/t	Combustible UOX Recyclage hétérogène dans le cœur TCT = 42 GWj/t
Neptunium				
Consommation (kg/TWhé)	10	13	11	15
Taux consommation (%)	60	60	45	38
Taux fissionné (%)	27	24	9	3
Américium				
Consommation (kg/TWhé)	9	14	10	8
Taux consommation (%)	45	60	42	70
Taux fissionné (%)	18	22	6	13

^a *European Fast Reactor*

3.1.3. Conséquences sur les grandeurs physiques du cycle du combustible

Il ne s'agit pas ici de considérer l'ensemble du cycle du combustible mais seulement de déterminer les grandeurs (activité, sources, puissance à l'entrée et à la sortie du réacteur) qui peuvent avoir une influence sur les possibilités et les modalités de fabrication, de manutention et de retraitement des assemblages combustibles ou des cibles contenant les éléments à transmuter. Ceci conditionne le mode de recyclage, voire la possibilité de recycler certains éléments. Le tableau XI présente les valeurs de puissance résiduelle d'activité, de source γ et de débit de dose γ à 1 m de la source ainsi que la source neutronique pour différents combustibles de RNR chargés en actinides mineurs. Ces valeurs sont relatives au combustible oxyde d'un cœur d'EFR, *European Fast Reactor*.

Tableau XI : Conséquences sur les grandeurs physiques du cycle du combustible.

Mode de recyclage Teneur en actinides		Homogène			Hétérogène
		2,5 % Np	2,5 % Am	2,5 % Cm	40 % Am + MgO
Fabrication (DV)	Puissance	× 1	+ 71 %	× 24	× 14
	Activité	× 1	+ 3 %	× 2	× 19
	Source γ	× 1	× 4	× 12	× 55
	Débit de dose γ (1 m)	× 4	× 76	× 470	× 1 680
	Source neutron	× 1	+ 40 %	× 1 700	× 7
Fin irradiation (FV)	Puissance résiduelle	+ 2 %	+ 1 %	- 4 %	+ 3
	Activité	+ 0,3 %	+ 1 %	- 2 %	+ 3
	Source γ	- 0,7 %	- 1 %	- 3 %	+ 5
	Débit de dose γ (1 m)	+ 6 %	+ 2 %	- 1 %	+ 2
	Source neutron	- 5 %	× 4	× 6	/
Fin irradiation + 5ans	Puissance résiduelle	+ 80 %	× 3	× 6	× 32
	Activité	+ 5 %	+ 13 %	+ 30 %	× 5
	Source γ	+ 1 %	+ 5 %	+ 7 %	+ 43 %
	Débit de dose γ (1 m)	- 1 %	- 2 %	- 2 %	+ 4
	Source neutron	- 6 %	× 4	× 8	/

On constate que pour les combustibles homogènes les variations les plus importantes apparaissent à l'étape de la fabrication. En effet, après irradiation, la contribution des isotopes lourds est masquée par la contribution prépondérante des produits de fission. Même après 5 ans de refroidissement, alors que la contribution des PF a décréu, on observe des variations significatives uniquement pour la puissance résiduelle qui est augmentée de près d'un facteur 2 dans le cas d'un combustible avec 2,5 % de neptunium et d'un facteur 3 ou 6 pour un combustible à base d'américium ou de curium. De même la source de neutron est augmentée d'un facteur 4 à 8 pour les cas des combustibles chargés en américium et en curium.

En ce qui concerne le combustible neuf, l'ajout de neptunium à concurrence de 2,5 % de la masse des isotopes lourds ne modifie pas les niveaux de puissance, d'activité ou de sources. Seul le débit de dose γ est majoré d'un facteur 4 environ à cause de la présence du protactinium 233 (en équilibre avec le neptunium 237) émetteur d'un rayon γ dur d'environ 300 keV.

Pour le combustible chargé en américium, la forte augmentation de la source γ (facteur 4) et du débit de dose associé (facteur 80) est due principalement à la contribution du neptunium 239 en équilibre avec son père l'américium 243.

Avec l'introduction de curium, les conséquences sont nettement plus accentuées, le débit de dose γ est augmenté de près d'un facteur 500 à cause des contributions du curium 243 et du curium 244 forts émetteurs de rayons γ durs. L'augmentation de la source neutronique est encore plus conséquente (facteur 1 700) principalement à cause du curium 244.

Ainsi, si le recyclage en mode homogène du neptunium apparaît tout à fait envisageable, les conséquences sur les sources γ et principalement neutron dues à l'introduction de curium rendent le recyclage en réacteur extrêmement difficile, voire impossible.

Pour l'américium, la situation est intermédiaire. Son recyclage en mode homogène nécessiterait un développement important des technologies actuelles et en particulier nécessiterait une chaîne de fabrication blindée. La voie hétérogène permettrait d'éviter de dégrader les caractéristiques du combustible standard en concentrant les problèmes sur un flux de matière réduit.

3.1.4. À propos du mode d'incinération en RNR le plus approprié pour l'américium

Comme il a été mentionné précédemment, les pénalités importantes sur les paramètres physiques du cycle du combustible liées à la présence d'américium conduisent à privilégier le mode hétérogène pour cet élément.

Les différentes options évaluées dans une première phase des études nécessitent compte tenu des taux d'incinération limités atteints, un multirecyclage des cibles pour obtenir des performances conséquentes en terme de réduction de la radiotoxicité potentielle des déchets.

Ceci suppose la capacité de "recycler" le curium produit dans les cibles par transmutation de l'américium. Or, cet élément, comme on l'a vu, est très difficilement manipulable et conduit à de très sérieuses difficultés à toutes les étapes du cycle : séparation, fabrication, réacteurs.

Ainsi, différentes voies de gestion de curium méritent d'être explorées :

- l'entreposage. Les cibles d'américium après irradiation sont entreposées afin de laisser décroître naturellement les isotopes du curium les plus problématiques ^{242}Cm , ^{243}Cm et ^{244}Cm sur les isotopes du plutonium.

Le plutonium ainsi produit est alors recyclé avec le flux du plutonium standard. Cette voie nécessite la faisabilité d'un entreposage de longue durée de l'ordre du siècle ;

- le recycler au même titre que les autres actinides mineurs : américium et neptunium. Comme on l'a vu cette voie induit les difficultés majeures au niveau de la fabrication. Les performances en réacteur, de par la production d'actinides supérieurs (berkélium et californium) méritent d'être établies avec soin ;
- réduire sa production. Est-il possible d'envisager un mode d'irradiation des cibles d'américium permettant d'atteindre des taux de fission supérieurs à 95 % et ainsi éviter la nécessité du multirecyclage ? Pour ce faire, il faut privilégier un haut niveau de flux neutronique associé à des sections efficaces de fission élevées et accéder à de très longues durées d'irradiation.

Le concept de cibles dans des assemblages modérés placées en périphérie du cœur d'un RNR pourrait répondre à ces besoins : le flux neutronique est important et voisin de 10^{15} n/cm²s.

La thermalisation du spectre grâce à la présence d'un modérateur permet de réduire l'endommagement des matériaux et autorise donc des durées d'irradiation importantes tout en augmentant les probabilités de fission en particulier pour les isotopes 243 et 245 du curium.

Des études prospectives permettent d'établir qu'il est possible d'atteindre des taux de fission supérieurs à 95 % (la masse des isotopes lourds dans la cible en fin d'irradiation représente moins de 5 % de la masse initiale chargée) avec des durées d'irradiation voisines de 20 années pour des cibles placées en couronne périphérique d'un RNR.

Les taux d'endommagement dépassent les valeurs admises aujourd'hui, ce qui nécessite des progrès technologiques pour la tenue des matériaux.

D'autre part, ces performances sont atteintes pour des chargements initiaux d'américium limités dans les cibles (\cong 5 % en volume). Ainsi, la consommation d'américium exprimée en kg/TWhé s'en trouve réduite autour de 3 à 5 kg/TWhé, inférieure à la propre production du cœur qui est voisine de 8 kg/TWhé.

Cette option, de par ses avantages potentiels (non absolue nécessité du retraitement et du multirecyclage des cibles, résolution à la source du problème curium), mérite d'être examinée de manière approfondie et des études théoriques et expérimentales sont en cours ou programmées.

4. Application à un parc de réacteurs

Les études effectuées au CEA mais aussi dans plusieurs laboratoires à l'étranger, ont permis de définir la faisabilité du recyclages des actinides (principalement américium et neptunium) dans les différents types de réacteurs (RNR, REP), selon différents modes de recyclage (homogène, hétérogène, mixte).

Dans l'optique de réduire la radiotoxicité potentielle, il a été souligné que toute stratégie de multirecyclage du plutonium (quel que soit le but de cette stratégie : consommation du plutonium, stabilisation des stocks...) doit avoir pour enjeu essentiel de ne pas accroître la production d'actinides mineurs à masse élevée.

L'avantage des RNR (lié aux rapports σ_c/σ_f plus faibles dans ce type de spectre) a été illustré dans l'approche physique présentée à la section 2.

En ce qui concerne les REP, il a été mis en évidence l'intérêt potentiel des réseaux sur-modérés (RMA) pour minimiser la production d'actinides mineurs (du moins lors des tous premiers recyclages).

Pour essayer d'apprécier de façon plus réalistes les gains que l'on peut obtenir avec une stratégie de séparation/transmutation sur la toxicité des déchets, il faut faire appel à un scénario de gestion simultanée du plutonium et des actinides mineurs, l'objectif étant d'obtenir un équilibre entre production et disparition à l'intérieur du parc de l'ensemble plutonium, américium, neptunium et curium, avec une diminution significative de la source de radiotoxicité potentielle générée par ce parc et représentée par l'ensemble des pertes dans les différentes opérations de retraitement (et séparation) prévues par l'alimentation du parc.

Il faut remarquer que le problème de la radiotoxicité "dans" le cycle du combustible est traité à part. Ce problème n'interfère pas avec le problème de la radiotoxicité dans un stockage, si l'on fait l'hypothèse de fonctionnement du parc sur une très longue période ou, ce qui est équivalent, de recours à l'énergie nucléaire pour des durées très longues.

Plusieurs types de parcs équilibrés peuvent être envisagés et ont été étudiés. Nous donnerons ici seulement les résultats concernant un parc mixte dans lequel le plutonium issu des REP-UOX est recyclé une seule fois dans des REP-MOX. Le plutonium résiduel ainsi que la totalité des actinides mineurs est recyclée dans des RNR de type CAPRA.

Dans ce parc tous les réacteurs REP et RNR ont une puissance électrique de 1450 MWé. Le taux de combustion des REP-UOX est de 55 GWj/t.

Les cœurs de RNR correspondent à un cœur de type CAPRA à combustible oxyde avec une teneur initiale en plutonium de 45 %.

Le neptunium est recyclé en mode homogène, mélangé au combustible dans le cœur. L'américium est recyclé en mode hétérogène sous forme de cibles placées en première couronne périphérique du cœur.

Le curium est supposé entreposé pendant un siècle afin de laisser décroître le curium 244 en plutonium (période de 18,1 ans). Ce plutonium est alors recyclé avec le flux standard de plutonium. Le curium résiduel (essentiellement le curium 245) est quant à lui recyclé avec l'américium dans les cibles.

Seules les pertes lors des opérations de retraitement sont prises en compte avec des hypothèses de 0,1 % pour le plutonium et 1 % pour les actinides mineurs.

4.1. Résultats

Les proportions en puissance installée des différentes composantes du parc à l'équilibre sont les suivantes :

REP-UOX	REP-MOX	RNR
70 %	10 %	20 %

La source de radiotoxicité potentielle, exprimée en Sv/TWhe, allant aux déchets et son évolution dans le temps est indiquée sur la figure 6. Elle est comparée aux sources radiotoxiques produites par un parc de même puissance constitué uniquement de REP-UOX géré en cycle ouvert, c'est-à-dire que la totalité du combustible irradié part aux déchets. On constate que les facteurs de réduction de la radiotoxicité aux déchets sont proches du facteur 100. Ils sont précisés dans le tableau XII.

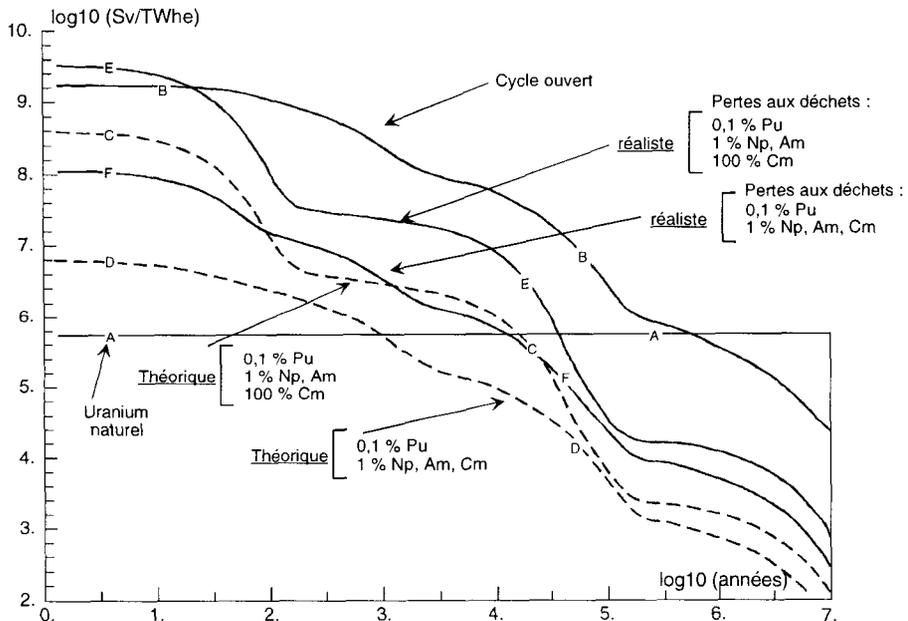


Figure 6 : Radiotoxicité potentielle et évolution dans le temps.

Ces réductions sont nettement moins importantes que les gains potentiels théoriques (voisins d'un facteur 500) déterminés en considérant que seuls 0,1 % du plutonium et 1 % des actinides mineurs produits par le parc de référence alimenté en combustible d'oxyde d'uranium partent aux déchets, le reste étant considéré comme entreposé ou bien consommé dans un système incinérateur idéal apte à brûler en un seul passage la totalité des actinides chargés et donc sans production de déchets supplémentaires.

Tableau XII : Facteurs de réduction de la radiotoxicité.

Temps (années)	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵	10 ⁶
Scénario étudié	71	75	84	140	80
Théorique	510	480	630	700	570

Le décalage entre les gains réels et théoriques est principalement dû aux différences dans les inventaires en actinides des différents parcs. En effet, les masses d'actinides et donc la radiotoxicité allant aux déchets sont directement proportionnelles aux masses en pile et aux fréquences de retraitement. La différence entre les inventaires est due à deux causes :

- d'une part, un réacteur à combustible MOX nécessite pour son fonctionnement (obtention de la criticité) un investissement en plutonium important qui représente la production cumulée d'environ 20 années de fonctionnement d'un REP-UOX de même puissance ;
- d'autre part, le multirecyclage conduit à une accumulation des actinides jusqu'à obtention d'un équilibre supérieur du point de vue massique aux concentrations initiales.

4.2. De l'influence du non recyclage du curium

Si l'on considère le même scénario, mais sans recyclage du curium, c'est-à-dire qu'au lieu d'une stratégie d'entreposage du curium suivi du recyclage en réacteurs des produits résiduels (plutonium et curium 245), on envoie la totalité du curium aux déchets, les gains sur la source de radiotoxicité potentielle s'en trouvent fortement diminués, comme il est précisé dans le tableau XIII.

Tableau XIII : Facteur de réduction de la radiotoxicité sans recyclage du curium.

Temps (années)	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵	10 ⁶
Gain par rapport au cycle ouvert	10	11	7	94	32

Pour les périodes de temps où la radiotoxicité élémentaire du curium est importante, en particulier le curium 244 vers 10 000 ans (à cause de la production par décroissance α du plutonium 240), les gains sont du même ordre que ceux résultant d'une stratégie de recyclage du plutonium seul.

Ainsi, il s'avère que dans une approche réaliste de réduction de la radiotoxicité potentielle, le recyclage de l'américium s'accompagne d'une production significative de curium, qui réduit les gains escomptés. Il faut donc, dans une optique de séparation/transmutation, considérer la gestion du curium au même titre que celles des autres actinides.

5. Les données nucléaires et les incertitudes

5.1. La validation des données nucléaires

En ce qui concerne la physique de la transmutation, la crédibilité des résultats et des tendances indiqués dans les sections précédentes, les données nucléaires des isotopes concernés (sections efficaces, constantes de décroissance) jouent un rôle essentiel. L'état des connaissances sur ces données fait l'objet d'un vaste programme international d'évaluation et de validation, sous le patronage du Comité des sciences nucléaires (NSC) de l'Agence pour l'énergie nucléaire de l'OCDE.

Les données les plus récentes sont rassemblées dans les banques de données évaluées, dont la base de données JEF, développée par les pays européens de l'OCDE, est un exemple particulièrement complet et performant.

Cependant, la définition de la qualité des données, et les incertitudes à associer pour connaître leur impact sur les calculs et les études mentionnées plus haut, passe par une validation expérimentale systématique. En France, un grand nombre d'expériences sont disponibles qui permettent la validation des données nucléaires.

Il s'agit en particulier des expériences d'irradiation en réacteur de combustibles et d'échantillons d'isotopes séparés. Une expérience typique est l'expérience Profil effectuée à Phénix : l'analyse après irradiation d'échantillons d'isotopes purs (^{241}Am , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{243}Am), permet d'avoir accès aux sections efficaces de capture ou aux sections efficaces (n,2n) à l'aide des concentrations observées des isotopes de masse $A + 1$ ou $A - 1$. Un exemple des comparaisons calcul/expérience est donné dans le tableau XIV.

Tableau XIV : Sections efficaces : valeurs obtenues au cours de l'expérience Profil dans Phénix.

Rapport calcul/expérience avec les données JEF-2	
$\sigma_c (^{238}\text{Pu})$	0,97
$\sigma_c (^{237}\text{Np})$	0,94
$\sigma_{n,2n} (^{237}\text{Np})$	1,15
$\sigma_c (^{241}\text{Am})$	1,05
$\sigma_c (^{243}\text{Am})$	0,97

L'analyse de l'expérience Superfact dans Phénix (irradiation d'aiguilles combustible contenant du neptunium 237 et de l'américium 241, voir figure 7) a permis de comparer les taux de transmutation de l'américium 241 et du neptunium 237 mesurés et calculés (voir tableau XV).

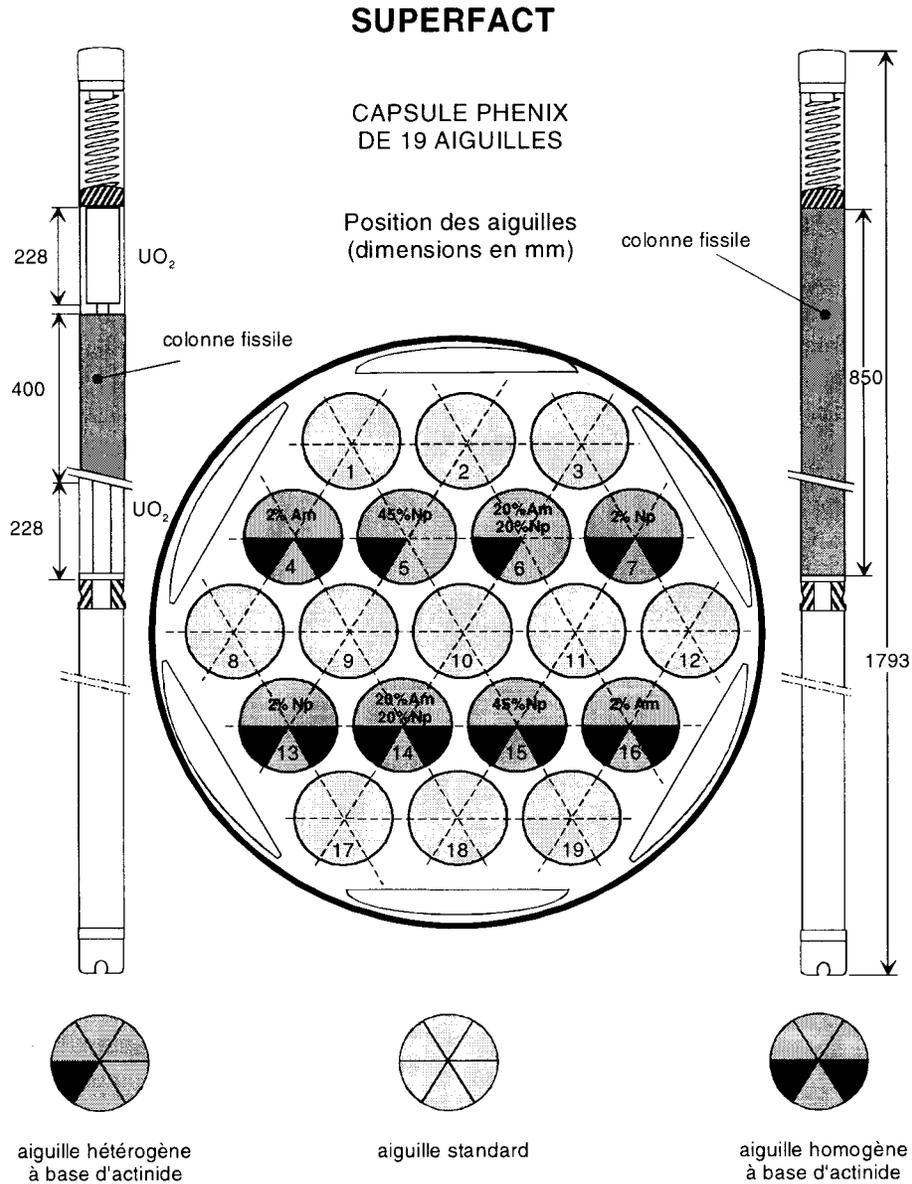


Figure 7 : Conception de la capsule d'irradiation Phénix

Tableau XV : Taux de transmutation (%) : valeurs expérimentales et calculées. Expérience Superfact.

Isotope	²³⁷ Np	²⁴¹ Am	
Type d'aiguille	45 % de ²³⁷ Np	2 % de ²⁴¹ Am	20 % de ²⁴¹ Am
Mesure	26,3	28,1	31,5
Calcul	27,6	25,3	30,8

5.2. Effet des incertitudes des données nucléaires sur les paramètres d'intérêt pour la transmutation

Dans ce paragraphe, on se limitera à quelques exemples typiques de l'évaluation de l'impact des incertitudes des données de base sur des paramètres importants pour la transmutation.

Un premier exemple concerne, à partir des incertitudes sur les sections efficaces, l'évaluation de l'incertitude sur la radiotoxicité potentielle R dans un stockage (par exemple à $T = 10^5$ ans). Les incertitudes considérées sont données dans le tableau XVI.

Tableau XVI : Estimation (pessimiste) d'incertitudes sur les données nucléaires. Ces incertitudes sont utilisées pour évaluer l'incertitude sur la source de radiotoxicité dans un stockage. λ est la constante de décroissance.

Isotope	$\sigma_{cap}(\%)$	$\sigma_{fis}(\%)$	$\sigma_{(n,2n)}(\%)$	$\lambda(\%)$
²³⁵ U	10	5	50	3
²³⁸ U	10	8	50	3
²³⁹ Pu	15	5	50	3
²⁴⁰ Pu	25	20	100	3
²⁴¹ Pu	25	20	100	3
Autres	50	50	300	5

Trois stratégies sont considérées : retraitement sans séparation des actinides mineurs, stockage direct et retraitement avec séparation des actinides mineurs (AM).

L'incertitude sur la source de radiotoxicité potentielle dans les trois stratégies est donnée dans le tableau XVII. Cette incertitude est plutôt modeste, malgré les valeurs assez pessimistes des incertitudes données dans le tableau XVI.

Un autre exemple d'analyse d'incertitude concerne le problème suivant. Si l'on introduit du neptunium et de l'américium dans le combustible MOX d'un RNR (par exemple entre 2 et 5 %), il faut évaluer l'impact des incertitudes associées aux $\sigma(n,f)$, $\sigma(n,\gamma)$ et $\sigma(n,n')$ de l'américium et du neptunium sur :

- le k_{eff} ;
- la réactivité due à la vidange du sodium.

Tableau XVII : Incertitudes (à un "sigma") sur les valeurs de la source de radiotoxicité dans un stockage (cas d'un assemblage irradié dans un réacteur rapide de type EFR).

Stratégie	Radiotoxicité à 10 ³ ans	Radiotoxicité à 10 ⁵ ans
A	± 29 %	± 32 %
B	± 8 %	± 10 %
C	± 10 %	± 10 %

Les trois stratégies A, B et C sont les suivantes :

Stratégie	Aux déchets
A : Retraitement	100 % des actinides mineurs 0,3 % du plutonium
B : Stockage direct	100 % des actinides mineurs 100 % du plutonium
C : Retraitement et séparation des actinides mineurs	1 % des actinides mineurs 0,3 % du plutonium

Les résultats (voir tableau XVIII) montrent que les incertitudes sur les données nucléaires n'affectent pas de façon spectaculaire les performances nominales des cœurs. Par exemple, une incertitude de ±10 % sur la section efficace de fission du neptunium 237 conduit à une incertitude de 0,15 % sur le coefficient de multiplication effectif k_{eff} et de 0,5 % sur le coefficient de réactivité associé à la vidange du caloporteur (sodium) dans tout le cœur.

Tableau XVIII : Effets des variations des sections efficaces^a sur le coefficient de multiplication k_{eff} et sur le coefficient de vide du sodium.

	²³⁷ Np			²⁴¹ Am		
	σ_c	σ_f	σ_{inel}	σ_c	σ_f	σ_{inel}
k_{eff}	± 0,3 %	± 0,15 %	± 0,05 %	± 0,4 %	± 0,16 %	± 0,3 %
Coef. de vide du sodium	± 2,7 %	± 0,5 %	± 0,3 %	± 3,5 %	± 0,5 %	± 0,4 %

^a Les incertitudes sur σ_c , σ_f et σ_{inel} sont respectivement de ± 10 %, ± 10 % et ± 30 %

La discussion de ce chapitre est tout à fait incomplète. Cependant les exemples, donnés ici à titre d'illustration, montrent que les données nucléaires disponibles aujourd'hui, et les incertitudes que l'on peut associer, permettent des analyses fiables et permettent d'indiquer l'intérêt d'une stratégie par rapport à une autre, du moins de façon qualitative. Il est certain que pour des phases plus avancées des études, et en particulier, dans le cas d'un éventuel avant-projet de réacteur pour la transmutation, la qualité des données nucléaires devrait être améliorée de façon significative pour devenir comparable à celle des données utilisées dans les projets des réacteurs "standard". Une analyse similaire pourrait être faite pour les données et les modèles utilisés pour le calcul des systèmes hybrides et les conclusions seraient assez similaires. Cependant, certains domaines, comme la détermination des produits de spallation, présentent des incertitudes nettement plus importantes.

6. Conclusions

La transmutation des déchets radioactifs à vie longue par des neutrons est basée sur une physique bien maîtrisée, qu'il s'agisse du champ neutronique d'un réacteur à fission classique ou du champ neutronique d'un milieu multiplicateur sous-critique alimenté par un accélérateur (ou une source de neutrons de 14 MeV).

Les modèles et les données nucléaires utilisés pour les calculs nécessitent une validation détaillée, pour garantir la fiabilité d'un projet de réalisation, même à échelle modeste. Cependant, ces mêmes modèles et données permettent d'effectuer des calculs d'orientation, dont les résultats et les tendances sont tout à fait significatifs.

À l'heure actuelle, un certain nombre d'options ont été étudiées et il est possible d'effectuer les premières études de scénarios, qui concernent les réacteurs (critiques ou sous-critiques), leurs performances, et les cycles du combustible associés. On n'a pas abordé les aspects concernant la chimie et les facteurs de séparation pour mener les études de scénario. Par ailleurs, le sujet de la séparation chimique est abordé par Bernard Boullis dans ce même ouvrage (voir chapitre 4).

De plus, rien n'a été dit sur les études concernant les combustibles adaptés à la transmutation, à base d'actinides mineurs, qui doivent être développés. De nombreuses études fondamentales (propriétés physico-chimiques des composés...), des fabrications expérimentales et des irradiations en réacteur ont été cependant lancées. Ces études et ces expérimentations concernent des combustibles homogènes, ou des cibles hétérogènes tout à fait cohérentes avec les études physiques dont on a fait état ici. Ce vaste programme de recherche théorique et expérimentale devra donner les indications demandées par le législateur, dans le délai prévu, pour permettre une prise de décision de la part du Parlement aux alentours de 2006.

Bibliographie

- [1] Global '93, International conference on future nuclear systems: emerging fuel cycles and waste disposal options, Seattle (USA) 12-17 september 1993.
- [2] Global '95, international conference on evaluation of emerging nuclear fuel cycle systems, Versailles (France) 11-14 septembre 1995.
- [3] 2nd International conference on accelerator-driven transmutation technologies and applications, Kalmar (Suède) 3-7 june 1996.

6 Les systèmes hybrides de production d'énergie

Hervé Nifenecker^(★)

1. Introduction

La question de la nécessité d'un recours plus massif à l'énergie nucléaire est posée, désormais, avec acuité, par les risques climatologiques entraînés par les rejets intensifs de gaz carbonique dans l'atmosphère. Aucune autre source massive d'énergie ne semble actuellement capable de se substituer d'une manière significative aux combustibles fossiles. Par ailleurs, il apparaît que, dans sa forme actuelle, l'énergie d'origine nucléaire suscite de fortes oppositions du corps social, du fait des risques qu'elle comporte (effet Tchernobyl) et des déchets radioactifs qu'elle produit. Le recours à l'énergie de fusion, sur une grande échelle, apparaît encore, pour le moins lointain. Dans ce contexte, la mise au point de méthodes de production d'énergie nucléaire plus sûres et moins polluantes revêt une importance évidente. L'association d'un accélérateur⁽¹⁾ à un milieu multiplicateur de neutrons,

(★) Institut des sciences nucléaires 53, avenue des Martyrs, 38026 Grenoble cedex.

(1) Ici l'accélérateur fournit des protons de haute énergie. Ces protons incidents sur une cible produisent, au cours de leur ralentissement, un nombre important de neutrons. Ces derniers pénétrant dans un milieu comportant des noyaux fissiles peuvent être multipliés, en même temps qu'ils produisent des fissions, et donc de l'énergie.

formant un réacteur nucléaire hybride, et le recours au cycle thorium-uranium⁽²⁾ semblent ouvrir des perspectives intéressantes. Cette voie a été récemment prônée par plusieurs physiciens, et en particulier par C. Rubbia. Certes, ces idées ont été avancées, pour la première fois, il y a près de cinquante ans [1]. À l'époque elles n'ont pas été suivies de réalisations concrètes, non par impossibilité technique, mais surtout, faute d'incitation économique. Il est vrai aussi que la faible fiabilité des accélérateurs de particules, les difficultés de mise au point d'accélérateurs atteignant le milliard d'électron-volts et des intensités de plusieurs milliampères, ainsi que la disponibilité de réacteurs nucléaires critiques performants dissuadèrent de les prendre sérieusement en considération. Il fut toutefois reconnu qu'ils pourraient conduire à des processus originaux de transmutation. Il est intéressant, à cet égard, de remarquer que, s'il n'avait pas existé une proportion suffisante d'uranium 235 dans l'uranium naturel, la seule voie possible pour exploiter l'énergie de fission eut été l'utilisation de systèmes hybrides⁽³⁾. En effet, seul ce type de réacteur permet de fabriquer des noyaux fissiles à partir, uniquement, de noyaux fertiles (pour la définition des noyaux fissiles et fertiles se reporter au chapitre 3 section 8.5 et ci-dessous).

La situation actuelle, qui est caractérisée par une remise à plat de politiques que l'on pensait bien établies, comme le retraitement des combustibles et la pertinence des réacteurs surrégénérateurs, et aussi par des progrès considérables de la technique des accélérateurs, amène à revisiter sérieusement ces concepts.

Au cours des années 1990, les réacteurs hybrides ont connu un regain d'intérêt du fait d'un concours de circonstances. Tout d'abord, il est apparu que l'accumulation des déchets de longue durée de vie était un handicap sérieux au développement massif de l'énergie nucléaire. Nous verrons que la transmutation des actinides mineurs, en particulier, pourrait se faire de façon efficace à l'aide d'accélérateurs de haute énergie. Cette voie est l'objet d'études aussi bien au Japon qu'aux États-Unis [2, 3]. Le souci de limiter la quantité de transuraniens produits conduisit aussi à revisiter la filière thorium qui, nous le verrons, en produit beaucoup moins que la filière uranium actuelle. Les systèmes hybrides, avec leur neutronique favorable, pourraient être particulièrement intéressants dans ce contexte [4, 5, 6]. Ils apparaissent comme des concurrents potentiels crédibles des réacteurs surrégénérateurs et des réacteurs à fusion.

(2) Dans le cycle Thorium-Uranium le noyau est fissile est l'uranium 233. Dans le cycle utilisé dans les réacteurs classiques, le noyau fissile produit lorsque l'uranium 238 capture un neutron est le plutonium 239. Dans les deux cas (uranium 233 et plutonium 239) l'absorption d'un neutron ne conduit pas toujours à une fission. Elle peut aussi conduire à la production d'un noyau plus lourd comme le plutonium 240 et l'uranium 234. À leur tour ces noyaux peuvent donner naissance à des noyaux encore plus lourds, transuraniens de charge supérieure à 92, ou transplutoniens de charge supérieure à 94. La différence de 5 unités de masse entre les deux noyaux fissiles se traduit par une production beaucoup moindre de transuraniens et de transplutoniens dans le cas du cycle Thorium-Uranium.

(3) En effet, utilisant toute source d'énergie autre que nucléaire, les accélérateurs seuls permettent de produire des neutrons. Ceux-ci peuvent alors être utilisés à produire des noyaux fissiles à partir de noyaux fertiles.

Nous décrirons schématiquement la physique des systèmes hybrides et les caractéristiques de leurs composants, accélérateur et milieu multiplicateur de neutrons. Nous donnerons deux exemples de concepts actuellement proposés, avec une attention particulière au plus récent, décrit avec détail par C. Rubbia *et al.* [7]. Ce dernier système est suffisamment détaillé pour qu'une estimation de son coût puisse être faite avec une marge d'erreur raisonnable.

Avant d'en venir à une description plus approfondie des systèmes hybrides, il y a lieu de rappeler ici, de façon sommaire, la problématique de la surrégénération et de la transmutation.

2. Surrégénération et transmutation

2.1. Surrégénération

Seuls les noyaux fissiles sont susceptibles de fournir une réaction en chaîne. Les noyaux fertiles (voir chapitre 3) donnent naissance à des noyaux fissiles par capture d'un neutron, suivie habituellement d'une ou deux désintégrations β . Le seul noyau fissile trouvé dans la nature est l'uranium 235 qui n'est présent que dans la proportion de 0,7 % dans l'uranium naturel, dont 99,3 % est de l'uranium 238. Ce dernier, noyau fertile, donne naissance par capture neutronique au plutonium 239, lui-même fissile. Le couple ^{238}U – ^{239}Pu forme ce qu'on appelle le cycle uranium–plutonium. Le thorium est environ quatre fois plus abondant dans la nature que l'uranium. On n'en trouve qu'un seul isotope, le thorium 232. Ce noyau fertile donne naissance à un noyau fissile, l'uranium 233. Le cycle fertile–fissile est alors le cycle thorium–uranium.

On sait que les réacteurs à eau pressurisée actuels (REP) utilisent essentiellement l'uranium 235 comme combustible. Les réserves en énergie correspondantes, au prix actuel du marché, ne sont guère supérieures à celles estimées pour le pétrole. C'est pourquoi, très vite, les promoteurs de l'énergie nucléaire ont envisagé la mise en œuvre de systèmes surrégénérateurs utilisant le cycle uranium–plutonium. La possibilité d'obtenir la surrégénération dépend de la dureté du spectre neutronique du réacteur. Dans le cas du cycle uranium–plutonium, les réacteurs thermiques tels que les REP ne la permettent pas. Seuls des réacteurs rapides dans lesquels la fission est produite par des neutrons de plusieurs centaines de keV peuvent être surrégénérateurs. Superphénix est un archétype de tels réacteurs. Au bout d'environ 4 ans, le nombre de noyaux fissiles produits est égal à deux fois le nombre initial de tels noyaux. Ce délai de 4 ans est appelé temps de doublement. Alors que les réacteurs classiques ne peuvent utiliser qu'environ 1 % de l'uranium naturel, les réacteurs surrégénérateurs permettraient de l'utiliser en totalité. Il deviendrait alors rentable d'exploiter des minerais à faible teneur, peut-être même d'extraire l'uranium de l'eau de mer. Dans ces

conditions les réserves d'uranium seraient près de 10 000 fois plus importantes que celles disponibles pour les REP.

Le cycle thorium–uranium permet d'obtenir la surrégénération même pour des spectres thermiques. Toutefois le temps de doublement est très long, de l'ordre de 20 ans. La situation s'améliore si l'on utilise un spectre rapide, mais reste alors moins favorable que dans le cas du cycle uranium–plutonium. C'est là une des raisons qui ont empêché le développement de la filière thorium–uranium. À cette raison il faut ajouter le fait que seul le cycle uranium–plutonium pouvait être amorcé grâce à la présence de l'uranium 235 dans l'uranium naturel. C'est ainsi que les seuls noyaux fissiles disponibles pour la fabrication des bombes de Hiroshima et de Nagasaki furent l'uranium 235 et le plutonium 239. La technologie des accélérateurs n'aurait pas à l'époque permis de produire suffisamment d'uranium 233 pour fabriquer une bombe atomique. Nous savons à quel point le développement du nucléaire civil devait être largement conditionné par celui du nucléaire militaire.

2.2. Transmutation et incinération

La production d'énergie nucléaire dans les réacteurs à fission s'accompagne de la production de déchets radioactifs de plusieurs espèces :

- les produits de fission ;
- les produits d'activation résultant de la capture de neutrons par les noyaux composant la structure du réacteur, tels que le cobalt par exemple ;
- les noyaux transuraniens obtenus par capture de neutrons par le combustible nucléaire.

Ces déchets sont, en général, caractérisés par leur radiotoxicité et leur durée de vie. Seuls les déchets dont la durée de vie excède une dizaine d'années posent réellement un problème. Il s'agit essentiellement de certains produits de fission et des transuraniens. Les produits de fission se désintègrent par rayonnement β tandis que les transuraniens se désintègrent essentiellement par rayonnement α . À taux de désintégration égal, les corps radioactifs α sont beaucoup plus radiotoxiques que les corps radioactifs β . Il s'ensuit que le principal problème posé par les déchets nucléaires est celui des transuraniens.

Deux types de stratégies sont actuellement proposées pour disposer des déchets :

- soit enfouir les éléments combustibles usagés, sans retraitement, dans des entrepôts souterrains ;
- soit extraire le plus efficacement possible les transuraniens et les produits de fission des combustibles usagés et tenter d'en transformer le plus possible, par réactions nucléaires, en produits moins radiotoxiques ou(et) de courte durée de vie. C'est ce type de stratégie qui a été choisi par la France et que nous examinons plus en détail.

Les réactions nucléaires possibles pour traiter les déchets sont de deux types :

- la transmutation qui, par suite d'une capture neutronique, transforme un noyau radioactif en noyau stable. Cette méthode pourrait être utilisée pour les produits de fission. Comme des noyaux stables pourraient être également transformés en noyaux radioactifs, la méthode suppose une séparation spécifique des produits de fission à transmuter. Cette opération n'est pas encore réalisée ;
- l'incinération qui correspond à une fission du noyau. Cette méthode est utilisée pour les transuraniens. Elle s'accompagne de production d'énergie et de neutrons supplémentaires. Elle est, dès à présent, comme nous le verrons, appliquée au plutonium.

Cas du plutonium

Selon ce qui précède le plutonium peut être considéré de deux manières. Dans le cas de la surrégénération (Superphénix) il est le combustible. Dans le cas des réacteurs traditionnels, il apparaît comme un déchet susceptible d'être incinéré. Cette incinération est possible à l'aide des réacteurs thermiques de type REP mais elle ne peut, comme nous le verrons plus bas, être complète. Elle s'accompagne, en particulier, de la production de noyaux transplutoniens (américium et curium) dont l'incinération ne peut se faire dans les REP.

2.3. Doctrine française officielle

Dans le double souci d'améliorer l'utilisation des ressources d'uranium et de diminuer la radiotoxicité des déchets, la politique française consiste actuellement à incinérer le plutonium obtenu par retraitement des combustibles irradiés standard, sous la forme de combustible MOX en lieu et place de l'uranium 235 dans les réacteurs REP. Le combustible est alors un mélange d'uranium appauvri et de plutonium. La présence d'uranium appauvri est nécessaire pour des raisons de sûreté : le maintien d'un coefficient de température négatif, et la régénération partielle du combustible pour éviter une décroissance trop rapide de la réactivité. Au fur et à mesure de son irradiation le plutonium s'appauvrit en isotope 239 fissile, et s'enrichit en isotope 240 non fissile par neutrons thermiques, ainsi qu'en actinides mineurs (américium surtout), également peu ou non fissiles. Au cours des recyclages successifs, il faut donc augmenter la proportion totale de l'élément plutonium par rapport à celle de l'uranium. Une telle augmentation n'est toutefois pas possible *ad infinitum* car, s'il est vrai que le plutonium 240 n'est pas fissile par neutrons thermiques, il l'est par neutrons rapides. De ce fait un combustible trop riche en plutonium pourrait conduire à la criticité rapide du réacteur, et donc à une divergence en cas de vidange totale ou partielle du cœur. Après deux ou trois

cyclages dans les REP, il subsiste donc un plutonium "sale" et un stock accru d'actinides mineurs.

Il est alors envisagé de brûler ces résidus dans des réacteurs rapides de type CAPRA. Ces réacteurs sont des réacteurs rapides refroidis au sodium. À la différence de Superphénix, ils seront sous-régénérateurs, c'est-à-dire qu'ils consommeront plus de plutonium qu'ils n'en produiront. Toutefois, toujours pour des raisons de sûreté le combustible devrait contenir de l'uranium 238, et de ce fait la consommation nette de plutonium serait réduite. L'utilisation de neutrons rapides permettrait également d'incinérer les transplutoniens avec une bonne efficacité. Pour incinérer le plutonium sale et les transplutoniens, il faudrait environ 1 réacteur pour 4 ou 5 REP, soit entre 15 et 20 réacteurs à neutrons rapides pour l'ensemble du parc français.

2.4. Alternatives

Plutôt que de spécialiser une partie du parc de REP en REP-MOX il semble qu'une stratégie consistant à remplacer les combustibles enrichis à 3,5 % d'uranium 235 par des combustibles où l'élément fissile serait pour les 2/3 environ de l'uranium 235 et pour le 1/3 restant du plutonium 239 permettrait de stabiliser le stock de plutonium. Cette stratégie suppose l'extraction des transplutoniens (ou actinides mineurs) car ceux-ci ne peuvent pas être incinérés dans des réacteurs thermiques⁽⁴⁾. Ces actinides pourraient à leur tour être incinérés dans des réacteurs à neutrons rapides [8] ou des systèmes hybrides [9, 10, 11], comme nous le verrons ci-dessous.

Pour réduire plus efficacement le stock de plutonium en limitant la production d'actinides mineurs, il a également été envisagé de remplacer l'uranium 238 par des matrices neutres, comme le tungstène [12], qui présenteraient les mêmes propriétés que l'uranium au regard du coefficient de température. L'inconvénient de cette solution vient de la décroissance rapide de la réactivité. Cette décroissance nécessiterait soit des retraitements très fréquents, soit un fort enrichissement du combustible associé à une importante quantité de poisons consommables.

Une solution séduisante proposée entre autres par C. Rubbia [11] consisterait à remplacer l'uranium appauvri par du thorium. Le thorium a des propriétés neutroniques proches de celles de l'uranium 238. La combustion du plutonium serait alors accompagnée de la production d'uranium 233. Celui-ci pourrait ultérieurement, soit remplacer l'uranium 235 dans les combustibles REP standard, soit servir à fabriquer de nouveaux combustibles $^{232}\text{Th}-^{233}\text{U}$. Il faut remarquer, à cet égard, que ce type de combustible pourrait être recyclé aussi souvent que nécessaire dans les REP, à la différence du combustible $^{238}\text{U}-^{239}\text{Pu}$. La difficulté de

(4) Les transplutoniens ou actinides mineurs ne sont que faiblement fissiles par les neutrons thermiques, mais deviennent fortement fissiles lorsque l'énergie des neutrons est supérieure à quelques centaines de keV.

ce schéma réside dans la difficulté de retraitement et de fabrication des combustibles. En effet l'irradiation de l'uranium 233 produit de l'uranium 232 par réaction $(n, 2n)$ dont la désintégration est accompagnée d'une activité gamma intense imposant d'importantes protections biologiques. Toute la chaîne de retraitement et de conditionnement du combustible serait donc à réétudier.

2.5. Cycle thorium–uranium

Il y a lieu de souligner, encore une fois, que la production d'actinides mineurs dans les réacteurs faisant appel au couple thorium–uranium serait de deux à trois ordres de grandeur au moins inférieure à celle observée dans les réacteurs actuels. À l'époque où les choix ont été faits en faveur de l'économie du plutonium, la limitation de la production des déchets n'était pas considérée comme prioritaire, et c'est une des raisons qui explique que le cycle thorium–uranium ne fut pas retenu. Il apparaît désormais que la possibilité de recourir au cycle thorium–uranium présenterait de grands avantages, en limitant considérablement les besoins en incinération. Comme nous le verrons, les systèmes hybrides, de par leur neutronique favorable, pourraient trouver ici un intérêt particulier.

3. Principe des systèmes hybrides

La compréhension du fonctionnement des systèmes hybrides implique la connaissance de l'interaction des protons de haute énergie avec la matière ainsi que celle de la physique de milieux multiplicateurs de neutrons. Sans pouvoir donner ici des analyses exhaustives de ces deux aspects de physique, nous en exposons ci-dessous les principes élémentaires.

3.1. Accélérateurs et réaction de spallation

Dans le cas qui nous intéresse ici, un accélérateur de particule est une structure qui maintient des atomes ionisés (chargés positivement par ablation d'électrons) sur une trajectoire le long de laquelle on applique, en des points spécifiques, des champs électriques alternatifs à une fréquence telle que le champ soit toujours accélérateur pour les ions : il faut établir une relation entre la vitesse des ions accélérés et la fréquence du champ accélérateur, de telle manière que le temps mis par les ions pour se rendre d'un point d'application du champ électrique au suivant soit un multiple de la période d'oscillation du champ électrique. Si cette condition

est remplie une particule accélérée en un point d'application du champ le sera également au passage des points suivants. On dit qu'on aura réalisé la condition de synchronisation des particules et du champ. Si la structure accélératrice est linéaire on parlera d'accélérateur linéaire, si elle est circulaire on parlera de cyclotron ou de synchrotron. Les cyclotrons sont en principe moins onéreux que les accélérateurs linéaires, mais leurs performances semblent devoir être limitées à l'accélération de protons d'énergie au plus égale à 1 GeV et à des faisceaux d'intensités limités à 20 mA.

Le cas le plus souvent considéré pour les applications est l'accélération de protons obtenus par ionisation d'atomes d'hydrogène. Les protons interagissent avec la matière soit par des chocs électroniques, soit par des réactions nucléaires. Les chocs électroniques conduisent à un ralentissement progressif des particules incidentes, jusqu'à les amener, éventuellement, à une énergie trop basse pour que les réactions nucléaires puissent avoir lieu. À suffisamment haute énergie incidente, la probabilité de réaction nucléaire tend vers l'unité. Lors de telles réactions, il y a éclatement du noyau sous l'effet du choc. Les particules éjectées forment ce que l'on appelle la cascade hadronique primaire. Ce type de réaction est appelé réaction de spallation. Parmi les particules éjectées, on compte de nombreux neutrons. On peut ainsi caractériser le projectile par le nombre de neutrons primaires de spallation qu'il produit. *Lors d'une expérience récente faite au CERN [13] environ 35 neutrons primaires résultaient de l'interaction de protons de 1 GeV avec une cible d'uranium naturel.*

3.2. Milieux multiplicateurs de neutrons

Dans les réacteurs nucléaires, la fission d'un noyau dit fissile est provoquée par l'absorption d'un neutron. Cette fission s'accompagne de l'émission de neutrons, en nombre ν compris, en général, entre 2,2 et 2,6, selon les noyaux fissiles. Ces neutrons peuvent, à leur tour, provoquer de nouvelles fissions, et donc donner naissance à de nouveaux neutrons. Chaque neutron ne provoque toutefois pas automatiquement une fission. Il peut, en effet, être absorbé dans un noyau non fissile ou dans un noyau fissile (la probabilité de fission n'est pas de 100 %). Un neutron pénétrant dans un milieu comportant des noyaux fissiles donnera donc naissance à une deuxième génération de neutrons en nombre k . Le nombre de neutrons de troisième génération seront au nombre de k^2 et ceux de la $n^{\text{ième}}$ génération au nombre de k^{n-1} . Chaque génération est la conséquence d'une réaction nucléaire qui peut être une fission, une capture ou, plus rarement, une réaction (n, xn) . On obtient donc le nombre total de réactions consécutives à l'apparition d'un neutron dans le milieu multiplicateur :

$$n_{\text{reac}} = 1 + k + k^2 + \dots + k^n + \dots$$

Il est facile de calculer la valeur de k , (k_∞) pour un milieu infini homogène. Ce calcul peut être trouvé au chapitre 3. Dans la pratique les milieux sont finis et la valeur effective du coefficient multiplicateur k_{eff} est inférieure à k_∞ à cause des neutrons échappant au système.

Si k_{eff} est supérieur ou égal à 1, le nombre de réactions induites devient infini, la réaction diverge, ce qui signifie qu'à partir d'un neutron initial on obtient un nombre final de neutrons tendant vers l'infini. Une divergence contrôlée permet le démarrage d'un réacteur. Incontrôlée, la divergence conduit à un accident de criticité comme à Tchernobyl. Dans les armes nucléaires, cette divergence est favorisée. Si k_{eff} est strictement égal à 1 le nombre de réactions par unité de temps suivant l'arrivée d'un neutron initiateur reste constante dans le temps. Le système est dit critique. Pratiquement, le maintien de la condition de criticité $k = 1$ est obtenu grâce à l'existence d'une petite fraction de neutrons retardés⁽⁵⁾ qui permettent la correction des écarts à l'unité du coefficient de criticité.

Lorsque k_{eff} est inférieur à 1, un neutron incident donne naissance à un nombre fini de réactions. Le milieu est alors dit multiplicateur. D'une façon plus quantitative, le facteur multiplicateur est égal à la somme de la série géométrique ci-dessus, soit $1/(1 - k_{eff})$. Si N_0 est le nombre de neutrons primaires produits, par exemple, par interaction d'un proton accéléré avec une cible située au centre du milieu multiplicateur, le nombre total de réactions vaut $N_0/(1 - k_{eff})$. Le nombre moyen de neutrons produits par réaction est k_{eff} . Le nombre moyen de neutrons produits par fission est ν . Il s'ensuit que la probabilité pour qu'une réaction soit une fission est k_{eff}/ν . Le nombre de fissions secondaires prenant place dans le système est donc égal à $N = k_{eff} N_0/\nu(1 - k_{eff})$. Chaque fission dégageant environ 0,2 GeV, on voit que l'énergie thermique produite dans le milieu sera égale à :

$$0,2 \frac{k_{eff} N_0}{\nu(1 - k_{eff})}$$

Il est convenu de rapporter cette énergie produite à l'énergie du faisceau incident E_p , pour définir le gain énergétique du système :

$$G = 0,2 \frac{k_{eff} N_0}{\nu(1 - k_{eff}) E_p} \equiv \frac{G_0}{1 - k_{eff}}$$

La récente expérience menée au CERN par une collaboration animée par C. Rubbia [13], conclut à une valeur constante de $G_0 = 3$, pour des énergies de protons incidents supérieures à 1 GeV et pour une cible d'uranium. Notons que, dans un système hybride, si l'accélérateur s'arrête pour une raison ou une autre, la production de neutrons s'arrête de même. Au contraire, dans le cas d'un milieu critique la production de neutrons ne peut s'arrêter que par une action délibérée rendant le milieu sous-critique (chute de barres de contrôle par exemple). Le

(5) Une fraction inférieure à 1 % des neutrons est émise par les fragments de fission avec un retard de quelques secondes après la fission.

pilotage d'un réacteur traditionnel exige donc l'existence de barres de pilotage susceptibles de rendre le réacteur sur-critique par un retrait volontaire ou non. Au contraire, dans un système hybride les changements de puissance se font par variation du courant de l'accélérateur. Aucune modulation du facteur multiplicatif k_{eff} n'est nécessaire. Le système peut être conçu de telle manière qu'aucune excursion sur-critique ne soit possible.

3.3. Bilan neutronique

Un réacteur classique peut être considéré à la fois comme une machine à produire de l'énergie et comme une machine à produire des neutrons. L'énergie et les neutrons sont tous deux produits par la fission. La fission dégage environ 200 MeV et 2,5 neutrons. Le processus de spallation exige, quant à lui, 30 MeV pour produire un neutron. Si les 200 MeV précités étaient entièrement disponibles pour accélérer des protons on produirait donc plus de 9 neutrons par fission ! Il est vrai qu'on ne produirait plus d'énergie. En réalité, si l'on tient compte d'un rendement thermodynamique de 40 % et d'un rendement d'accélération de 40 %, il faut alors environ 6 GeV pour accélérer un proton à 1 GeV. Il s'ensuit que l'on peut obtenir alors 3,5 neutrons par fission, toujours sans produire d'énergie. Pour des scénarios intermédiaires, on voit que l'utilisation d'un accélérateur permet d'augmenter le nombre de neutrons disponibles pour la transmutation au prix d'une diminution de l'énergie disponible sur le réseau.

La question peut se poser de savoir si l'utilisation d'un réacteur hybride présente, du point de vue de la disponibilité de neutrons, un intérêt par rapport à celle d'un réacteur classique produisant l'énergie nécessaire pour l'accélérateur. Nous examinons maintenant cette question.

Le nombre de fissions produites dans le système vaut donc :

$$N_F = \frac{N_0 k}{\nu(1-k)}$$

Chaque fission est produite par $(\sigma_F + \sigma_C)/\sigma_F$ neutrons. Le nombre total de neutrons nécessaires pour produire les N_F fissions est donc :

$$N_{nf} = N_F \frac{\sigma_F + \sigma_C}{\sigma_F} = N_F (1 + \alpha) = \frac{N_0 k}{\eta(1-k)}$$

Ici η est le nombre de neutrons produits à la suite d'une capture par le noyau fissile (voir chapitre 3). Le nombre total de neutrons disponibles pour des réactions de transmutation est donc :

$$N_D = N - N_{nf} = \frac{N_0}{1-k} \left(1 - \frac{k}{\eta} \right)$$

On désire savoir s'il est préférable de produire les fissions dans le système hybride ou dans un réacteur indépendant. Soit N_{Dr} le nombre de neutrons disponibles si on utilise un réacteur indépendant, ayant le même spectre neutronique que le milieu sous-critique, et fournissant N_F fissions, en plus de l'accélérateur fournissant N_0 neutrons de spallation. Le nombre de neutrons nécessaires pour provoquer une fission est $(\sigma_f + \sigma_c)/\sigma_f = 1 + \alpha$, tandis que le nombre de neutrons produits par fission est ν . Il s'ensuit que le nombre de neutrons disponibles par fission est $\nu - 1 - \alpha$. Le nombre total de neutrons disponibles dans le réacteur vaut donc :

$$N_F (\nu - 1 - \alpha) = \frac{N_0 k}{\nu(1 - k)} (\nu - 1 - \alpha)$$

et le nombre total de neutrons disponibles pour un système accélérateur isolé plus réacteur est :

$$N_{Dr} = N_0 \left(1 + \frac{k}{\nu(1 - k)} (\nu - 1 - \alpha) \right) = \frac{N_0}{1 - k} \left(1 - \frac{k}{\eta} \right)$$

On voit donc que :

$$N_D = N_{Dr}$$

Il s'ensuit que le choix de la valeur de k est neutre sur le plan de la transmutation. Le nombre de neutrons disponibles ne dépend que du nombre de fissions N_F et du nombre de neutrons de spallation primaire N_0 .

$$N_D = N_0 + N_F \frac{\nu}{\eta} (\eta - 1)$$

De ce qui précède on voit que la mobilisation de 10 % de l'énergie permettrait d'obtenir environ 0,1 neutrons supplémentaires par fission. Ce nombre peut paraître faible mais il doit être rapporté au nombre de neutrons qui pourraient être disponibles au sein des réacteurs. Nous avons vu que le nombre maximum de neutrons par fission disponibles est égal à $\nu - 1 - \alpha$. En réalité le nombre réel est inférieur à cette valeur du fait des captures dans les matériaux de structure et de la transmutation de noyaux fertiles. Soit ν_c le nombre de neutrons nécessaires pour ces captures. Il s'ensuit que le nombre de neutrons disponibles est au mieux $\nu - 1 - \alpha - \nu_c$.

Les captures dans les matériaux de structure ne peuvent guère être inférieures à 0,2 neutron par fission, d'autant plus qu'il est nécessaire de compenser les réserves de réactivité nécessaires en début de cycle par des captures dans des éléments consommables. À chaque noyau disparaissant par fission correspondent α noyaux de ce type subissant une réaction de capture, qui en général, fournit un noyau fertile. Si l'on considère que la pérennité de la production d'énergie par fission nucléaire exige la régénération du combustible, on voit donc que $\nu_c = 0,2 + 1 + \alpha$ au minimum. Le nombre de neutrons disponibles vaut donc : $\nu - 2(1 + \alpha) - 0,2$. Considérons alors quatre scénarios.

- 1) Le système ^{238}U – ^{239}Pu thermique. Dans ce cas $\nu = 2,871$, $\alpha = 0,36$. Le nombre de neutrons disponibles vaut alors $2,871 - 2 \times 1,36 - 0,2 = -0,05$. La régénération n'est pas possible et aucun neutron n'est disponible pour transmutation éventuelle. Les 0,1 neutrons rendus disponibles grâce à un accélérateur rendraient la régénération possible
- 2) Le système ^{232}Th – ^{233}U thermique. Dans ce cas $\nu = 2,492$, $\alpha = 0,09$. Le nombre de neutrons disponibles vaut alors $2,492 - 2 \times 1,09 - 0,2 = 0,11$. La régénération est possible et 0,1 neutrons sont disponibles pour transmutation éventuelle. L'apport des neutrons fournis par l'accélérateur est appréciable.
- 3) Le système ^{238}U – ^{239}Pu rapide. Dans ce cas $\nu = 2,98$, $\alpha = 0,14$. Le nombre de neutrons disponibles vaut alors $2,98 - 2 \times 1,14 - 0,2 = 0,5$. La régénération est facile. L'intérêt d'un accélérateur ne semble pas évidente.
- 4) Le système ^{232}Th – ^{233}U rapide. Dans ce cas $\nu = 2,492$, $\alpha = 0,093$. Le nombre de neutrons disponibles vaut alors $2,492 - 2 \times 1,093 - 0,2 = 0,10$. La régénération est possible. L'apport des neutrons fournis par l'accélérateur est appréciable.

3.4. Évolution du combustible

Au cours de l'irradiation, le combustible nucléaire évolue par suite de plusieurs processus dont les principaux sont :

- la disparition par fission des éléments fissiles ;
- la désintégration de certains noyaux par radioactivité β ou α ;
- la transformation par capture neutronique, suivie en général d'une série de désintégrations radioactives, des noyaux fertiles en noyaux fissiles ;
- la production de fragments de fission résultant de la fission et susceptible d'absorber les neutrons.

Afin de dégager les principales caractéristiques de l'évolution du combustible nous envisageons un cas modèle dans lequel seuls trois types de noyaux sont présents :

- 1) les noyaux fertiles (cap) ;
- 2) les noyaux fissiles (fis) ;
- 3) les produits de fission (pf).

L'évolution de chacun de ces noyaux peut alors être décrit par un système d'équations d'évolution :

$$\begin{aligned} \frac{dn_{cap}}{dt} &= -n_{cap} \sigma_{cap}^{(a)} \varphi \\ \frac{dn_{fis}}{dt} &= n_{cap} \sigma_{cap}^{(a)} \varphi - n_{fis} \sigma_{fis}^{(a)} \varphi \\ \frac{dn_{pf}}{dt} &= n_{fis} \sigma_{fis}^{(f)} \varphi \end{aligned}$$

Ici ϕ est le flux de neutrons.

En admettant que la densité du combustible reste constante, que la concentration en produits de fission est nulle en début d'irradiation et en normalisant à 1 le nombre total de noyau $n_{cap} + n_{fis} + n_{pf} = 1^{(6)}$, on obtient la solution des équations d'évolution :

$$n_{cap}(t) = n_{cap}(0) \exp\left(-\frac{t}{\sigma_{cap}^{(a)} \phi}\right)$$

$$n_{fis}(t) = \left(1 - n_{cap}(0)\right) \exp\left(-\frac{t}{\sigma_{fis}^{(a)} \phi}\right) + n_{cap}(0) \sigma_{cap}^{(a)} \phi \frac{\exp\left(-\frac{t}{\sigma_{fis}^{(a)} \phi}\right) - \exp\left(-\frac{t}{\sigma_{cap}^{(a)} \phi}\right)}{\sigma_{cap}^{(a)} - \sigma_{fis}^{(a)}}$$

$$n_{pf}(t) = 1 - n_{cap}(t) - n_{fis}(t)$$

À partir des concentrations des éléments du combustible on peut calculer l'évolution du facteur de multiplication :

$$k(t) = \frac{\eta n_{fis}(t) \sigma_{fis}^{(a)}}{n_{cap}(t) \sigma_{cap}^{(a)} + n_{fis}(t) \sigma_{fis}^{(a)} + n_{pf}(t) \sigma_{pfs}^{(a)} + P(t)}$$

où $P(t)$ est le nombre de neutrons perdus dans les matériaux de structure, les barres de contrôle éventuelles et par échappement.

Dans les réacteurs critiques la condition $k = 1$ est maintenue en jouant sur le terme $P(t)$.

Dans le cas des systèmes hybrides la valeur de k peut évoluer autour d'une valeur nominale, dans des limites prescrites et en restant suffisamment inférieure à l'unité. Ce résultat peut être obtenu par une double stratégie consistant à régénérer le combustible à intervalles réguliers et à définir un point de fonctionnement limitant au minimum les variations de k entre deux épisodes de régénération. Dans la pratique, il faut ici distinguer les systèmes utilisant des combustibles liquides susceptibles d'être retraités en continu et ceux utilisant des combustibles solides où l'on recherche, au contraire, des retraitements aussi espacés que possible.

3.4.1. Combustibles liquides

Dans ce cas les produits de fission sont extraits au fur et à mesure de leur production. On peut également maintenir constante la proportion d'élément fertile par réinjection de ce dernier au fur et à mesure de sa consommation. La proportion relative des noyaux fissiles et fertiles tend alors vers un équilibre :

(6) Dans cette analyse nous négligeons le résultat de la capture radiative par les noyaux fissiles, à l'exception de la différence entre $\eta = \nu \sigma_{fis}^{(f)} / \sigma_{fis}^{(a)}$ et ν .

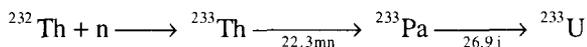
$$\frac{dn_{fis}}{dt} = n_{cap} \sigma_{cap}^{(a)} \varphi - n_{fis} \sigma_{fis}^{(a)} \varphi = 0$$

soit :

$$\frac{n_{fis}^{(eq)}}{n_{cap}^{(eq)}} = \frac{\sigma_{cap}^{(a)}}{\sigma_{fis}^{(a)}}$$

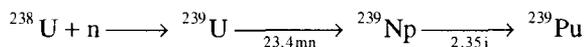
D'une façon générale, si la concentration initiale $n_{fis}(0)$ est inférieure à $n_{fis}^{(eq)}$ cette concentration augmentera en fonction du temps, et donc également la réactivité $\rho = (k - 1)$ du milieu, en l'absence d'effets contraires telle l'augmentation de la concentration des produits de fission. *Un système caractérisé par $n_{fis} < n_{fis}^{(eq)}$ est dit surrégénérateur* puisque le nombre de noyaux fissiles créés est supérieur à celui détruit ($dn_{fis}/dt > 0$). Dans le cas contraire, *le système est dit sousrégénérateur si $n_{fis} > n_{fis}^{(eq)}$* . Dans le cas de la régénération simple de l'élément fissile, on peut voir à partir deux relations précédentes que la valeur maximum de k est égale à $\eta/2$.

Les combustibles liquides envisagés sont des sels fondus. Un réacteur utilisant un mélange de fluorures d'uranium, de thorium, de béryllium et de lithium a fonctionné, de façon satisfaisante, pendant plusieurs années à Oak Ridge. Ce réacteur faisait appel au cycle $^{232}\text{Th}-^{233}\text{U}$. La suite de réactions permettant d'obtenir de l'uranium 233 à partir du thorium 232 est la suivante :



où nous avons indiqué les demi-vies des isotopes intermédiaires.

Par comparaison le plutonium 239 est obtenu à partir de l'uranium 238 par les réactions :



La présence de protactinium 233 peut conduire à des captures neutroniques parasites susceptibles de réduire la réactivité du réacteur⁽⁷⁾. C'est pourquoi, dans le réacteur expérimental d'Oak Ridge, un traitement en ligne du combustible consistait à extraire, non seulement les produits de fission mais aussi le protactinium. Après désintégration de ce dernier, l'uranium 233 résultant était réinjecté dans le combustible. Cette procédure permit, grâce à ce réacteur thermique expérimental, d'obtenir un taux de surrégénération de l'ordre de 5 % par an. Ce fut le seul cas où la surrégénération put être démontrée dans le cas d'un réacteur thermique.

Il a également été envisagé d'utiliser des combustibles liquides dans des réacteurs rapides. Dans ce cas, afin de ne pas ralentir les neutrons, des chlorures plutôt que des fluorures seraient retenus [14].

(7) Dans le cas du cycle uranium-plutonium, les effets dus aux captures dans le neptunium 239, analogues à ceux dus au protactinium 233 dans le cycle thorium-uranium, sont dix fois plus faibles.

3.4.2. Combustibles solides

Dans le cas des combustibles solides on cherche à assurer la constance de la valeur k pendant un temps aussi long que possible, afin de limiter le nombre de retraitements. Selon [11, 12, 13, 14] on voit que la valeur de $k(t)$ dépend de la concentration initiale de l'élément fissile. Une valeur initiale surrégénératrice de cette concentration conduit à une augmentation de $k(t)$ en fonction du temps. Cette augmentation peut être ajustée pour être compensée plus ou moins exactement par la diminution de k entraînée par l'augmentation de la concentration des produits de fission. C. Rubbia [7] a montré qu'une telle compensation était possible dans le cas d'un combustible ^{232}Th - ^{233}U utilisé dans un réacteur hybride rapide. On a pu également montrer qu'un combustible mélange d'actinides mineurs pouvait posséder une telle propriété [9]. La période pendant laquelle une relative constance de k peut être obtenue est de l'ordre de 5 ans, correspondant à un taux de combustion de 200 MWj/t. Ce résultat, valable pour des systèmes rapides, ne peut être atteint pour des systèmes thermiques du fait de la plus grande probabilité de capture des neutrons lents par les fragments de fission.

La présence de protactinium, dans le cas du cycle thorium-uranium impose des limites au flux neutronique acceptable lors de l'utilisation de combustibles solides. Cette limitation est due à deux effets pervers du protactinium :

- 1) Comme indiqué plus haut, le protactinium capture des neutrons, et par conséquent, diminue la réactivité du système. La concentration du protactinium 233 présent dans le réacteur est, dans un raisonnement au premier ordre, égale au taux de production $n_{232\text{Th}} \sigma_{232\text{Th}}^{(a)} \varphi$ multiplié par la durée de vie du protactinium 233. Il s'ensuit que la proportion de neutrons capturés dans le protactinium par rapport à ceux capturés dans le thorium est égal à :

$$r_{233\text{Pa}} = \frac{\sigma_{233\text{Pa}}^{(a)} \varphi T_{233\text{Pa}}^{-1/2}}{0,693} = 3,232 \times 10^{-18} \sigma_{233\text{Pa}}^{(a)} \varphi$$

Dans le cas d'un spectre neutronique thermique on trouve que cette proportion vaut 1 % pour un flux de $1,3 \times 10^{14}$ neutrons/cm²s. La même proportion est obtenue pour un flux de $0,38 \times 10^{16}$ neutrons/cm²s, dans le cas d'un spectre neutronique de réacteur rapide. On peut voir que le rapport des puissances spécifiques correspondant à ces flux est de 3,2 en faveur du système rapide. Les systèmes rapides sont donc moins sensibles que les systèmes thermiques aux captures dans le protactinium.

2. Lors d'un arrêt du réacteur le stock de protactinium 233 se transforme en uranium 233, ce qui a pour effet d'augmenter la réactivité et donc la valeur du coefficient de multiplication k . Cette augmentation est susceptible de rendre un réacteur hybride sur-critique. La durée nécessaire à cette évolution est de l'ordre de la demi-vie du protactinium 233, soit environ un mois. Il serait donc relativement facile de prendre des mesures correctives en insérant

une réactivité négative. Toutefois, on perdrait l'avantage de sûreté passive que peuvent posséder, en principe, les systèmes hybrides (voir ci-dessous). Il est donc intéressant de s'assurer que le système reste, en toute occurrence, sous-critique. La variation du coefficient k après arrêt du réacteur est déterminée par le rapport entre la masse du stock de protactinium et celle de l'uranium 233, soit, en supposant le système proche de la condition de régénération :

$$\frac{\Delta k}{k} = \frac{n_{232, \text{Th}} \sigma_{232, \text{Th}}^{(a)} \phi T_{233, \text{Pa}}^{1/2}}{0,693 n_{233, \text{U}}} = \frac{\sigma_{233, \text{U}}^{(a)} \phi T_{233, \text{Pa}}^{1/2}}{0,693} = \frac{(1+\alpha) r_f \sigma_{233, \text{U}}^{(a)} T_{233, \text{Pa}}^{1/2}}{0,693 n_{232, \text{Th}} \sigma_{232, \text{Th}}^{(a)}}$$

où, dans les conditions de régénération le taux de fission r_f est donné par :

$$r_f = \frac{n_{233, \text{U}} \sigma_{233, \text{U}}^{(a)} \phi}{(1+\alpha)} = \frac{n_{232, \text{Th}} \sigma_{232, \text{Th}}^{(a)} \phi}{(1+\alpha)}$$

avec $\sigma_{233, \text{U}}^{(a)} = (1+\alpha) \sigma_{233, \text{U}}^{(f)}$. Pour un système thermique on obtient : $\Delta k/k = 10^{-15} \phi$.

On voit que l'excursion de criticité devient importante pour des flux thermiques modestes, de l'ordre de quelques 10^{13} neutrons/cm²s. Le coefficient multiplicateur devrait être limité à 0,95 au mieux si l'on veut limiter la taille des systèmes. À densité de fissions égale, la comparaison entre systèmes thermiques et rapides suit le rapport $\sigma_{233, \text{U}}^{(a)} / \sigma_{232, \text{Th}}^{(a)}$. Ce rapport vaut 77 pour les systèmes thermiques et seulement 6,8 pour les systèmes rapides. L'excursion de criticité est donc près de dix fois plus faible pour les systèmes rapides. L'envers de cette médaille est, bien entendu, que la proportion d'uranium 233 par rapport au thorium 232, de l'ordre de 1,3 % pour les systèmes thermiques atteint près de 15 % pour les systèmes rapides.

De ce qui précède on voit que l'utilisation de combustibles solides semble favoriser celle des systèmes rapides.

3.5. Éléments de choix pour les systèmes hybrides

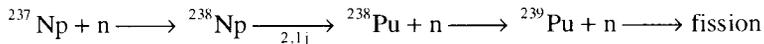
Les systèmes hybrides ont, en général, une double ambition : transmuter les noyaux et produire de l'énergie.

3.5.1. Transmutation des noyaux

La transmutation permet soit de brûler des déchets soit de produire de nouveaux noyaux fissiles. Le paramètre important est ici la valeur du flux neutronique. En effet, la durée de vie effective d'un noyau dans un flux de neutron est inversement proportionnelle à la valeur du flux. À titre d'exemple, un stock de noyaux ayant

une section efficace de 1 barn, assez caractéristique des produits de fission demanderait un séjour de 200 ans dans un flux de neutrons de 10^{14} neutrons/cm²s pour se voir réduit de moitié. De tels chiffres expliquent l'objectif que se fixent des projets tels que celui de Bowman *et al.* [5] d'atteindre des flux de neutrons thermiques de l'ordre de 10^{16} neutrons/cm²s. Il y a lieu de distinguer ici l'incinération des transuraniens et la transmutation des produits de fission :

- dans le cas de la transmutation des produits de fission, le surcroît de neutrons par fission nécessaire est directement proportionnel à la proportion des produits que l'on désire incinérer. D'après notre examen des neutrons rendus disponibles par spallation, on voit que pour éliminer 10 % des produits de fission il faut environ 10 % de l'énergie produite. Nous avons vu également que le nombre de neutrons supplémentaires fournis par un accélérateur est faible par rapport aux neutrons en excès fournis par les réacteurs rapides ;
- l'incinération des transuraniens se fait par fission. Elle est donc automatiquement accompagnée de production d'énergie et de neutrons. D'une façon générale on peut montrer [15, 9] que l'incinération dans un spectre de neutrons rapides est productrice de neutrons. Ceci est dû au fait que les sections efficaces de fission des noyaux fertiles, non fissiles par neutrons thermiques, sont importantes pour les neutrons rapides. À titre d'exemple nous donnons dans le tableau I les sections efficaces de fission et de capture moyennées sur un spectre rapide pour trois isotopes fertiles. La balance neutronique de l'incinération dans les spectres thermiques dépend à la fois de la valeur du flux neutronique et de la nature des noyaux à transmuter. L'intérêt des hauts flux thermiques a été démontré par C. D. Bowman [5] dans le cas de l'incinération du neptunium 237. Un cas similaire pourrait être celui de l'américium 241 [10]. Dans le cas du neptunium 237, l'incinération se fait normalement par la suite de réactions :



On voit qu'au moins trois neutrons (plus si l'on tient compte des captures par le plutonium 239) sont nécessaires pour l'incinération. Le processus est un consommateur net de neutrons. D'une manière semblable à ce qui a été dit en ce qui concerne le protactinium 233, de très hauts flux permettent de court-circuiter la désintégration du neptunium 238. Cet isotope est très fissile, avec une section efficace de l'ordre de 2500 barns. Sa constante de temps de décroissance sous flux neutronique vaut environ $5 \times 10^{15}/\phi$ (neutrons/cm²s) jours. On voit qu'il faut atteindre des flux de l'ordre de 10^{16} neutrons/cm²s pour que la fission directe du

Tableau I : Sections efficaces de fission et de capture moyennées sur un spectre rapide.

	σ_f (barns)	σ_c (barns)
²³⁷ Np	0,36	0,76
²³⁸ Pu	1,38	0,211
²⁴⁰ Pu	0,35	0,41

neptunium 238 devienne prépondérante. De tels flux ne sauraient probablement être réalisés que par l'utilisation de combustibles liquides, du fait de la consommation très rapide du combustible. En bref, on voit que l'incinération ne peut se faire efficacement qu'à l'aide d'un flux neutronique rapide ou à l'aide de très hauts flux thermiques.

3.5.2. Production d'énergie

Si le système hybride a pour ambition principale de produire de l'énergie, l'utilisation de combustible solides a le mérite de la simplicité. En particulier l'utilisation de combustible liquide peut augmenter significativement les risques de fuite de liquides hautement radioactifs, et donc les risques d'irradiation du personnel. L'utilisation des systèmes hybrides permet alors de s'affranchir d'un certain nombre de contraintes caractéristiques des systèmes critiques. C'est ainsi que l'on peut envisager, en principe, d'extraire de l'énergie d'un système où le combustible serait de l'uranium naturel et, le fluide ralentisseur et le caloporteur de l'eau légère. De même, on peut envisager l'utilisation de systèmes thermiques surrégénérateurs mettant en œuvre le cycle ^{233}U – ^{232}Th . Ce cycle est particulièrement intéressant car il minimise la production d'éléments transuraniens. *C'est donc lui qui a été retenu dans pratiquement tous les systèmes proposés* [6, 5, 4]. La valeur du coefficient de criticité k doit rester suffisamment faible pour que le système ne puisse pas devenir accidentellement critique. Pratiquement cela conduit à des valeurs de k comprises entre 0,90 et 0,98. Les valeurs de k les plus élevées ne peuvent être obtenues que pour les systèmes rapides, du fait de l'effet protactinium. Ceci permet aux systèmes rapides de viser à des puissances plusieurs fois plus élevées que celles susceptibles d'être atteintes par les systèmes thermiques. En se référant à la récente expérience du CERN [13], un k de 0,98 correspond à un gain en énergie de 150. Un proton de 1 GeV produira donc 150 GeV dans le milieu multiplicateur. L'énergie primaire nécessaire pour accélérer un proton à 1 GeV est d'environ 6 GeV. On déduit donc que l'énergie disponible serait de 144 GeV par proton de 1 GeV incident.

Nous examinons maintenant deux exemples de systèmes hybrides représentant des choix très différents, aussi bien des accélérateurs que des ensembles sous-critiques.

4. Le projet de C. D. Bowman

Ce projet fait appel au cycle *thorium–uranium*. Il a pour ambition principale :

- d'incinérer les transuraniens ;
- de transmuter un certain nombre de produits de fission.

Pour ce faire il propose des flux de neutrons thermiques très élevés, atteignant

10^{16} neutrons/cm²s. La multiplication neutronique est assurée, soit par la fission de l'uranium 233, soit par la fission des actinides que l'on veut incinérer : plutonium, neptunium, américium ou curium. L'uranium 233 est obtenu par bombardement d'une couverture de thorium 232, suivi d'une extraction en ligne du protactinium 233 que l'on laisse se désintégrer en uranium 233. Cette procédure est rendue possible par le recours à un combustible à base de sels fondus (mélange de fluorures), analogue à celui utilisé dans l'expérience pilote d'Oak Ridge. Le combustible liquide circule continuellement dans les bacs d'extraction du protactinium. Pour éviter une capture trop forte des neutrons par le protactinium, la couverture de thorium est située dans un flux réduit à quelques 10^{14} neutrons/cm²s. La région de flux thermique maximale est celle où sont incinérés les actinides. De très hauts flux présentent, en effet, les avantages suivants :

- réduction du temps de présence au sein du réacteur. C'est ainsi que le temps de vie du plutonium 239 dans un flux thermique de 10^{16} neutrons/cm²s est réduit à un peu plus de deux jours ;
- amélioration du bilan neutronique de l'opération d'incinération ;
- faiblesse de l'inventaire en matière fissile présente dans le système. C'est ainsi que la quantité de plutonium nécessaire pour produire 3 GW, dans un flux de 10^{16} neutrons/cm²s n'est que de 8 kg, avec une consommation journalière de 3,5 kg.

La transmutation des produits de fission se ferait, de façon optimale, dans une région de flux épithermique, car la région des résonances est celle où les sections efficaces d'absorption sont maximisées. Rappelons qu'un produit de fission ayant une section efficace de 1 barn aurait une durée de vie de 3 ans dans un flux de 10^{16} neutrons/cm²s. Pour éviter que les produits de fission stables deviennent radioactifs par capture neutronique, une séparation en ligne des produits de fission à transmuter est nécessaire. Les avantages qui précèdent sont, comme on peut s'y attendre, contre-balançés par la grande complexité du système prôné par C. D. Bowman et ses collaborateurs :

- un accélérateur capable d'accélérer des protons à une énergie comprise entre 1 et 2 GeV, avec des intensités supérieures à 100 mA ;
- un milieu multiplicateur utilisant des sels fondus comme combustible. Cette technique, bien que testée à Oak Ridge à petite échelle, doit démontrer sa résistance à l'emploi de flux très intenses. Elle pose des problèmes de corrosion. Il faut aussi remarquer que le combustible lui-même circule dans les échangeurs de chaleur primaires, ce qui rendrait toute intervention sur ces pièces souvent délicates très aléatoire sinon impossible ;
- une chimie en ligne très complexe devant séparer le protactinium, les produits de fission et injecter en continu du combustible.

Les figures 1 et 2 représentent un des schémas de principe qui ont été proposés ainsi qu'un diagramme des cycles chimiques. Elles illustrent la complexité de l'ensemble qui semble ne pouvoir être éventuellement réalisé et mis en œuvre que dans des pays ayant une technologie nucléaire très avancée.

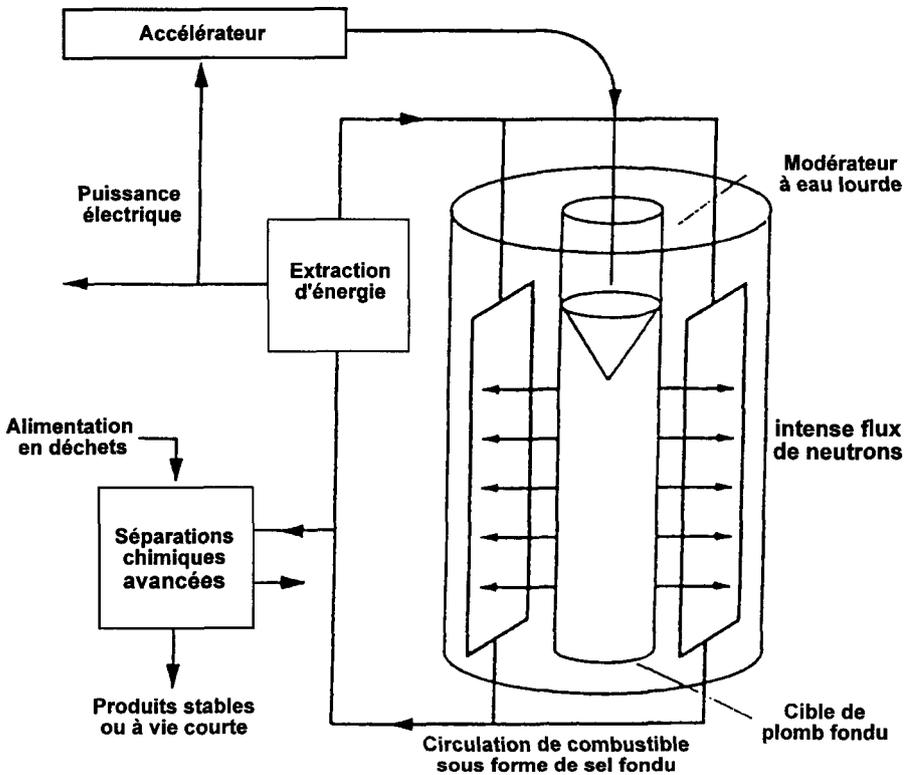


Figure 1 : Schéma d'un des systèmes proposés par le groupe de Los Alamos [5]. Le faisceau interagit avec une cible de plomb fondu plongée dans une piscine d'eau lourde. À l'intérieur de la piscine circule le combustible sous forme de sel fondu. À l'extérieur de la piscine se trouvent les modules d'extraction des produits de fission et de l'uranium 233 ainsi que les échangeurs primaires. La piscine d'eau lourde est à 70 °C. Elle comporte des tubes à travers lesquels circulent, dans la partie la plus externe, du nitrate de thorium en solution, et, dans la partie interne, des produits de fission en solution. Le thorium subit une capture produisant du protoactinium qui est extrait en ligne pour fabriquer de l'uranium 233. De leur côté, les produits de fission subissent des transmutations dans un flux épithermique afin de profiter des grandes sections efficaces dans la région des résonances.

5. Le projet C. Rubbia

Ce projet se situe dans la perspective d'une production massive d'énergie, les applications à l'incinération et à la transmutation y apparaissant comme des retombées. L'accélérateur principal y serait un cyclotron d'énergie 1 GeV, pour une intensité de 10 à 20 milliampères. Un tel système ne représente qu'un saut quantitatif relativement modeste par rapport aux cyclotrons du SIN (Zurich).

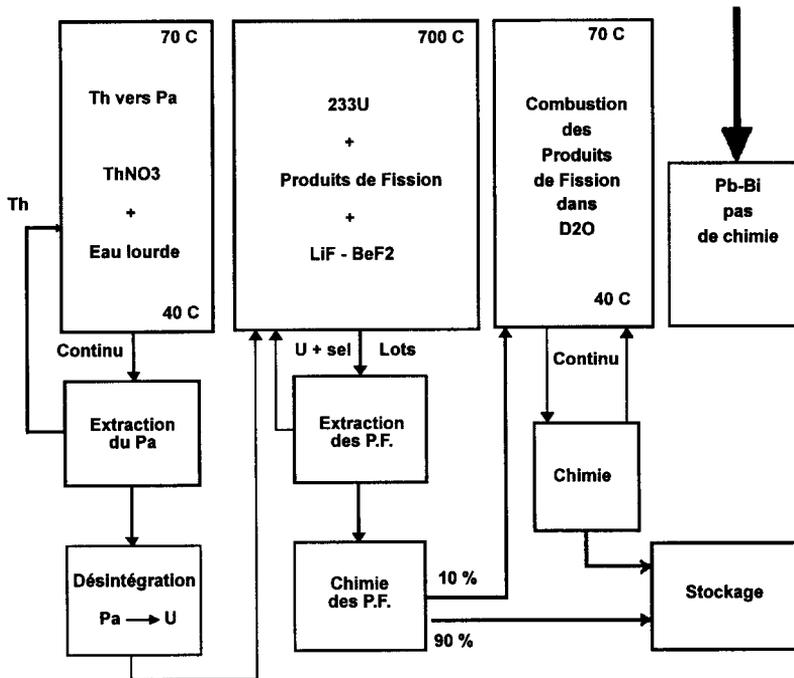


Figure 2 : Diagramme des traitements chimiques dans le système proposé par l'équipe de Los Alamos. Le traitement des fluides circulant dans l'eau lourde (nitrate de thorium et sels de produits de fission) sont traités en continu. Les sels fondus combustibles sont traités par lots. Dans ce cas le traitement consiste essentiellement à extraire les produits de fission, tout en réinjectant dans le cœur l'uranium 233.

L'ensemble sous-critique rapide devrait avoir un coefficient multiplicateur proche de 0,98. On envisage un gain de 150 permettant d'atteindre des puissances thermiques totales de 1500 MW, et des puissances électriques de 600 MW.

Pour ne pas trop ralentir les neutrons et pour évacuer une puissance spécifique de l'ordre de 2 MW/litre le refroidissement se fera par métal fondu. Pour des raisons de sûreté, on utilisera du plomb. Si le plomb fondu ne présente pas les dangers d'inflammation et d'explosion du sodium, il a un certain nombre d'inconvénients : la toxicité chimique, la corrosion, la production de radionucléides par transmutation, la viscosité. Le refroidissement par du plomb ou du bismuth a déjà été utilisé, en particulier dans les réacteurs des sous-marins nucléaires russes. L'utilisation du plomb fondu permettrait, comme dans le cas du sodium, de maintenir une basse pression dans le réacteur, ainsi que d'atteindre un bon rendement thermodynamique grâce à une haute température de sortie du plomb.

La figure 3 représente un schéma d'ensemble du système proposé. Ce dernier est caractérisé par un haut degré de sûreté, à tel point que tout accident majeur, même provoqué, y est impossible.

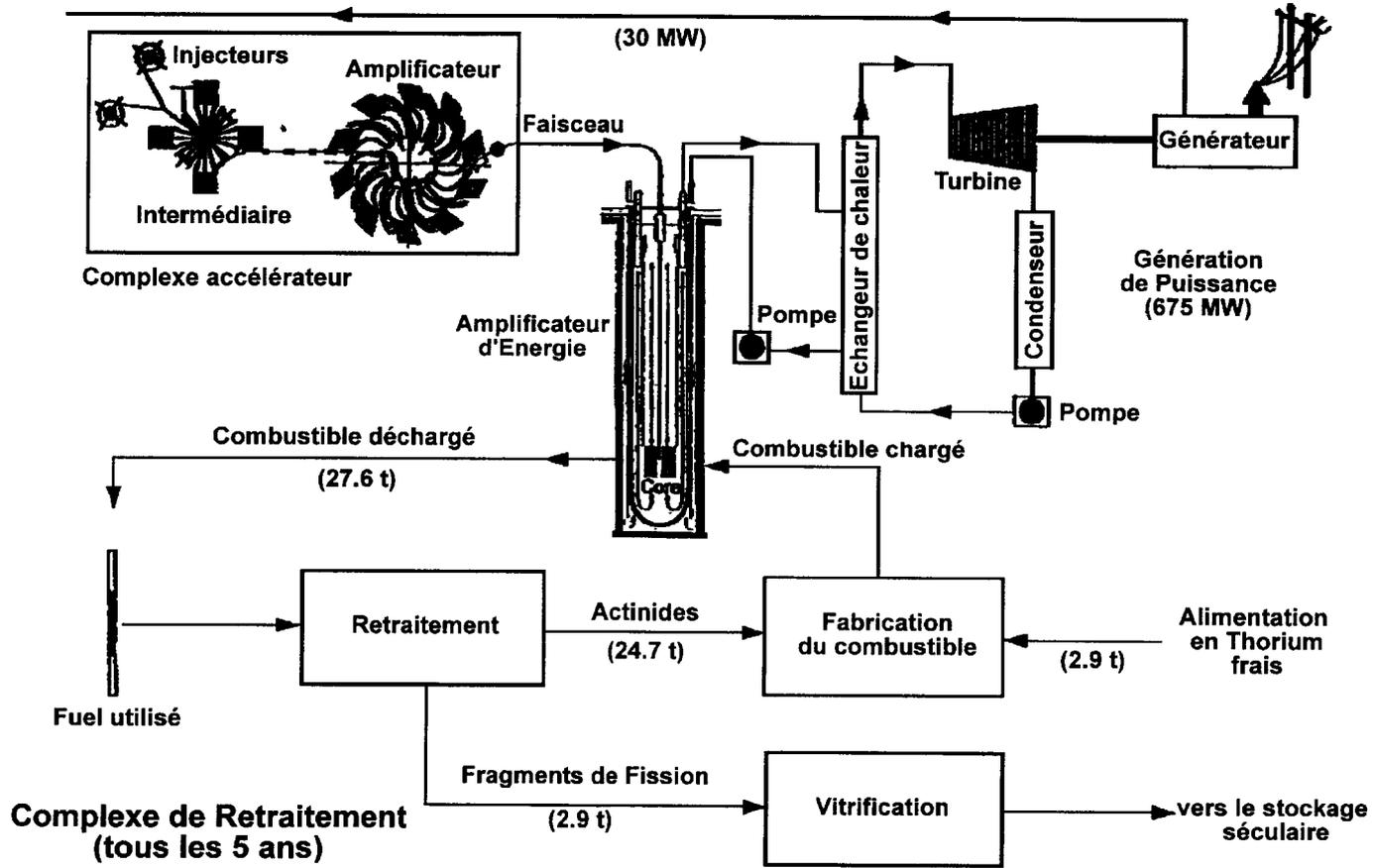


Figure 3 : Schéma d'ensemble de l'installation proposée par le groupe du CERN [7]. Le faisceau de protons issus du système accélérateur (trois cyclotrons en cascade) pénètre au sein d'une piscine de plomb fondu à travers un tube sous vide pénétrant jusqu'à hauteur du cœur du réacteur situé au fond de la piscine. La piscine de plomb fondu a 30 mètres de haut pour un diamètre de 6 mètres environ. Elle contient 10 000 tonnes de plomb fondu. L'extraction de chaleur se fait par convection naturelle jusqu'aux échangeurs primaires situés en haut de la piscine. Le circuit secondaire utilise un mélange Plomb-Bismuth comme fluide de refroidissement. Le retraitement du combustible se fait tout les cinq ans et consiste à extraire les produits de fission et à rajouter du thorium frais.

5.1. Éléments de sûreté

Nous décrivons ici les principaux éléments de sûreté du projet proposé par C. Rubbia.

5.1.1. Sous-criticité

Le pilotage d'un réacteur critique s'effectue grâce aux neutrons retardés dont la proportion varie entre 0,3 et 0,65 % du total des neutrons, selon les cas. Une variation de réactivité d'une quantité égale à ce pourcentage est dite égale à 1 \$ (dollar). On voit alors que si l'on insère brusquement un excès de réactivité supérieur à 1 \$ dans un réacteur critique ($k = 1$)⁽⁸⁾, il est impossible de ramener le réacteur à une condition sous-critique par une chute de barres qui ne peut qu'absorber les neutrons retardés. Le réacteur est, en effet, dans un état critique rapide. Soit $k_p = 1 + \epsilon$ la valeur du coefficient multiplicateur prompt après l'insertion de réactivité. Soit τ_n le temps moyen qui s'écoule entre chaque génération neutronique. Le nombre de neutrons de la $n^{\text{ième}}$ génération est $(1 + \epsilon)^n N_0$. Il s'ensuit que la puissance du réacteur, proportionnelle au nombre de neutrons croît exponentiellement en fonction de t :

$$W(t) = W_0 \exp(\epsilon t / \tau_n)$$

Pour des réacteurs rapides refroidis au plomb $\tau_n = 3 \times 10^{-8}$ s [7]. Il s'ensuit que la puissance serait multipliée par 100 au bout de $14 \times 10^{-8} / \epsilon$ secondes. On voit que même pour $\epsilon = 0,001$ la puissance est multipliée par 100 au bout de 0,14 ms !

(8) L'insertion d'une telle réactivité serait possible, par exemple en cas d'éjection des barres de contrôle.

Examinons maintenant le cas d'un système hybride avec $k = 0,98$. Une insertion de réactivité⁽⁹⁾ de 0,7 % correspondrait à l'insertion envisagée pour le système critique. Le gain est proportionnel à $1/(1 - k)$ et passe donc de 50 à 77, soit une augmentation d'un facteur 1,5. La différence de comportement est évidente.

Les considérations ci-dessus sont très schématiques. Un exemple de calcul réaliste [7] est montré sur la figure 4 où la comparaison entre les comportements d'un système critique et d'un système sous-critique est présentée.

5.1.2. Convection naturelle

La grande masse du plomb permet d'envisager un refroidissement du combustible par convection naturelle, au prix d'une cuve de 30 mètres de haut contenant 10 000 tonnes de plomb. Ce concept permet de s'affranchir des canalisations primaires qui posent de sérieux problèmes en cas de fuite. De plus la grande masse de plomb entraîne une grande inertie thermique, et donc une atténuation des effets qu'entraîneraient de brusques variations du courant de l'accélérateur.

5.1.3. Sécurité passive

Au cas peu probable où la température du plomb s'élèverait de plus de 100 °C par rapport au point de fonctionnement (par exemple arrêt des échangeurs primaires mais maintien du faisceau) il est prévu que le plomb déborde dans le tube d'amenée du faisceau, interrompant *ipso facto* l'afflux de neutrons dans la zone du combustible. En même temps le plomb fondu envahit l'espace vide assurant l'isolation thermique du bain de plomb fondu par rapport à l'air. Cette mise en contact avec l'air permet l'extraction de la chaleur produite par la désintégration radioactive du combustible irradié.

Enfin le débordement du plomb entraîne la mise en place au centre du combustible d'un absorbeur de neutrons ramenant la valeur du coefficient de multiplication à 0,9. Le système peut alors rester en sécurité aussi longtemps que nécessaire. Remarquons enfin que le cœur est situé dans un puits et protégé par une épaisseur de 20 mètres de plomb au point que même la chute d'un aéronef ou l'impact d'une bombe ne saurait conduire à un relâchement de radioactivité.

(9) Il s'agit ici d'un calcul purement académique puisqu'il n'y a pas de raison qu'une telle insertion de réactivité puisse se faire dans un réacteur hybride. On peut envisager qu'un événement catastrophique (tremblement de terre, explosion) amène une modification de la géométrie du cœur qui le rendrait plus réactif.

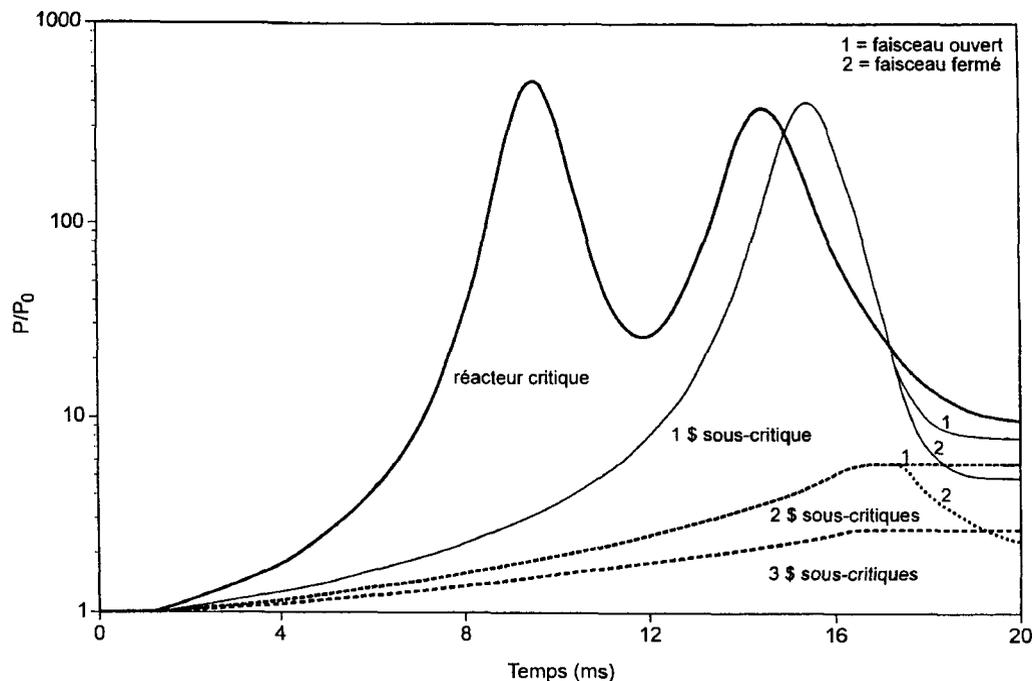


Figure 4 : Comparaison de l'évolution de la puissance d'un réacteur critique et de celle de systèmes ayant différents degrés de sous-criticité, après insertion d'une réactivité additionnelle. La réactivité additionnelle correspond à un accroissement de 170 $\$/$ seconde pendant 15 ms, après quoi la réactivité reste constante. Dans le cas du réacteur critique l'insertion de réactivité se traduit, dans un premier temps, par une augmentation exponentielle de la puissance. Celle-ci entraîne une augmentation de la température qui tend à diminuer la réactivité du réacteur. Lorsque la température est suffisamment élevée la puissance décroît, ce qui entraîne à nouveau une augmentation de la réactivité, et donc une nouvelle croissance de la puissance. Après 15 ms l'insertion de réactivité s'arrête, ce qui explique la décroissance finale de la puissance. Il faut remarquer que dans la réalité une augmentation de la puissance par deux ordres de grandeurs se traduirait par des dégâts irréversibles de la structure qui n'ont pas été pris en compte dans les calculs.

5.1.4. Sécurité sociologique

La sûreté des réacteurs nucléaires critiques est intimement liée à l'existence d'une "culture de la sûreté" dans les pays utilisateurs. En effet, un réacteur critique en mauvais état ou mal entretenu peut devenir dangereux et, cependant, rester en fonctionnement. De même des opérateurs incompetents peuvent faire fonctionner un réacteur dans des conditions dangereuses. Au contraire, un accélérateur mal entretenu ou mal conduit ne peut que voir son courant diminuer et éventuellement s'annuler. Il s'ensuit que l'absence ou la disparition de la compétence technique des opérateurs d'un système hybride amènera très vite l'arrêt de ce dernier. Il s'agit là d'une contre-réaction qui pourrait s'avérer très utile quand on songe au danger représenté par les réacteurs mal entretenus de certains pays de l'ex-URSS.

5.2. Caractéristiques neutroniques

La valeur de référence du coefficient de multiplication est de 0,98. Toutefois l'évolution du combustible amène, en principe, des écarts à cette valeur de référence. Comme nous l'avons indiqué plus haut, il est possible de limiter ces écarts en compensant la perte de réactivité due aux produits de fission par une augmentation de la proportion des noyaux fissiles. La figure 5 montre l'évolution de k_{eff} calculée avec ou sans capture par les produits de fission. La décroissance initiale de k est due à la fabrication du stock de protactinium 233.

La puissance totale thermique envisagée est de 1500 MW, pour une puissance électrique de 635 MW. La puissance spécifique prévue est de 500 kW/litres environ. La masse initiale du combustible serait d'environ 30 tonnes avec 10 % d'uranium 233. Le taux de combustion envisagé pour un séjour en pile de 5 ans est de 100 GWj/t, ce qui correspond à la combustion d'environ 10 % de la charge initiale.

5.3. Incinération des transuraniens

C. Rubbia et ses collaborateurs [11] ont montré que le système proposé était susceptible de brûler annuellement environ 1,2 tonnes de plutonium tout en produisant environ 0,7 tonnes d'uranium 233. Ils proposent d'utiliser cet uranium à la place de l'uranium 235 dans les réacteurs REP. L'amplificateur d'énergie se comporte alors comme un transformateur du plutonium en uranium 233. Il a été aussi montré [9] qu'un combustible formé du mélange d'actinides mineurs issus de l'incinération du plutonium dans les REP permettait d'obtenir un excellent comportement de k_{eff}

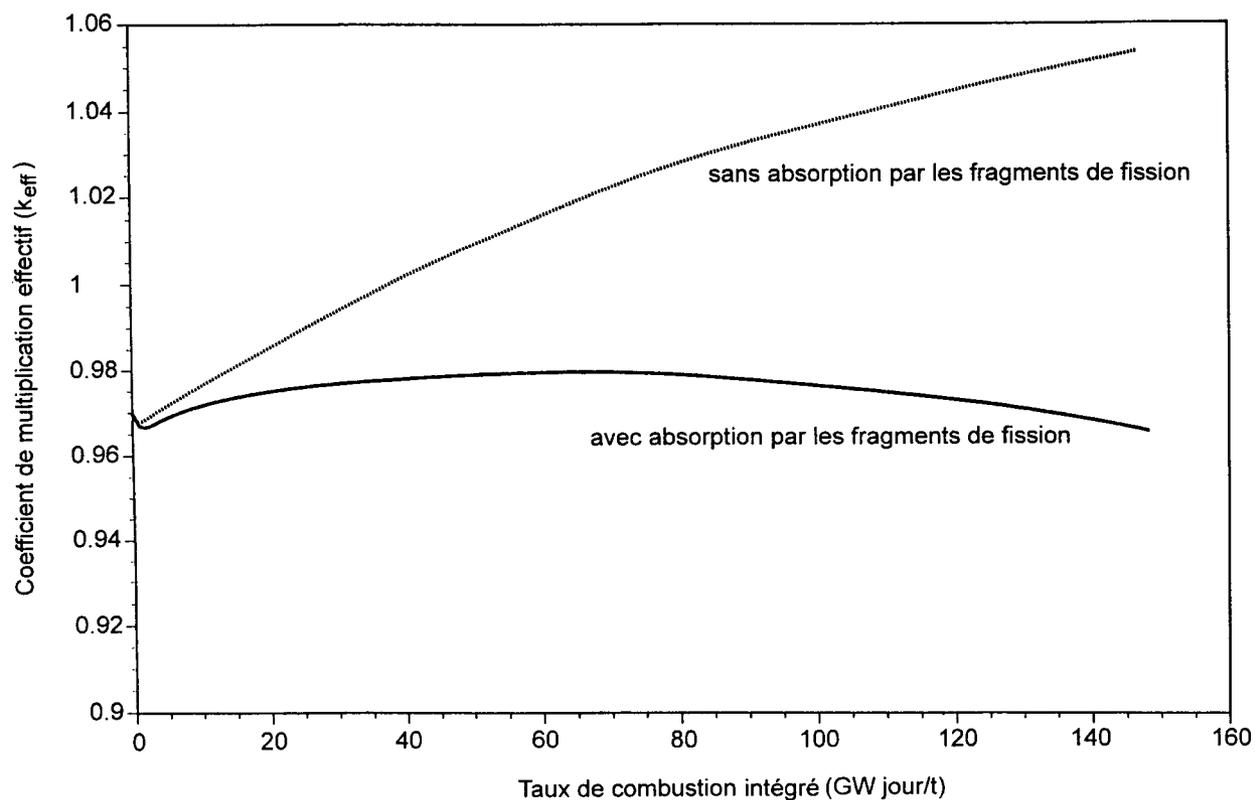


Figure 5 : Exemple de variation du coefficient multiplicateur k en fonction du taux de combustion. Le résultat d'un calcul négligeant l'absorption des neutrons par les produits de fission est également présenté. Dans ce dernier cas, l'augmentation de k est due à l'augmentation de la concentration en uranium 233. Cette concentration tend vers un équilibre.

5.4. Estimation des coûts

L'équipe du CERN a établi un chiffrage assez détaillé du coût de l'amplificateur d'énergie [16]. Par ailleurs l'IEPE de Grenoble [17] a examiné l'estimation de l'équipe du CERN et a présenté plusieurs scénarios de prix possibles différant par les coûts intercalaires, l'évaluation des gains dus aux effets de série, de taille et de prototype, ainsi que par celle du coût du cycle du combustible. Nous ne saurions donner ici une description détaillée de ces travaux. Toutefois, avant de présenter leurs résultats globaux, il est intéressant de détailler certains éléments fournis par le groupe du CERN, en particulier ceux qui correspondent aux parties non classiques de l'amplificateur d'énergie :

- le système accélérateur est composé de 4 cyclotrons :
 - 1) deux cyclotrons injecteurs produisant 6 mA à 10 MeV estimés chacun à 25 MF, soit un total de 50 MF ;
 - 2) un cyclotron à secteurs séparés d'énergie intermédiaire portant l'énergie à 120 MeV pour un coût total de 200 MF ;
 - 3) le cyclotron principal à secteurs séparés et amenant le faisceau à 1 GeV estimé à 500 MF.

Le coût total du système accélérateur y compris les lignes de transfert, les alimentations et les protections biologiques se monterait à environ 1 GF ;

- le coût du système sous-critique est estimé à 300 MF dont :
 - 40 MF pour les 10 000 tonnes de plomb ;
 - 75 MF pour la cuve d'un poids total de plus de 400 tonnes.

Le tableau II est repris du travail de l'IEPE. Il compare les coûts d'investissement donnés par l'équipe du CERN à ceux révisés par l'IEPE et à ceux d'un REP (dans les conditions françaises).

Tableau II : Coûts d'investissement en francs par kWh.

Coûts	Amplificateur d'énergie (CERN)	Amplificateur d'énergie (IEPE)	REP
Site et génie civil	1377	1300	1275
Méca. classique	1145	1150	2220
Partie non classique	1875	1900	1235
Électricité	1005	1000	715
Dépenses générales	825	500	525
Intérêts intercalaires		850	875
Maîtrise d'œuvre		1150	200
Démantèlement		65	150
Aléas	1190	250	250
Total	7417	8165	7445

On constate que les coûts d'investissements seraient comparables pour les REP et l'amplificateur d'énergie. Il y a lieu de souligner ici que la partie non classique ne représente qu'une relativement faible fraction du prix total, si bien que les incertitudes assez importantes sur cette partie n'ont qu'une répercussion limitée sur celui-ci.

Le tableau III compare les coûts du kWh selon le CERN et trois scénarios plus pessimistes envisagés par l'IEPE, différant par l'amplitude des économies d'échelle, de prototype et de série, à ceux des REP.

Tableau III : Coûts du kWh (en centimes) pour les différents projets.

Coûts	Amplificateur d'énergie (CERN)	Amplificateur d'énergie (IEPE)1	Amplificateur d'énergie (IEPE)2	Amplificateur d'énergie (IEPE)3	REP
Capital	7,35	8,01	11,00	9,35	7,35
Exploitation	2,56	3,50	3,50	3,50	5,00
Combustible	0,80	3,00	3,00	3,00	4,15
Total	10,89	14,51	17,50	15,85	16,4

On constate d'après ce tableau que le coût de l'énergie qui serait produite par l'amplificateur d'énergie serait, au pire, comparable à celle produite par les REP actuels. Les économies sur le coût du combustible proviennent, d'une part de la suppression de l'étape d'enrichissement de l'uranium, d'autre part de la plus faible quantité de combustible à retraiter (taux de combustion plus élevée). Il faut toutefois souligner qu'une incertitude demeure quant à la meilleure technologie à utiliser pour le retraitement (procédé THOREX ou pyro-électrolyse).

La comparaison des prix de l'électricité de différentes origines est très instructive et est faite sur le tableau IV tiré du travail de l'IEPE.

Le tableau IV montre que les conditions dans lesquelles sont réalisées les installations nucléaires ont une influence déterminante sur leur rentabilité. A l'évidence ces conditions dépendent étroitement de l'acceptabilité sociale du nucléaire.

Tableau IV : Coûts du kWh suivants les systèmes de production.

	Investissement (F/kW)	Capital (F/kWh)	Exploitation (cc/kWh)	Combustible (cc/kWh)	Total (cc/kWh)
AE (CERN)	7417	7,35	2,56	0,8	10,71
REP (France)	7445	7,35	5,00	4,15	16,50
REP (Allemagne)	15075	14,80	6,35	5,40	26,55
Charbon (Allemagne)	5985	5,85	4,75	14,70	25,3
Gaz cycle combiné	3250	3,50	2,10	21,80	27,40

6. Conclusion

Si l'on admet que le recours massif au nucléaire reste une option à considérer, il est clair que tout système futur doit être surrégénérateur. Les systèmes hybrides sont très performants à cet égard. Ils permettraient de passer d'une économie du plutonium à une économie du thorium, bien moins polluante. Ils pourraient également, en principe, permettre la réalisation de systèmes intrinsèquement plus sûrs que les réacteurs actuels.

De nombreuses questions restent à étudier, concernant tous les aspects des systèmes hybrides : la fiabilité, la sûreté, la rentabilité... Des accélérateurs de haute intensité doivent être construits. La réalisation d'un premier prototype de démonstration fournissant une puissance de quelques dizaines de MW pourrait avoir lieu dans un délai de 5 à 7 ans. La mise en œuvre d'un programme industriel ne semble pas concevable avant une vingtaine d'années.

Nous avons vu que les propositions présentées de systèmes hybrides font appel à des technologies non conventionnelles en ce qui concerne l'ensemble multiplicateur de neutrons : les sels fondus, le plomb fondu, la convection naturelle, le cycle thorium-uranium. En principe ces technologies pourraient être mises en œuvre grâce à des réacteurs critiques. La surproduction de neutrons obtenus par spallation est relativement faible, en particulier si les milieux multiplicateurs sont de type rapide. L'intérêt majeur des systèmes hybrides est leur sous-criticité qui ouvre la perspective de réaliser des réacteurs à sûreté déterministe. Ils offrent ainsi une occasion unique d'améliorer de façon décisive l'acceptabilité sociale de l'énergie de fission. En particulier, compte tenu des problèmes bien connus de la filière rapide refroidie au sodium, ils sont la seule alternative actuellement crédible pour atteindre la surrégénération, point de passage obligé pour toute extension importante du nucléaire.

Les systèmes hybrides trouveront-ils surtout une application dans la surrégénération et la transmutation ou bien joueront-ils un rôle majeur dans la production d'énergie ? Quelques soient les réponses données à ces questions, il restera que les propositions des tenants des systèmes hybrides ont incité à une réflexion renouvelée sur l'avenir de la production d'énergie par fission.

Bibliographie

- [1] Lewis W.B., Rapport AECL-968 (1952).
- [2] Katsuta H. *et al.*, Second OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation, Argonne (États-Unis) 11–13 novembre 1993.
- [3] Van Tuyle G.J. *et al.*, *Nucl.Technol.* **101** (1993) 1.

- [4] Furukawa K. *et al.*, The combined system of accelerator molten salt breeder (AMSB) and molten salt converter reactor (MSCR), Japan-US seminar on "thorium fuel reactors", Naora (Japon) octobre 1982.
- [5] Bowman C.D. *et al.*, *NIM A320* (1992) 336 ; Venneri F. *et al.*, Los Alamos Report, LA-UR/93-752.
- [6] Carminati F. *et al.*, Rapport CERN, AT/93-47(ET).
- [7] Rubbia C. *et al.*, Rapport CERN, AT/95-44 (ET).
- [8] Viala M. and Salvatores M., GLOBAL '95, Int. Conf. On Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems, Versailles (France) 11–14 septembre 1995.
- [9] Nifenecker H. et Méplan O., Atelier Gédéon (France) 6–7 mai 1996.
- [10] Spiro M., Atelier Gédéon (France) 6–7 mai 1996.
- [11] Rubbia C. *et al.*, Rapport CERN, AT/95-53 (ET).
- [12] Messaoudi N., Thèse de l'université de Marseille.
- [13] Andriamonge S. *et al.*, *Phys. Lett.* **B348** (1995) 697.
- [14] Ritter G., Mémoire de DEA de l'Université Joseph Fourier (Grenoble).
- [15] Salvatores M. *et al.*, *Nucl. Science and Engineering* **116** (1994) 1.
- [16] Fernandez R., Mandrillon P., Rubbia C. et Rubbio J.A., Rapport CERN, LHC/96-01 (EET).
- [17] Finon D. et Menanteau P., IEPE décembre 1994.

7 Le rôle potentiel du cycle du combustible à base de thorium

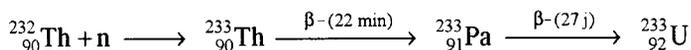
Jean-Paul Schapira^(★)

1. Introduction

Jusqu'à présent, tous les réacteurs nucléaires de puissance dans le monde utilisent l'uranium naturel ou enrichi comme combustible. L'uranium s'est en effet naturellement imposé dès la mise en œuvre de l'énergie nucléaire, parce qu'il est le seul élément chimique à l'état naturel possédant un isotope fissile, l'uranium 235. Il produit de plus, à partir de son isotope le plus abondant, l'uranium 238, du plutonium, qui peut à son tour fournir de l'énergie, étendant ainsi le contenu énergétique de l'uranium naturel.

On a cependant très tôt observé qu'un autre élément $Z = 90$, le thorium, qui ne possède à l'état naturel qu'un seul isotope, le thorium 232, était susceptible de produire un noyau fissile artificiel, l'uranium 233, par capture d'un neutron suivie de 2 désintégrations β^- , de la même manière que le plutonium 239 est formé à partir de l'uranium 238 :

(★) Institut de physique nucléaire, 91406 Orsay Cedex.



On peut bâtir ainsi une nouvelle filière thorium–uranium, dont l'uranium 233 constitue le combustible de base. Telle quelle, cette filière ne s'est pas développée, car elle nécessite la fabrication préalable de l'uranium 233 par irradiation neutronique en réacteur, ce qui suppose que l'on dispose déjà de matières fissiles (uranium enrichi, plutonium) mises en œuvre ou produites dans la filière standard à uranium.

2. Caractéristiques principales d'un cycle au thorium

Les trois caractéristiques principales du thorium, que nous explicitons plus loin, sont :

- son abondance dans la nature ;
- de bonnes propriétés neutroniques en neutrons thermiques ;
- une réduction *a priori* importante des impacts radiologiques potentiels à long terme par rapport à ceux que présentent les diverses filières fondées sur l'uranium. Cette dernière propriété résulte d'une part des faibles durées de vie des descendants du thorium, que l'on retrouve dans les résidus de l'extraction minière, et d'autre part, des caractéristiques nucléaires diverses des noyaux lourds formés en réacteur, et que l'on retrouve dans les divers déchets B et C de la fin du cycle.

Aussi, l'utilisation du thorium comme nouveau combustible à la place de l'uranium pourrait devenir une option intéressante par rapport au problème des déchets à vie longue. En revanche, on verra plus loin que sa mise en œuvre industrielle, qui comporte nécessairement le recyclage de l'uranium, pourrait présenter des impacts radiologiques immédiats, sur les travailleurs notamment, bien plus importants que ceux que l'on rencontre aujourd'hui dans le cycle uranium–plutonium.

2.1. Abondance du thorium

Le thorium est très répandu sur terre (3 à 4 fois plus que l'uranium) sous diverses formes minérales. La forme la plus courante est l'oxyde de thorium (thorite) que l'on trouve essentiellement mélangé avec l'oxyde d'uranium (selon des proportions variables), dans des phosphates de terres rares appelés monazites. Les principales ressources de thorium au plan mondial figurent dans le tableau I.

Tableau I : Ressources mondiales en thorium estimées en 1992 (en milliers de tonnes).

Pays	RRA ^a	RSE ^b	Total	%
Europe				
Groenland	54	32	86	
Norvège	132	132	264	6,4
Turquie	380	500	880	21,4
Total	566	724	1290	31,4
Amérique				
Brésil	606	700	1306	31,8
Canada	45	128	173	
États-Unis	137	295	432	10,5
Total	790	1125	1915	46,6
Afrique				
Égypte	15	280	295	7,2
Niger	?	?	29	
Afrique du Sud	18	?	115	
Total	36	309	479	11,7
Asie				
Inde		319	391	7,8
Total	343	30	403	9,8
Total OCDE	1754	2188	4106	100
Total des ressources en uranium, OCDE^c	2174	1002	3176	

^a RRA : ressources raisonnablement assurées.

^b RSE : ressources supplémentaires estimées.

^c AEN/OCDE (1993), RRA à un coût inférieur à 130 \$/kg dans le cas de l'uranium.

Contrairement à la plupart des minerais d'uranium, le thorium apparaît dans ces monazites à des teneurs beaucoup plus élevées, couramment de plusieurs pour cent.

2.2 Propriétés neutroniques de l'uranium 233

On caractérise habituellement les performances neutroniques d'un noyau fissile par le nombre η de neutrons produits à la suite de l'absorption d'un neutron par ce noyau, soit :

$$\eta = \frac{\nu}{1 + \alpha}$$

où ν est le nombre moyen de neutrons émis par fission et α le rapport capture/fission.

Le tableau II donne les valeurs de η pour les 4 principaux noyaux fissiles pouvant jouer le rôle de combustible dans des filières nucléaires. Nous y avons également reporté la fraction de neutrons retardés β_{eff} en spectre thermique, qui joue un rôle important pour le contrôle du réacteur. On constate qu'en neutrons lents la filière Th-U présente *a priori* la meilleure économie de neutrons, mais qu'en neutrons rapides c'est la filière U-Pu.

Tableau II : Valeurs de $\eta = \nu / (1 + \alpha)$ et de la fraction de neutrons retardés β_{eff}

Noyau fissile	Neutrons lents (0,025 eV)		Neutrons rapides
	η	β_{eff}	η
²³³ U	2,28	0,39 %	2,31
²³⁵ U	2,07	0,74 %	1,93
²³⁹ Pu	2,11	0,26 %	2,49
²⁴¹ Pu	2,15	0,48 %	2,72

Cette propriété a été exploitée dans de nombreuses études de réacteurs thermiques basés sur la filière Th-U, possédant un coefficient de conversion élevée pouvant presque atteindre la surrégénération. C'est le cas par exemple du réacteur CANDU à eau lourde, chargé au thorium, ou du réacteur à sel fondu MSBR développé à Oak Ridge dans les années 1960-1970.

La fraction de neutrons retardés (voir le chapitre 3) β_{eff} de l'uranium 233 est plus faible que celle de l'uranium 235, mais plus élevée que celle du plutonium 239 ; on ne devrait donc pas rencontrer à cet égard des problèmes spécifiquement nouveaux de ceux que l'on rencontrera avec le recyclage du plutonium dans un réacteur thermique, chargé à 100 % avec des combustibles MOX.

La différence essentielle entre les deux types de combustibles (uranium, thorium) réside en revanche dans le fait que le protactinium 233 a une période de décroissance plus longue que son équivalent le neptunium 239 de la filière uranium. Ceci pose des problèmes plus délicats en ce qui concerne le contrôle du réacteur, et de sa réactivité en cas d'arrêt. En effet, l'inventaire en réacteur du protactinium 233 étant bien plus important que celui du neptunium 239, on doit s'assurer de bien contrôler la réactivité du cœur qui augmente après arrêt, par décroissance naturelle du protactinium 233 vers l'uranium 233.

Les considérations sur le β_{eff} et surtout sur l'absence d'isotope fissile naturel, plaide en faveur de l'utilisation du thorium dans les systèmes hybrides décrits dans les chapitres 5 et 6.

3. Impact radiologique à long terme de la mise en œuvre du cycle au thorium

3.1. Radiotoxicité des résidus miniers

Du point de vue des risques potentiels à long terme, les résidus miniers, contenant les descendants du thorium, ainsi que de l'uranium avec ses descendants, éventuellement non extraits, présentent une radiotoxicité très inférieure à celle des résidus de l'extraction de l'uranium (voir figure 2 pour le cas concret d'une monazite d'origine indienne).

Cette différence tient au fait que cette radiotoxicité décroît très rapidement après la phase d'extraction du thorium, au rythme de la période de 5,7 ans du radium 228, nouvelle tête de la série 4n, comparée à celle du thorium 230 (77 000 ans), tête de série des résidus miniers de l'extraction de l'uranium. Pour la même raison, le risque résiduel lié à la migration du radium dans les terrains est fortement réduit par rapport au cas de l'extraction de l'uranium dont le radium 226 a une longue période de 1 600 ans.

Un autre avantage, également au stade de l'extraction du thorium, est l'absence de ce qu'on appelle l'effet radon résultant de son exhalation. En effet la période du radon 220, qui intervient dans la chaîne 4n du thorium, est de 56 secondes : la majeure partie de ses descendants reste piégée avec les résidus, cette période étant inférieure au temps de migration du radon à travers les matériaux constituant les résidus. Ceci n'est pas le cas en général du radon (^{222}Rn), associé à l'extraction de l'uranium, dont la période est de 3,8 jours.

3.2 Radiotoxicité des combustibles irradiés

La composition isotopique discutée à la section 2.3. qui caractérise un combustible irradié au déchargement, détermine l'évolution ultérieure de la radiotoxicité produite dans le réacteur. Les figures 3 et 4 montrent l'allure de cette évolution et la comparaison avec celle d'un combustible irradié issu, dans des conditions analogues de taux de combustion, de la filière standard à uranium enrichi.

On constate que la radiotoxicité d'un combustible ^{232}Th - ^{233}U irradié reste inférieure, d'un facteur 10 à 20, selon l'époque, à celle d'un combustible irradié à uranium enrichi pendant les 10 000 premières années environ. Ceci s'explique par :

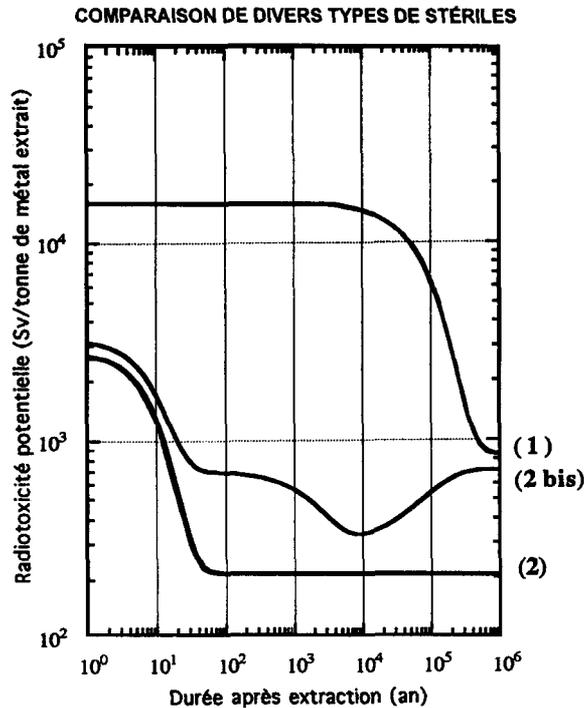


Figure 2 : Comparaison des risques potentiels par ingestion présentés par les résidus miniers. Hypothèse : l'uranium et le thorium sont extraits avec une efficacité de 95 %.

Courbe (1) : résidus de l'extraction de l'uranium, contenant tous les descendants de l'uranium (fixation totale du radon 222). Courbe (2) : résidus de l'extraction du thorium d'un minerai pur de thorium. Courbe (2 bis) : résidus de l'extraction du thorium d'un minerai pur de thorium, d'origine indienne (contenant de l'uranium).

- une différence d'inventaire au déchargement entre l'uranium 233, le plutonium 239 et l'uranium 235 liée aux différences de section efficace ;
- aux différences de période de l'uranium 233 (160 000 ans) et du plutonium 239 (24 000 ans) et donc aux différences de facteur de dose (en Sv/g) (voir tableau III). Il faut en effet raisonner en Sv/g et non en Sv/Bq lorsque l'on n'est pas en équilibre séculaire ;
- aux différences de modes de décroissance de l'uranium 233 et du plutonium 239. Au-delà de 10 000 ans, alors que la radiotoxicité engendrée par le plutonium 239 continue de décroître (passage par l'uranium 235 quasi stable à cette échelle de temps), celle engendrée par l'uranium 233 croît de nouveau. Ce phénomène, caractéristique de la filière Th-U, correspond à une croissance de l'activité du thorium 229 (7 300 ans de période) au fur et à mesure de son alimentation à partir de l'uranium 233. Après mise à l'équilibre, l'ensemble ^{233}U et ^{229}Th décroît de nouveau avec la période du premier.

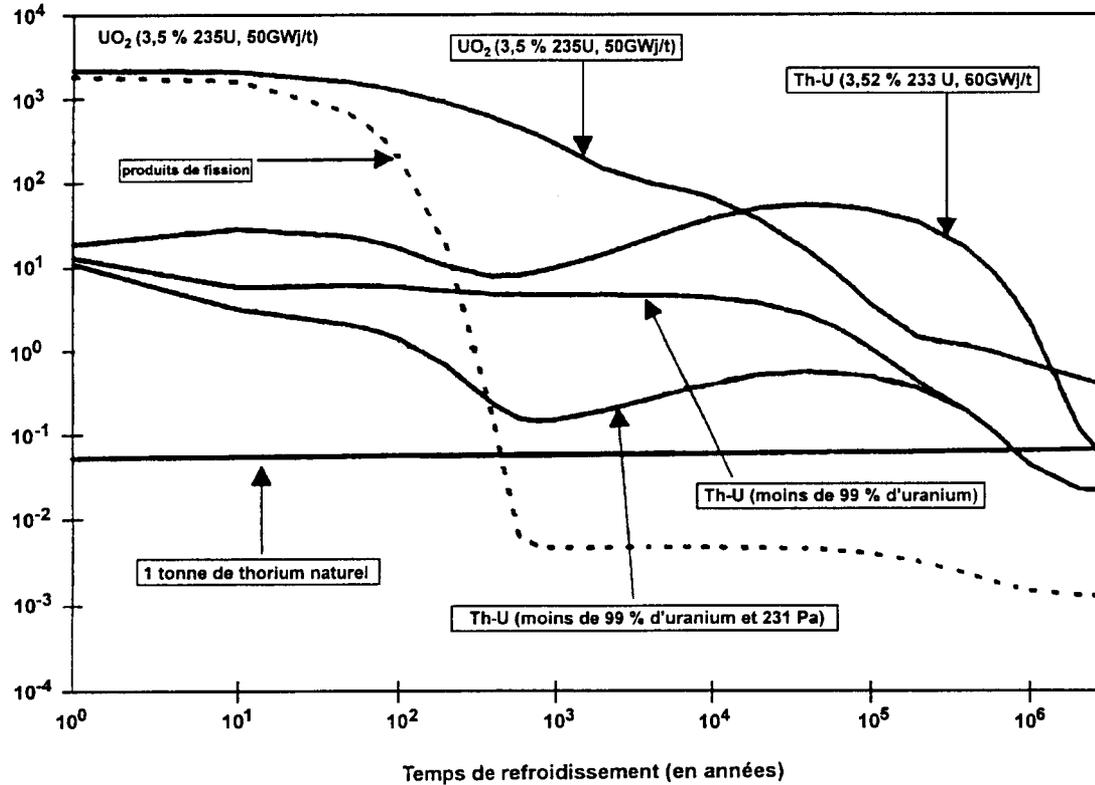


Figure 3 : Évolution de la radiotoxicité par ingestion d'un combustible irradié (3,52 % de ²³³U et 60 GWthj), avec la contribution des divers actinides présents à toute époque du futur.

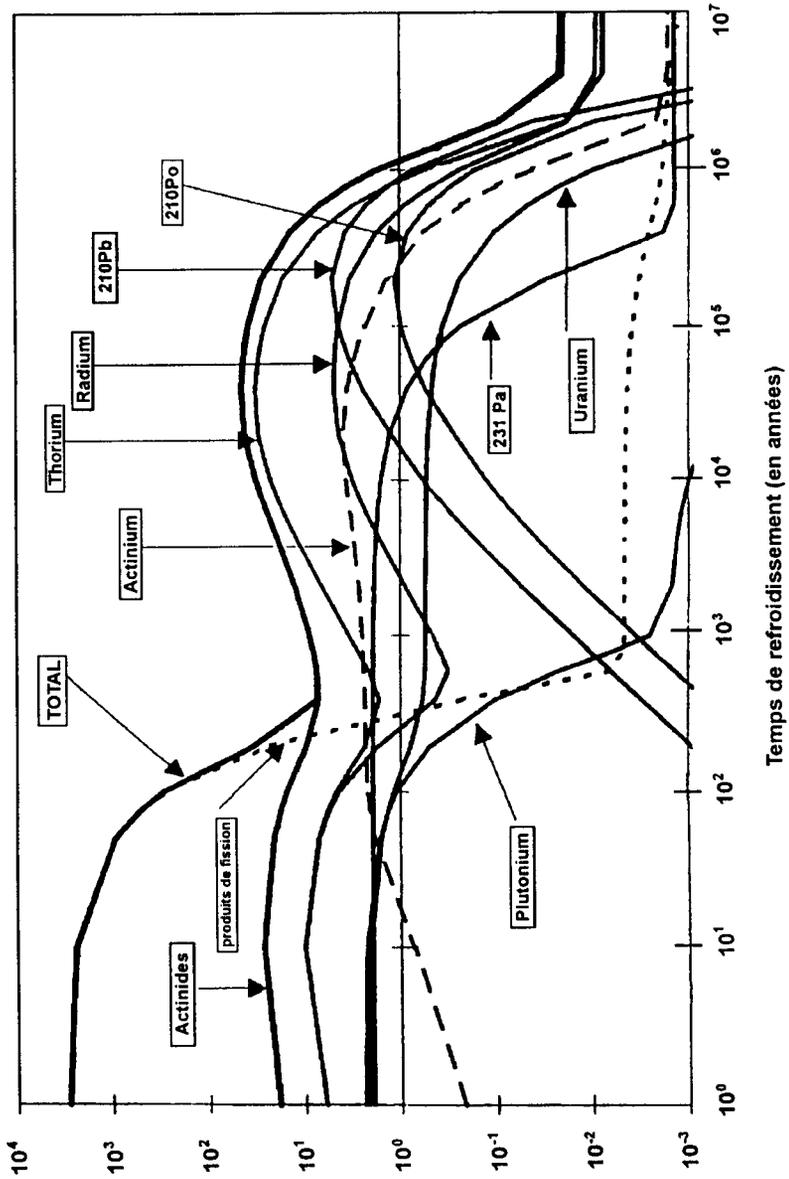


Figure 4 : Comparaison des évolutions de la radiotoxicité des 2 filières U enrichi et $\text{Th}-^{233}\text{U}$

Tableau III : Facteur de dose (par ingestion, CIPR-68) des radionucléides clefs intervenant dans le comportement de la radiotoxicité à long terme

Noyau	Période (année)	Facteur de dose (Sv/Bq)	Facteur de dose (Sv/g)
²³⁹ Pu	24 120	$2,5 \times 10^{-7}$	573
²³³ U	159 200	$5,0 \times 10^{-9}$	18
²²⁹ Th	7340	$5,8 \times 10^{-7}$	3777

4. Impact radiologique à court terme lié à la mise en œuvre du cycle au thorium

On vient de voir que le thorium présente, par rapport à la filière U–Pu, des avantages au plan de la production de déchets à vie longue et des effets potentiels à long terme des résidus miniers et des déchets de haute activité. En revanche la mise en œuvre du cycle du thorium s'accompagne d'un risque radiologique potentiel beaucoup plus important pour les personnels que celui que l'on observe dans le cycle uranium–plutonium.

C'est la manipulation des matières nucléaires associées au cycle thorium–uranium qui conduit à l'impact radiologique le plus important. Nous allons rapidement les passer en revue. Il y a trois types de matières manipulées dans le cycle :

- le thorium frais, c'est-à-dire celui qui provient directement de la mine après purification de ses descendants :
 - risque lié à l'inhalation de poussières produites lors de l'extraction du minerai, d'autant plus important que ces minerais ont généralement d'importantes teneurs en thorium. À cela s'ajoute un effet dû à l'inhalation du radon ;
 - accroissement de l'activité du thorium frais en fonction de son âge dû à une rapide remise à l'équilibre avec l'ensemble de ses descendants. Ceci n'est pas le cas de l'uranium 238 (à part la remontée rapide du thorium 234 et du protactinium 234). Il s'ensuit que le risque d'irradiation par du thorium frais est supérieur à celui de l'uranium frais ;
- l'uranium recyclé. La fabrication de combustibles à base d'uranium 233 est certainement la phase la plus pénalisante, en raison de la présence, parmi les isotopes de l'uranium recyclé, de l'uranium 232 dont un descendant, le thallium 208 est un émetteur à 100 % (un γ de 2,6 MeV par Bq). Le débit de dose dû à l'uranium 232 augmente avec l'âge de l'uranium (compté après la séparation chimique de l'uranium) en raison de la mise en équilibre du thorium 228, descendant direct de l'uranium 232, de période de 1,9 ans (voir figure 5). On peut en fait comparer les "ennuis" dus à l'uranium 232 à ceux du plutonium 238 que

l'on rencontre avec la filière uranium. Les activités α associées à l'uranium 232 sont très supérieures à celles associées au plutonium 238, dû au fait que tous les descendants de l'uranium 232, depuis le thorium 228, ont une faible période, tandis qu'au contraire l'uranium 234, descendant direct du plutonium 238, "bloque" toute l'activité α , en raison de sa très longue période. On s'attend donc à ce que le recyclage de l'uranium 233 pose en plus des problèmes accrus en termes de dose neutrons et d'émission de chaleur.

- le thorium recyclé. Le thorium recyclé contient du thorium 228, qui a également le thallium 208 parmi ses descendants. Aussi est-il préférable de laisser décroître pendant plusieurs années le thorium 228 séparé par retraitement, avant de recycler le thorium.

5. Les aspects techniques liés à la prolifération

L'uranium recyclé dans une filière fondée sur un cycle au thorium pour des usages civils (production d'électricité) peut en principe, comme le plutonium dans les mêmes conditions, constituer l'explosif d'une arme nucléaire. La masse critique, les conditions de mise en œuvre, dépendent, entre autres, de sa composition isotopique. De ce point de vue il n'y a pas de différence fondamentale entre les deux types de matières nucléaires (uranium recyclé, plutonium), dont l'utilisation ne nécessite qu'une séparation chimique.

Il faut cependant souligner une différence importante entre ces deux matières. La présence d'une quantité significative d'uranium 232, puissant émetteur d'un rayonnement γ de 2,6 MeV, dans l'uranium recyclé, rend beaucoup plus malaisé la fabrication et la manipulation de l'engin, mais surtout bien plus aisée la détection du détournement éventuel de la matière fissile. Ce dernier point amène de nombreux commentateurs à souligner que le contrôle technique de la prolifération est en principe plus aisée dans le cas de l'uranium recyclé que dans celui du plutonium, qui n'émet que des rayonnements peu pénétrants et peu intenses.

Signalons enfin, sous cette rubrique, que le thorium peut être considéré comme une matrice intéressante pour un combustible destiné à la destruction, en réacteur, du plutonium des armes. Dans ce cas, la substitution du thorium à l'uranium dans un combustible mixte éviterait la régénération partielle, probablement difficilement contournable, du plutonium à partir de l'uranium. Ainsi, ce procédé d'utilisation de combustibles mixtes thorium-plutonium, permettrait à terme de produire, à partir du plutonium, de l'uranium 233, qui se prête beaucoup plus aisément au contrôle technique de la prolifération.

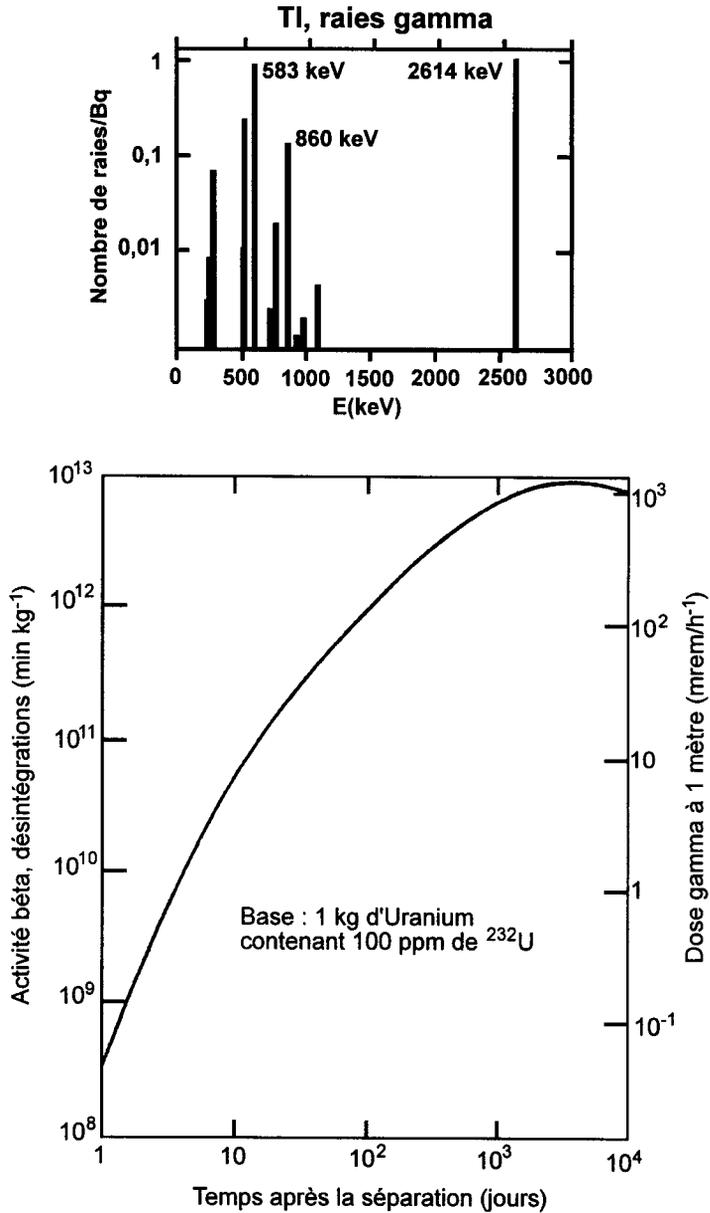


Figure 5 : Raies γ du thallium 208 (en haut) et débit de dose γ (en bas) délivré par 1 kg d'uranium contenant 100 ppm d'uranium ^{232}U , en fonction de l'âge du produit (d'après T. H. Pigford and C.S. Yang, Thorium Fuel Cycle Alternatives, rapport UCB-NE-3227, 1978).

6. Conclusion

Le recours à un combustible à base de thorium présenterait un avantage en terme de risque potentiel, car il génère des déchets nettement moins toxiques durant les 10 000 premières années environ. En revanche, il impose aux opérations du cycle (mine, fabrication de combustible, retraitement) des contraintes (débits de dose γ , neutrons, chaleur dégagée) bien plus importantes que dans le cycle uranium. La mise en œuvre du thorium dans un combustible liquide à sels fondus (voir le chapitre 6) éviterait d'une manière significative nombre de ces problèmes qui sont liés au recyclage de l'uranium et du thorium dans des combustibles solides. Ces inconvénients, en revanche, se transforment en avantage pour la lutte contre la prolifération, en la rendant techniquement plus aisée.

Aujourd'hui le thorium mérite largement d'être considéré pour réduire d'une manière significative l'impact radiologique potentiel à long terme, tout en utilisant une ressource plus abondante que l'uranium naturel. Cette option implique évidemment une mise en œuvre de techniques (notamment dans le domaine de la chimie du retraitement et de la télé manipulation) dont la qualification industrielle n'est pas acquise à ce jour.

À part cette contribution à la réduction des risques présentés à long terme par les déchets, l'utilisation du thorium pourrait devenir, à un horizon jugé aujourd'hui lointain, une option concurrente à celle des surgénérateurs de type Superphénix, en cas d'un recours massif au nucléaire qui aurait pour conséquence une raréfaction des ressources en uranium.

**Aspects
politique et technique
du stockage**

8 La gestion des déchets radioactifs

Maurice Allègre^(★)

1. Information du public

Autour du vocable "déchets radioactifs", il est facile de faire naître des sentiments de méfiance, voire de peur irraisonnée en se référant consciemment ou pas à Hiroshima ou Tchernobyl, en exploitant le laxisme dont ont fait preuve certains pays à l'égard de ce type de déchet et en spéculant sur la complexité des phénomènes en jeu. Une telle diabolisation des déchets nucléaires serait inadmissible ; comme le serait une présentation systématiquement lénifiante des problèmes qu'ils posent. Il appartient aux responsables de la gestion des déchets, en s'appuyant sur des études scientifiques rigoureuses, de convaincre le monde scientifique, le monde politique et plus généralement l'opinion publique que des solutions techniques sûres peuvent être mises en œuvre.

Le grand public manque de connaissances scientifiques. Il est néanmoins prêt à faire confiance à la science pour autant qu'il n'assiste pas à une bataille ouverte entre scientifiques de bords opposés se jetant à la figure des arguments auxquels il ne comprend rien. Il est donc essentiel de faire surveiller, critiquer et évaluer la qualité des travaux effectués par un aréopage de scientifiques incontestables par

(★) Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs, ANDRA, Parc de la Croix Blanche, 1-7 rue J. Monnet, 92298 Châtenay-Malabry Cedex.

leur savoir aussi bien que par leur indépendance. Recourir à une telle méthode est d'ailleurs indispensable pour recueillir l'adhésion de la communauté scientifique. Celle-ci ne pourra avaliser un projet de gestion de déchets que si elle est totalement et complètement en mesure de poser toutes les questions et soulever tous les problèmes qu'elle estime nécessaires.

Mais d'autres types de réactions, plus difficiles à contrôler, sont à attendre d'une partie du grand public, comme une réaction de défiance instinctive et de caractère passionnel, prenant ses racines au plus profond d'une culture ancestrale et en cela variable selon les régions et les pays. Là se situe le royaume préféré du faux bruit et de l'amalgame : les déchets peuvent exploser (Hiroshima), les déchets peuvent produire des retombées radioactives (Tchernobyl), la radioactivité est très dangereuse quel que soit son niveau, *etc.* De telles assertions ne peuvent être démenties que par une communication basée sur des idées extrêmement simples et compréhensibles par le plus grand nombre.

Les déchets nucléaires peuvent être l'occasion de manifester une opposition systématique à quelque chose qui est réputé imposé par l'Autorité centrale. La seule réponse tient dans la préparation des décisions sur le terrain par une concertation large et progressive passant obligatoirement par l'adhésion des pouvoirs locaux élus et des politiques, très attentifs par nature à l'opinion publique.

On en vient donc bien à l'idée que le processus de choix pour la gestion des déchets radioactifs ne peut être que progressif, appuyé à chaque étape sur une concertation poussée à tous les niveaux, placé en permanence sous la surveillance de Comités d'experts scientifiques *ad hoc*, chaque nouveau pas en avant n'étant décidé par le pouvoir politique qu'après une procédure d'examen dûment caractérisée.

2. Mission de l'ANDRA

Tel est bien le type de processus dans lequel la France s'est engagée en promulguant la loi du 30 décembre 1991.

Le législateur a défini les étapes au terme desquelles le Parlement devrait pouvoir, après 2006, faire son choix en pleine connaissance de cause au vu des résultats d'une recherche scientifique de qualité, contrôlée en permanence par une Commission nationale d'évaluation composée de scientifiques indépendants de haut niveau. Cette recherche doit concerner aussi bien la solution stockage souterrain, pour laquelle l'ANDRA est le maître d'œuvre, que l'entreposage et le conditionnement des déchets ainsi que leur transformation éventuelle en déchets moins nocifs et à vie moins longue par le retraitement et la transmutation, dont le CEA est responsable.

Dans le cadre strict de cette loi, l'ANDRA a été autorisée en janvier 1994 par le Gouvernement, qui avait suivi en cela les recommandations du médiateur Christian Bataille, à entreprendre une campagne d'exploration sur quatre zones

(Haute-Marne, Meuse, Vienne, Gard) situées dans des départements qui avaient au préalable clairement exprimé par la voix de leurs élus leur volonté d'accueillir un éventuel laboratoire souterrain.

Un laboratoire souterrain a pour objet d'aller reconnaître *in situ* (à une profondeur de 500 m ou davantage) une formation géologique en vue d'évaluer par de nombreuses expériences de nature physico-chimique l'aptitude de cette formation à abriter un éventuel stockage souterrain. La loi de 1991 prévoit en effet explicitement la réalisation de laboratoires souterrains comme un point de passage obligé pour qualifier un site avant le grand rendez-vous parlementaire de 2006.

Les travaux de prospection (géologie, géophysique, forages) effectués depuis la surface ont été progressivement concentrés sur des zones plus restreintes dans le Gard, la Vienne et la Haute-Marne/Meuse ; les deux derniers départements, en raison de leur similitude géologique, ne constituant en réalité qu'un seul site dans l'est du Bassin parisien. Les résultats obtenus sur les trois sites montrent que tous trois pourraient convenir pour abriter un laboratoire souterrain.

Depuis la date du congrès de la SFP (septembre 1995), l'ANDRA a rendu public le résultat de ses travaux et le Gouvernement l'a autorisée en mai 1996 à déposer trois demandes d'autorisation d'installation et d'exploitation de laboratoires souterrains, dont l'instruction devrait durer environ 18 mois (voir l'annexe à la fin de ce chapitre).

En mettant en œuvre pas à pas le processus de prise de décision instituée par la loi, en pratiquant une politique de communication largement ouverte et en prenant bien soin d'associer à chaque étape toutes les parties intéressées, l'ANDRA a le sentiment de respecter totalement les règles de la démocratie. Cette démarche est également conforme aux principes éthiques sur lesquels repose la société.

En effet, l'impératif catégorique "Ne fais pas à autrui ce que tu ne voudrais pas qu'on te fit" nous impose au cas d'espèce une solidarité intergénérationnelle qui s'applique à des générations futures tellement éloignées dans le temps que nous sommes incapables d'imaginer à quoi elles ressembleront. Néanmoins, nous n'avons pas le droit de transmettre nos nuisances et de léguer un héritage contestable à ces générations lointaines, pas plus que nous ne pouvons esquiver la question en ne faisant rien sous prétexte que les progrès scientifiques ultérieurs fourniront des solutions adéquates.

3. Recours au stockage souterrain

Au demeurant, quelques principes généraux valables pour tous les déchets s'appliquent à la gestion des déchets radioactifs. En premier lieu, le producteur de déchets est le payeur, c'est-à-dire essentiellement EDF, COGEMA et le CEA. En second lieu, les études concernant la transmutation prévues par la loi de décembre 1991 répondent au désir de réduire la nocivité et le volume du déchet ultime. Même en cas de succès de ces études menées activement en France par le CEA, on

ne pourra toutefois pas tout transformer et le recours au stockage souterrain a toutes chances de demeurer nécessaire ; en revanche, la nature des déchets à stocker sera peut-être modifiée.

Serait-il plus conforme à l'éthique de choisir l'option de ne rien faire et de garder les déchets en surface sur les sites de production ? En d'autres termes, on ne ferait pas confiance à la science d'aujourd'hui pour démontrer la fiabilité d'un éventuel stockage souterrain mais on ferait confiance à la science de demain pour trouver une solution miracle ! Est-ce là une attitude logique ?

On voit bien que faire aveuglément confiance à la science de demain représenterait un pari aussi incertain dans son issue que dans sa date de réalisation. Ne rien faire aujourd'hui, comme le souhaitent certains, reviendrait à la formule "après moi le déluge". Il est en effet impossible de raisonner au-delà de quelques siècles sur la continuité de l'ordre social et politique, et donc sur le devenir de déchets radioactifs à vie longue entreposés en surface : quel type de civilisation en assurerait de manière sûre la garde dans 10 000 ans ? En revanche, stocker ces déchets dans une formation géologique revient à les faire passer de l'échelle du temps présent à l'échelle des temps géologiques. Si leur confinement présente toute la sûreté requise, cette solution pourrait être alors la solution la plus "écologique", c'est-à-dire celle qui protège le mieux l'environnement futur.

Il reste donc à démontrer scientifiquement que le stockage souterrain en formation géologique profonde permet de confiner convenablement les radionucléides.

Il faut d'ailleurs distinguer d'une part les radionucléides dont l'activité par rayonnement γ ou β peut être très intense au début mais dont la période est relativement courte et qui auront pratiquement disparu en moins d'un millénaire, et d'autre part les radionucléides à vie longue, les transuraniens, dont l'activité est faible mais dont certains pourront être encore présents dans quelques centaines de milliers d'années, et dont la nocivité (rayonnement α) provient de leur possible ingestion par l'organisme humain.

Si pour les premiers un conditionnement solide et une mise à l'écart suffisamment soignée paraissent faire l'affaire, comment garantir en revanche pour les seconds un confinement sur des périodes de temps aussi longues ?

L'homme et la nature doivent combiner leurs efforts. La sûreté d'un stockage souterrain repose en effet sur l'utilisation de trois barrières :

- le colis de déchets lui-même, par exemple le verre dans lequel sont emprisonnés les déchets du retraitement les plus actifs ;
- la barrière ouvragée constituée par exemple par une épaisseur métrique de bentonite, argile présentant d'excellentes caractéristiques physico-chimiques de rétention ;
- enfin la barrière géologique, c'est-à-dire la formation géologique dans laquelle sera placé le stockage et dont le choix doit précisément être justifié par les expérimentations en laboratoire souterrain.

L'eau est le principal ennemi d'un stockage souterrain. En effet, l'eau, en lixiviant les colis, pourrait déplacer des radionucléides jusqu'à un exutoire où ils

pourraient alors être introduits dans la géosphère et par là dans la chaîne alimentaire conduisant à l'homme.

Le principe est donc simple : implanter un stockage dans une formation géologique imperméable dans laquelle l'eau ne circule pas. Dès lors, le seul phénomène à prendre en compte sera celui de la diffusion, beaucoup plus lent et d'effet beaucoup plus réduit.

Des formations imperméables existent dans la nature. Le meilleur exemple nous est donné par les couvertures argileuses des gisements de pétrole qui sont capables de retenir pendant des millions d'années des molécules aussi volatiles que les hydrocarbures. Il s'agit donc de rechercher les formations géologiques capables de remplir cette fonction.

4. Pérennité des formations géologiques

La formation géologique hôte du stockage devra être située à quelques centaines de mètres de profondeur afin, non seulement de rendre plus long le retour éventuel vers la géosphère mais aussi de mettre le stockage complètement à l'abri des perturbations pouvant survenir en surface : érosion, changements climatiques modifiant le régime des eaux, *etc.*

Reste enfin la question qui dérange le plus ceux qui ne sont pas habitués à raisonner en termes géologiques : comment être sûr que la configuration géologique existant aujourd'hui sera quasi identique dans quelques centaines de milliers d'années ? Des tremblements de terre, des failles ou des plissements ne viendront-ils pas modifier radicalement le schéma et détruire la sûreté du site ?

Pour répondre à cette interrogation légitime, il faut prendre en considération le moteur des mouvements tectoniques ainsi que l'échelle de temps pendant laquelle ils s'exercent :

- le moteur des mouvements tectoniques est maintenant bien connu. Il s'agit de la tectonique des plaques, qui met en œuvre des énergies considérables. Sauf en quelques endroits "privilégiés", telle que la fameuse faille de San Andrés en Californie, les mouvements relatifs des plaques (par exemple, la plaque Afrique contre la plaque Europe) sont de l'ordre de quelques centimètres par an, correspondant à la vitesse des mouvements de convection qui agitent le magma visqueux (le manteau) situé entre 100 km et 2900 km de profondeur. C'est le frottement de ce magma en très lent déplacement sur la base des plaques continentales qui fait se déplacer celles-ci. On conçoit aisément que des mécanismes d'une telle ampleur et d'une telle inertie ne sauraient se modifier brutalement. La constante de temps est de l'ordre du million d'années au moins. À cet égard, la France est dans une zone tectonique stable ;
- l'échelle de temps en géologie est de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle du temps humain : si 100 000 ans représentent l'épaisseur d'une feuille de papier, l'âge de la terre représente une pile de 5 m de haut.

Pour les géologues, 100 000 ans représentent donc un pas de temps très faible. Il n'en a pas toujours été ainsi puisque Cuvier évaluait encore à 4 000 ans l'âge de la terre ! Lord Kelvin en calculant les flux de chaleur n'avait pas hésité à aller jusqu'à 25 millions d'années et c'est Rutherford, après la découverte de la radioactivité, qui a commencé le premier à parler du milliard d'années pour arriver dans les années 1950 aux 4,6 milliards désormais admis.

Le géologue ne peut donc pas prévoir exactement ce qui se passera dans le million d'années à venir mais il peut prédire ce qui ne se passera pas : un bouleversement brutal des très lents mouvements dont la France est le siège. Il suffira d'implanter un stockage à l'écart des failles géologiques "actives", c'est-à-dire des failles jouant sous l'effet des champs de contrainte existants aujourd'hui. Au demeurant l'amplitude du jeu de telles failles actives est très limitée (de l'ordre du centimètre par siècle en moyenne sur de longues périodes). Enfin, il est bon de rappeler un phénomène physique bien connu des sismologues : un tremblement de terre est beaucoup moins ressenti en profondeur qu'en surface.

Comme on le voit, grandes sont les raisons d'espérer démontrer, à l'aide de laboratoires souterrains, l'aptitude de certaines formations géologiques à abriter un stockage souterrain de déchets radioactifs. Mais cela ne pourra intervenir qu'au terme d'un long processus scientifique et informatif. Ce processus devra lui-même être, conformément à la loi du 30 décembre 1991, progressif et totalement ouvert. Telle est la mission assignée à l'ANDRA.

Annexe : rapport de l'ANDRA

L'ANDRA a diffusé un résumé à l'occasion du dépôt des demandes d'autorisation et d'exploitation des laboratoires souterrains

Les déchets radioactifs

La production de déchets radioactifs conditionnés s'élève à environ 20 000 m³/an pour l'ensemble des déchets, dont 10 % de déchets de haute activité ou à vie longue. Les modes de gestion retenus pour ces différents types de déchets sont les suivants :

- les déchets à vie courte et de faible et moyenne activité (90 % de l'ensemble) contiennent des éléments radioactifs de période inférieure ou égale à 30 ans. Ils sont stockés en surface, au Centre de stockage de la Manche de 1969 à 1994, puis au Centre de stockage de l'Aube à partir de 1992. Après leur période d'exploitation industrielle, ces centres seront surveillés pendant 300 ans, le temps nécessaire pour que la radioactivité contenue revienne à un niveau proche de la radioactivité naturelle. Le Centre de stockage de l'Aube est un outil industriel qui permet de faire face aux besoins français au moins pendant les 50 prochaines années ;

- les autres déchets, les déchets à vie longue ou de haute activité, sont entreposés sur les sites de production (usines COGEMA de La Hague et de Marcoule, centres du CEA). Ces déchets contiennent, en quantité significative, des éléments radioactifs dont la période peut s'étendre de quelques milliers à quelques millions d'années. C'est la recherche de solutions sûres à très long terme qui est l'objectif fixé par la loi du 30 décembre 1991.

La loi du 30 décembre 1991

La loi du 30 décembre 1991 a défini trois voies complémentaires de recherche qui seront conduites en parallèle :

- la réduction de la nocivité à long terme de ces déchets ;
- le conditionnement des déchets pour un entreposage de longue durée en surface ;
- l'étude des formations géologiques profondes, notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains en vue d'un éventuel stockage en profondeur.

La loi précise que plusieurs laboratoires souterrains devront être installés.

La pertinence (technique et calendaire) et la qualité des travaux sur les trois voies de recherche font l'objet d'une évaluation par la Commission nationale d'évaluation qui a rendu son premier rapport en juillet 1995.

Une évaluation finale est prévue pour 2006, moment où le Parlement aura à se prononcer sur un choix de mode de gestion à long terme de ces déchets.

La mission de Christian Bataille

Conformément à la loi, une concertation préalable a été réalisée par le moyen d'une mission de médiation confiée à C. Bataille en août 1993 par le Premier Ministre. Elle avait pour objet de susciter des candidatures sur la base des garanties apportées par la loi et de l'accompagnement économique prévu pour les sites d'accueil des laboratoires souterrains.

Après étude d'une trentaine de candidatures, le médiateur a proposé au Gouvernement, en décembre 1993, de retenir quatre départements : le Gard (argile), la Haute-Marne (argile), la Meuse (argile) et la Vienne (granite). L'ANDRA a été autorisée, en janvier 1994, à entamer les travaux de reconnaissance afin de s'assurer du caractère favorable des formations géologiques pour la réalisation de laboratoires souterrains.

L'évaluation de chacun des sites se fait par référence à un texte réglementaire (RFS III.2.f) émis par la Direction de la sûreté des installations nucléaires. Cette évaluation doit examiner les questions relatives à la stabilité du site (géodynamique externe, sismicité et mouvements néotectoniques), à l'hydrogéologie, aux propriétés mécaniques, thermiques et géochimiques des roches d'accueil.

Le calendrier des études

La loi du 30 décembre 1991 fixe un terme aux études, ce qui conduit au calendrier d'ensemble suivant :

- 1994–1996 : travaux préliminaires de reconnaissance.
- 1996–1998 : procédures réglementaires d'autorisation des laboratoires souterrains de recherche (instruction technique par la DSIN et le ministère de la Recherche, enquête publique et consultation des collectivités territoriales).
- 1998–2001 : construction des laboratoires, début des expérimentations.
- 2001–2006 : expérimentations en laboratoires souterrains.

Ce calendrier est, comme l'a souligné la Commission nationale d'évaluation dans son rapport, particulièrement tendu.

Les études sur le stockage en formation géologique profonde

L'objectif du stockage en formation géologique profonde est d'assurer le confinement de la radioactivité par un ensemble de dispositifs s'opposant au transfert de la radioactivité dans l'environnement. Le concept de confinement repose sur l'interposition de barrières entre le déchet et la biosphère dans le milieu géologique.

L'ANDRA devra donc remettre, pour l'échéance 2006, les résultats de ses études qui détailleront :

- le concept et les moyens possibles de construction et d'exploitation d'un stockage ;
- l'évaluation des performances au cours du temps des colis de déchets, des barrières artificielles disposées entre les déchets et le milieu géologique, de la barrière géologique ;
- l'évaluation de la réversibilité, les modalités et les contraintes dépendant en particulier du site.

Les données d'entrée des études comprennent :

- les inventaires (existants et prévisionnels) des déchets susceptibles de faire l'objet d'un stockage profond ;
- les sites issus de la médiation de C. Bataille qui ont fait l'objet d'une caractérisation préliminaire préalable au dépôt des dossiers.

Les travaux effectués pendant la période 1994-1996

Les travaux de reconnaissance ont fait appel aux techniques usuelles d'études des formations géologiques :

- cartographie géologique et hydrogéologique ;
- méthodes géophysiques (gravimétrie, magnétométrie, sismique-réflexion) ;
- recueil d'échantillons et tests hydrogéologiques en forage profond.

Ils ont permis d'identifier pour chacune des zones issues de la médiation un site d'implantation potentiel de laboratoire souterrain de recherche et de recueillir les données nécessaires à la constitution des dossiers réglementaires.

Aucun caractère rédhibitoire n'a été mis en évidence sur aucun des trois sites étudiés durant des deux années de travaux.

Pour le site "Est" résultant de la fusion des sites de la Haute-Marne et de la Meuse, l'extrême simplicité de la géologie est une donnée en soi intéressante. Cela limite les aléas géologiques qui pourraient être rencontrés ultérieurement. Ce site apparaît comme particulièrement favorable.

Les sites de la Vienne et du Gard nécessitent, chacun pour des raisons différentes, des approches et des investigations plus complexes, mais au stade actuel, un saut réel de connaissance dans les trois dimensions spatiales du site ne sera possible qu'en laboratoire souterrain :

- en Vienne, la zone présentant les caractéristiques géologiques et hydrodynamiques a été repérée et a fait l'objet d'études géologiques et des premières mesures hydrogéologiques. Cette zone nécessite toutefois une approche sophistiquée pour permettre une description fine des possibilités de circulation d'eau et leur modélisation ;
- dans le Gard, l'objectif initial de l'argile du Pliocène a été rapidement abandonné. Dans le même temps, une couche argileuse a été découverte dans le secteur de Marcoule ; celle-ci de forte épaisseur (200 à 400 m) présente des caractéristiques géologiques et géométriques favorables.

Conclusion

La loi du 30 décembre 1991 a engagé un processus très progressif qui doit permettre, en 2006, de proposer au Parlement les modalités de gestion les plus adaptées pour les déchets radioactifs à vie longue.

Dans ce cadre, l'étude des formations géologiques profondes doit apporter sa contribution avec les meilleures chances de succès.

Les caractéristiques favorables acquises au cours de la reconnaissance et l'absence de caractères rédhibitoires apparents, permettent d'envisager le dépôt rapide des dossiers de demande d'autorisation d'installation et d'exploitation des laboratoires.

Le site de l'Est apparaît particulièrement favorable du fait du très bon niveau de connaissance disponible.

Les deux autres sites (la Vienne et le Gard) ne montrent pas de caractéristiques permettant, sur une base scientifique objective, de choisir l'un plutôt que l'autre.

Par ailleurs, la communauté internationale s'intéresse aux mêmes milieux granitiques et argileux, ce qui conforte la démarche de l'ANDRA de poursuivre l'étude de ces milieux en laboratoires souterrains en bénéficiant de l'expérience acquise à l'étranger.

Aussi, il apparaît souhaitable d'engager les procédures réglementaires sur chacun des sites identifiés et, si ces procédures aboutissent, d'être en mesure d'engager, le cas échéant, la construction de trois laboratoires.

9 Conditionnement des déchets nucléaires

Denis Alexandre^(★)

1. Que sont les déchets radioactifs ?

Comme toutes les activités humaines, l'industrie nucléaire produit des déchets. L'une des caractéristiques majeure de ces derniers est leur radioactivité. La radioactivité décroît dans le temps, mais si la période radioactive de certains éléments est relativement courte (de quelques jours à quelques années), pour quelques autres éléments cette même période s'exprime en dizaines ou même en centaines de milliers d'années. La gestion des déchets nucléaires prend en compte cet aspect singulier⁽¹⁾.

L'Agence internationale de l'énergie Atomique de Vienne propose que soit considérée comme déchet : "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".

(★) Commissariat à l'énergie atomique, CEA/Cadarache/DCC/DESD, 13108 Saint-Paul-Lez-Durance Cedex.

(1) Notons que pour la majorité des déchets toxiques industriels, la nocivité ne décroît pas dans le temps et que le risque qui lui est attaché présente un caractère "éternel".

En langage profane, ceci signifie que sont considérés comme déchets tous les matériaux dont la radioactivité dépasse les limites qui en autorisent soit le recyclage sans contraintes, soit le rejet dans l'environnement.

Les déchets radioactifs sont produits dans les laboratoires d'études du CEA, par les organismes qui fabriquent ou utilisent des radioéléments : industries, hôpitaux, universités, mais la majeure partie apparaît aux différentes étapes de ce que l'on appelle le cycle du combustible : extraction de l'uranium à partir de minerais, conversion de l'uranium en hexafluorure et enrichissement, fabrication des combustibles destinés à alimenter les centrales de puissance EDF, exploitation des centrales, retraitement des combustibles usés (voir figure 1, tableaux I et II).

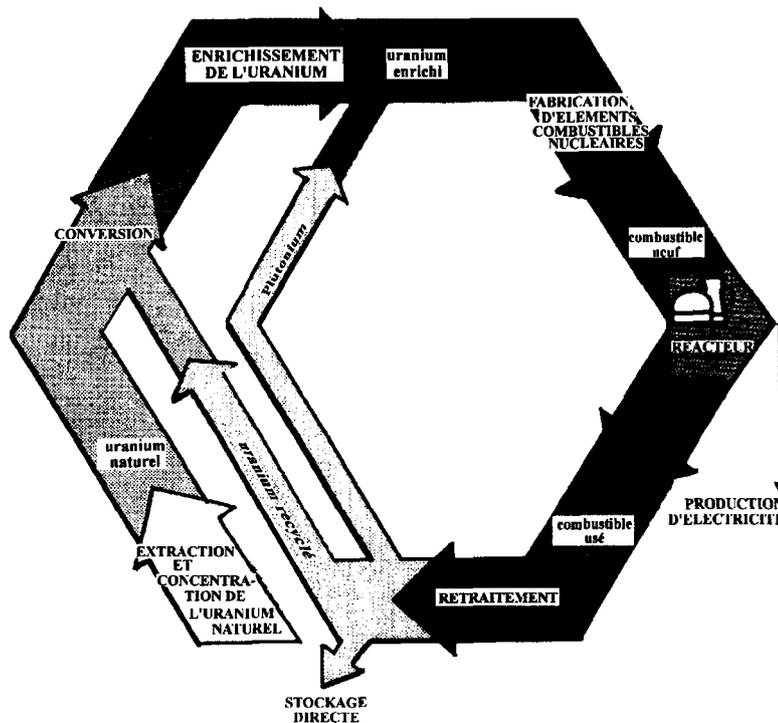


Figure 1 : Cycle du combustible nucléaire.

Enfin, le démantèlement des installations nucléaires qui atteignent la fin de leur vie opérationnelle, est ou sera également générateur de déchets.

Très tôt, les acteurs du nucléaire en France, ont attaché une importance particulière à la gestion des déchets radioactifs qui constituait à l'orée de l'aventure nucléaire un chapitre particulier et sans références. Ceci explique que la stratégie et les méthodes aujourd'hui appliquées, ont été élaborées au fil des ans, en tenant compte à la fois de l'expérience acquise et du souci évident de préserver la sûreté des hommes et de l'environnement.

Tableau I : Volumes de déchets conditionnés produits au cours des divers étapes du cycle du combustible (m³/GWé).

	Déchets A	Déchets B	Déchets C
Conversion Enrichissement	25		
Fabrication du combustible	15		
Exploitation du réacteur	350		
Retraitement	120	90	4
Total	510	90	4

Tableau II : Composition des combustible irradié et flux.

1 tonne d'uranium irradié en réacteur REP	
⇒	995 kg d'U
⇒	9,7 kg de Pu
⇒	0,8 kg d'actinides mineurs
⇒	34 kg de produits de fission (extrême diversité)
Flux à considérer	
⇒	déchargement REP : 1 200 t/an
⇒	capacité de traitement installée : 2 × 800 t/an

On distingue en France trois catégories de déchets radioactifs définies par le niveau de leur activité et par la nature des radionucléides contenus.

Les déchets de *catégorie A* sont des déchets de faible et de moyenne activité, ne contenant que des radionucléides dont la période est inférieure ou égale à 30 ans et seulement des traces d'émetteurs à vie longue. On estime qu'après une durée égale à 10 périodes de décroissance, la radioactivité de ces déchets a atteint un niveau équivalent à celui de la radioactivité naturelle. Ils sont stockés en sites de surface, ceux-ci pouvant alors être banalisés après une période de surveillance de 300 ans.

Les déchets de *catégorie B* sont des déchets de moyenne activité, contenant des radionucléides à vie longue dont la période de décroissance est supérieure à 30 ans. Ceux-ci sont essentiellement constitués d'émetteurs α . Ces déchets sont donc parfois appelés "déchets α ". Ils ne dégagent pas, ou seulement très peu de chaleur.

Les déchets de *catégorie C* encore appelés déchets de haute activité, sont principalement constitués par les solutions de produits de fission vitrifiées, produites lors du retraitement des combustibles usés. Ces déchets sont en outre caractérisés par un fort dégagement de chaleur au moment de leur fabrication.

Notons que les combustibles usés, qui ne seraient pas retraités, et qui seraient alors considérés comme déchets, entreraient dans cette dernière catégorie.

Les déchets des catégories B et C, qui pour l'instant sont entreposés sur les sites de production, sont destinés à être envoyés en stockage géologique, si cette solution est adoptée par le gouvernement à l'issue du calendrier défini par la loi sur les déchets radioactifs du 30 décembre 1991.

Les déchets de catégorie A qui sont envoyés au Centre de Stockage de l'Aube sont produits à raison d'environ 20 000 m³ par an.

Les quantités prévues pour les deux autres catégories, à l'horizon 2030 sont :

- déchets B : de 80 à 90 000 m³ ;
- déchets C : environ 4 500 m³.

2. Objectifs d'un stockage de déchets radioactifs

Il s'agit de placer les déchets dans une situation telle qu'ils soient à l'abri des intrusions humaines, et à l'abri de l'eau qui constitue le principal vecteur de dissémination des radionucléides jusqu'à la biosphère. Et ceci, de telle sorte que l'émergence des radionucléides dans la biosphère reste dans des limites acceptables, en toute circonstance raisonnablement prévisible et pendant toute la durée du risque. Les limites acceptables sont définies en fonction des normes de radioprotection actuellement en vigueur et des modes de vie actuels (voir chapitre 10). La durée du risque est définie par la période radioactive des éléments considérés.

La sûreté d'un stockage, qu'il s'agisse d'ailleurs d'un stockage de surface ou d'un stockage géologique, repose sur un concept multibarrières. Chacune des barrières destinées à empêcher ou à limiter la migration des radionucléides, à partir du déchet, vers la biosphère a vis-à-vis des autres barrières un rôle complémentaire et redondant, impliquant qu'en cas de défaillance de l'un des éléments du système les autres puissent le relayer.

La nature et le rôle assignés à chaque barrière dépendent de la nature du déchet, du type de formation géologique considérée et du concept de stockage développé.

Les principaux éléments d'un système multibarrières sont constitués par :

- le colis de déchets qui est composé du déchet proprement dit, stabilisé, enrobé ou bloqué par une matrice de conditionnement et placé dans un conteneur. Le colis qui est l'objet élémentaire placé dans le stockage, constitue la première barrière de confinement ;
- la ou les barrières ouvragées. Ce sont les matériaux disposés entre le colis et la formation géologique. On peut distinguer la barrière ouvragée proprement dite,

placée au contact direct du colis, des éventuels ouvrages de stockage destinés à accueillir un ensemble de colis ;

- la formation géologique elle-même.

On distinguera donc dans les évaluations de sûreté, les éléments du *champ proche*, constitués du colis, des barrières ouvragées et de la fraction proximale de la formation hôte, perturbée par la construction du stockage, des éléments du *champ lointain* constitué par les formations géologiques existantes entre le stockage et l'exutoire dans la biosphère.

3. Traitement des déchets

Pour constituer un colis, satisfaisant aux différentes spécifications requises pour un dépôt en stockage, les déchets bruts, tels que produits au niveau des différentes installations industrielles ou de recherche (déchets primaires), doivent être traités, puis conditionnés.

Les déchets primaires sont identifiés par :

- leur état physique, solide, liquide ou gazeux ;
- la nature des radionucléides contenus, émetteurs α , β et γ ;
- le niveau de leur activité.

Les opérations de tri à la source sont essentielles pour la gestion rationnelle des déchets.

Les objectifs des traitements appliqués aux déchets primaires vont être de :

- *concentrer* la radioactivité sous un volume minimum permettant de recycler ou de rejeter dans l'environnement le maximum *d'effluents* ou de matériaux décontaminés. Les déchets secondaires résultant de cette concentration seront ensuite conditionnés,
- *stabiliser* les déchets, c'est-à-dire les mettre sous une forme qui exclue ou limite toute évolution ultérieure (par exemple l'incinération ou la minéralisation des déchets organiques) ou bien qui élimine certains caractères agressifs comme la neutralisation des acides), les rendant ainsi compatibles avec les opérations ultérieures de conditionnement.

Les traitements qui sont appliqués aux déchets ressortent des techniques classiques du génie chimique. Sans entrer dans la description détaillée des procédés mis en œuvre, nous nous contenterons de résumer dans le tableau III, les principaux traitements appliqués, par catégories de déchets primaires, et les déchets secondaires qui en résultent.

Tableau III : Le traitement des déchets primaires.

Déchets primaires	Traitement	Déchets secondaires
Déchets gazeux	Filtration	Filtres
	Lavage	Solutions
	Adsorption	Adsorbants saturés
	Distillation cryogénique	Liquides concentrés sous pression
Déchets liquides	Évaporation	Concentrats
	Insolubilisation	Boues
	Échange d'ions	Résines usées
	Techniques séparatives à membranes	Concentrats
	Séparation de phase	Boues
	Extraction par solvants	Solvants usés
	Incineration des liquides organiques	Cendres
Déchets solides	Décontamination	
	Procédés :	
	Mécaniques	
	Chimiques	Solutions
	Électrochimiques	Filtres
	Physiques	Déchets technologiques
	Réduction de volume	
	Procédés :	
	broyage-déchetage	Gaz-poussières
	compactage-supercompactage	Galettes compactées
	fusion	Lingots
	extrusion	Boudins extrudés
	incinération	Cendres

4. Conditionnement des déchets

Les objectifs des opérations de conditionnement sont de mettre le déchet sous une forme solide, stable, monolithique (réduction de la surface accessible et élimination des vides à l'intérieur des colis) et confinante, constituant un colis qui satisfasse aux normes de manutention, de transport, d'entreposage intermédiaire et de stockage.

Le conditionnement comprend généralement l'immobilisation par l'enrobage ou le blocage des déchets dans une matrice et la mise en conteneur. Les principales qualités requises pour un colis seront donc des propriétés mécaniques et des propriétés confinantes.

Le rôle du *conteneur* dans l'achèvement des propriétés mécaniques est évident. C'est le conteneur qui définit la géométrie du colis, qui assure les moyens de préhension et de manutention et qui met le déchet conditionné à l'abri d'un certain nombre d'agressions externes potentielles : choc, écrasement, feu, immersion accidentelle, *etc.*

L'intervention des conteneurs dans le confinement des radionucléides peut être plus ou moins importante. Les fûts pétroliers utilisés pour le conteneurage de nombreux déchets de faible ou de moyenne activité ne joueront dans ce domaine qu'un rôle minime et très limité dans le temps. Les évaluations de sûreté faites au niveau du stockage de surface n'en tiennent aucun compte en tant que barrière de confinement, et font l'hypothèse très pessimiste que tous les conteneurs sont dégradés à la fermeture des ouvrages.

Les coques en béton, ou certains conteneurs métalliques épais tels ceux envisagés pour le conditionnement des combustibles usés non retraités par exemple, sont appelés à jouer un rôle majeur dans le confinement des radionucléides en stockage et ce pour une durée significative.

Il est par contre évident que l'intégrité des conteneurs doit pouvoir être garantie pendant toute la durée des entreposages, car c'est à cette condition qu'est soumise la possibilité de reprise des colis à l'issue de cette phase intermédiaire.

Il est même envisageable d'utiliser, pour certains déchets, des conteneurs dits de "haute intégrité", actuellement en cours de développement en France, présentant des propriétés de résistance mécanique et de confinement telles, qu'ils puissent assurer à eux seuls, et à l'exclusion de toute utilisation de matrice, le conditionnement recherché.

L'immobilisation des déchets requiert la mise en œuvre de matériaux qui fixent les déchets dans un bloc compact, le plus souvent directement dans le conteneur.

L'enrobage est appliqué aux déchets homogènes : boues d'insolubilisation, échangeurs d'ions, concentrats d'évaporateurs ; il consiste à envelopper chaque particule de déchet dans la matrice de conditionnement.

Le *blocage* s'applique aux déchets hétérogènes, déchets technologiques issus de l'exploitation des installations nucléaires ; il consiste à injecter une matrice dans les vides existants entre les éléments des déchets de façon à constituer un monolithe.

Contrairement à l'enrobage, le blocage ne constitue par forcément un conditionnement confinant. Les déchets hétérogènes seront le plus souvent conditionnés dans un conteneur confinant.

Les matériaux mis en œuvre pour assurer l'immobilisation répondent aux exigences suivantes :

- ils doivent être compatibles avec les composants radioactifs du déchet : type de radionucléide, période, activités spécifiques, niveau d'irradiation ;
- ils doivent être adaptés aux caractéristiques physiques et chimiques des déchets initiaux : teneur en eau, nature et charge des sels minéraux contenus, aptitude à la reprise d'eau, dégagement calorifique ;

- ils doivent être adaptés aux conditions du stockage définitif envisagé : conditions climatiques, risques de lixiviation, durée du confinement, paramètres thermiques ;
- ils doivent pouvoir être soumis à des expérimentations susceptibles de caractériser leur comportement pendant la durée du stockage ;
- leur mise en œuvre doit être aisée, ne pas augmenter de façon excessive le volume du déchet. Leur coût doit être raisonnable.

En résumé, les principaux critères de sélection d'une matrice d'immobilisation, sont donc :

- compatibilité avec le déchet ;
- homogénéité ;
- faible solubilité dans l'eau ;
- imperméabilité ;
- résistance mécanique ;
- résistance aux agents d'agression externe chimiques et biologiques ;
- résistance à la température et aux rayonnements ;
- stabilité à long terme.

Les principales matrices utilisées sont : le ciment, le bitume, les résines thermodurcissables pour les déchets de catégorie A et B, les verres pour des déchets de catégorie C.

4.1. Ciment

Sa mise en œuvre constitue la technique de conditionnement la plus ancienne et la plus répandue pour les déchets des centrales et pour ceux des centres du CEA. Les ciments réunissent en effet de nombreux facteurs favorables : simplicité de mise en œuvre, bonne connaissance du matériau, résistance mécanique et compatibilité avec l'eau.

On appelle "ciment" la catégorie des liants hydrauliques composée de silicates et d'aluminates de calcium (voir tableau IV). Le produit le plus couramment utilisé est le ciment de Portland, retenu à cause de ses propriétés mécaniques. Mais on utilise également des ciments à prise plus lente : ciments de laitier, clinkers, ciments pouzzolaniques, dont la prise, moins exothermique, limite les risques de fissuration.

Le ciment est normalement utilisé pour l'immobilisation de déchets tels que : concentrats d'évaporateurs, boues de traitements chimiques, déchets solides divers, coques et embouts du dégainage des combustibles irradiés.

Tableau IV : Composition (en pour-cent) d'un ciment de Portland et d'un ciment alumineux.

Composant	Portland	Alumineux
CaO	64	37
SiO ₂	21	9,6
Al ₂ O ₃	6,5	41
Fe ₂ O ₃	2,5	4,9
FeO	–	5,6
MgO	2,5	1,0
SO ₃	2,1	0,2

Des additifs sont parfois utilisés pour améliorer les propriétés mécaniques et de rétention des ciments :

- baryte (oxyde de barium) et hématite (oxyde de fer) pour renforcer l'effet de protection biologique ;
- silicate de sodium pour l'immobilisation de solutions renfermant de l'acide borique ;
- zéolithes, vermiculites, argiles pour la rétention de cations alcalins tels que le césium ;
- composés organiques pour accroître la fluidité ou l'imperméabilité ;
- vermiculites, diatomées ou adsorbants pour la résorption des excès d'eau ;
- bactéricides pour éviter le développement de micro-organismes.

Le conditionnement dans le ciment est généralement pratiqué dans des installations fixes sur le lieu ou à proximité du lieu de production des déchets. Il est réalisé :

- soit par malaxage en conteneur : le ciment, le déchet et les additifs sont alimentés séparément dans le conteneur qui est utilisé pour le transport et pour le stockage. Les composants sont ensuite malaxés de façon à obtenir un mélange homogène qui est laissé au repos jusqu'à la prise. Le conteneur est alors couvert, scellé, contrôlé et éventuellement décontaminé (contamination par des éclaboussures de matières radioactives) avant d'être transporté jusqu'à l'entreposage. Les conteneurs remplis par gravité peuvent être vibrés ;
- soit par procédés continus. Ceux-ci sont en principe appliqués à des déchets initialement fluides. Ciment et déchets sont dosés séparément et introduits dans un malaxeur. Le mélange obtenu est ensuite déversé dans le conteneur de stockage. Le niveau de remplissage est détecté par sondes de contact ou par ultrasons. Après remplissage, le conteneur est scellé, décontaminé et transporté. Ces opérations peuvent être effectuées automatiquement à distance.

4.2. Bitume

Les bitumes sont constitués par les fractions lourdes de la distillation des pétroles. Ce sont des composés qui existent à l'état naturel et qui sont connus depuis la plus haute antiquité. Leur composition chimique est mal connue. On identifie en leur sein deux familles génériques d'hydrocarbures qui se distinguent par leur solubilité dans différents solvants : les "asphaltènes" de poids moléculaire élevé (> 25 000 g/mol) et les "maltènes" plus légers, solubles dans les alcanes.

Ils contiennent environ : 80 % de carbone, 10 % d'hydrogène, 5 % de soufre, de l'azote, de l'oxygène et des oligo-éléments.

Industriellement on distingue les bitumes de distillation directe des bitumes soufflés qui sont oxydés à l'air en cours de distillation et qui sont généralement moins fluides.

Les bitumes sont caractérisés par certaines de leurs propriétés physiques : température de ramollissement, coefficient de pénétration, point éclair...

Les avantages du bitume sont :

- excellente adhésivité à de multiples supports ;
- solubilité dans l'eau négligeable et imperméabilité ;
- plasticité, élasticité, résistance aux chocs ;
- tenue à l'irradiation satisfaisante ;
- inertie chimique et bonne tenue biologique ;
- matière première abondante et coûts modérés.

Les bitumes sont utilisés pour le conditionnement de déchets homogènes : boues de traitements chimiques, concentrats d'évaporateurs.

L'enrobage dans le bitume est mis en œuvre dans une extrudeuse de type Werner. Les boues liquides sont introduites dans l'appareil qui est chauffé, simultanément avec du bitume fondu. L'eau est évaporée et après malaxage, l'enrobé est déversé dans des conteneurs constitués en général de fûts pétroliers d'une capacité utile de 200 l.

Il est vrai que COGEMA, à l'usine de La Hague, a récemment pris la décision d'arrêter la production de déchets bitumés, non pas à cause d'une mauvaise qualité de la matrice, mais parce que le traitement d'insolubilisation des déchets liquides va être remplacé par une évaporation. Les concentrats résultants seront alors joints aux solutions de produits de fission pour être vitrifiés.

Il existe actuellement environ 60 000 colis de déchets bitumés déjà fabriqués qui sont destinés au stockage. Le bitumage reste par ailleurs le procédé prévu en solution nominale, pour le conditionnement des déchets produits lors du démantèlement de l'usine UPI à Marcoule (environ 40 000 fûts supplémentaires).

4.3. Résines thermodurcissables

La mise en œuvre de polymères organiques est surtout appliquée au conditionnement de résines échangeuses d'ions.

Lors de la polymérisation, le composé forme un réseau qui enferme dans ses mailles les particules de déchet, réalisant alors un enrobé.

Les avantages de ce procédé sont :

- bonne compatibilité du matériau avec le déchet ;
- faible solubilité dans l'eau ;
- imperméabilité ;
- bonne tenue aux rayonnements ;
- bonne tenue aux agents biologiques.

Le procédé peut être mis en œuvre soit directement dans le conteneur de stockage, soit par l'intermédiaire d'une cuve de malaxage. On ajoute dans le dispositif, le déchet, le monomère et son catalyseur de polymérisation. Le mélange est laissé reposer pendant le temps de la "prise" puis le conteneur est fermé, scellé et évacué.

Trois type de matière premières sont utilisées :

- les polyesters, copolymères à base de polyesters et de styrène dont la polymérisation est assurée par un peroxyde organique (catalyseur) et par un sel métallique (activateur) : procédé Dow Chemical ;
- le polystyrène : procédé STEAG ;
- les résines Époxy composés glucidiques obtenus par greffage de fonctions époxy sur phénol : procédé CEA-TA.

4.4. Verres

La vitrification consiste à transformer les solutions très radioactives en un verre minéral de type borosilicaté ou aluminoborosilicaté. Ce traitement effectue la conversion des cations radioactifs ou non, contenus dans les solutions (en général sous forme de nitrates), en oxydes faisant partie intégrante du réseau vitreux.

Dans les compositions utilisées, les oxydes dits formateurs de réseau sont la silice et l'anhydride borique, volontairement ajoutés ; les modificateurs de réseau sont constitués principalement par les oxydes des métaux alcalins présents dans les solutions ainsi que ceux ajoutés également au cours du traitement.

La silice, formateur de réseau principal, exerce un effet favorable sur la résistance chimique mais élève le point de fusion. L'anhydride borique est aussi un formateur de réseau, mais ce réseau est plus lâche, ce qui permet d'y inclure plus de modificateurs mais par contre la résistance chimique s'en trouve altérée. Le bore est également un agent fondant.

Les oxydes alcalins exercent un pouvoir fondant. Leur présence permet de diminuer la teneur en bore. Les oxydes alcalino-terreux ont, à un degré moindre, la même propriété. L'alumine élève le point de fusion et la viscosité des verres mais augmente la résistance chimique. Lorsque sa teneur est relativement importante (au-delà de 15 % en poids), la coordinence de l'aluminium dans le verre change et le produit devient un aluminoborosilicate (cas de verres français pour le réacteur de type MTR pour *Medium Temperature Reactor*). Le tableau V indique quelques exemples de compositions.

Tableau V : Compositions de quelques verres nucléaires français issus du retraitement des combustibles irradiés dans les différentes filières.

	Graphite-gaz		MTR (combustible U-Al)	Eau légère R ₇ T ₇
	Défense	Mélange Défense + EDF		
SiO ₂	38,1	38,4	37,0	45,2
Na ₂ O	17,8	17,1	19,4	9,8
B ₂ O ₃	16,4	17,3	15,4	13,9
Al ₂ O ₃	12,3	11,0	23,2	4,9
CaO	–	–	–	4,0
Fe ₂ O ₃	4,2	3,2	1,7	2,9
MgO	4,1	5,1	–	–
NiO + C ₂ O ₃	1,0	0,8	0,2	0,9
F	2,0	1,5	1,8	–
Li ₂ O	–	–	–	2,0
ZnO	–	–	–	2,5
P ₂ O ₅	–	–	–	0,3
Oxydes de PF et d'actinides	4,0	5,6	1,3	11,9
ZrO ₂ (hors PF)	–	–	–	1,0
Particules métalliques	–	–	–	0,7

La transformation de la solution en verre passe par trois phases :

- l'évaporation qui élimine l'eau ;
- la calcination (vers 500 °C) qui décompose une partie des sels et en transforme les cations en oxydes ou en nitrates acides ;
- la vitrification qui complète la décomposition des sels et au cours de laquelle les oxydes réagissent entre eux pour former le verre à des températures de l'ordre de 1 000 à 1 200 °C.

La France a développé deux procédés, l'un discontinu, l'autre continu.

Le premier, qui a été exploité au stade du pilote industriel à Marcoule de 1969 à 1973, puis en 1979 et 1980 est dit "technique de vitrification en pot". Il consiste à remplir un pot métallique par une boue constituée par la solution à traiter et les matières premières finement broyées. Pendant l'alimentation, le pot est chauffé modérément. À la fin du remplissage, le chauffage est augmenté et la température

nécessaire à la vitrification maintenue un certain temps. Ainsi les opérations de séchage, calcination, vitrification sont réalisées dans le même équipement. Les gaz sont extraits à la partie supérieure du pot et traités.

Le second procédé est mis en œuvre à Marcoule dans l'atelier AVM associé à l'usine UPI et fonctionne depuis 1978, ainsi qu'à La Hague dans les ateliers R, en opération depuis juin 1989 et T, démarré en 1991.

Ce procédé est basé sur la séparation des étapes évaporation-calcination d'une part et vitrification d'autre part (voir figure 2). La solution à traiter est introduite en continu dans un calcinateur métallique tournant et chauffée par une résistance. Le calcinat est transféré par gravité dans un four de fusion alimenté par ailleurs en matières premières sous forme d'une "fritte" (il s'agit d'un verre primaire comportant les adjuvants nécessaires qui est introduit en petites lamelles). Le four de vitrification est constitué d'un récipient métallique à section circulaire (Marcoule) ou ovoïde (La Hague) chauffé par induction à moyenne fréquence. Ce récipient, centré dans un inducteur cimenté, possède à sa partie inférieure une

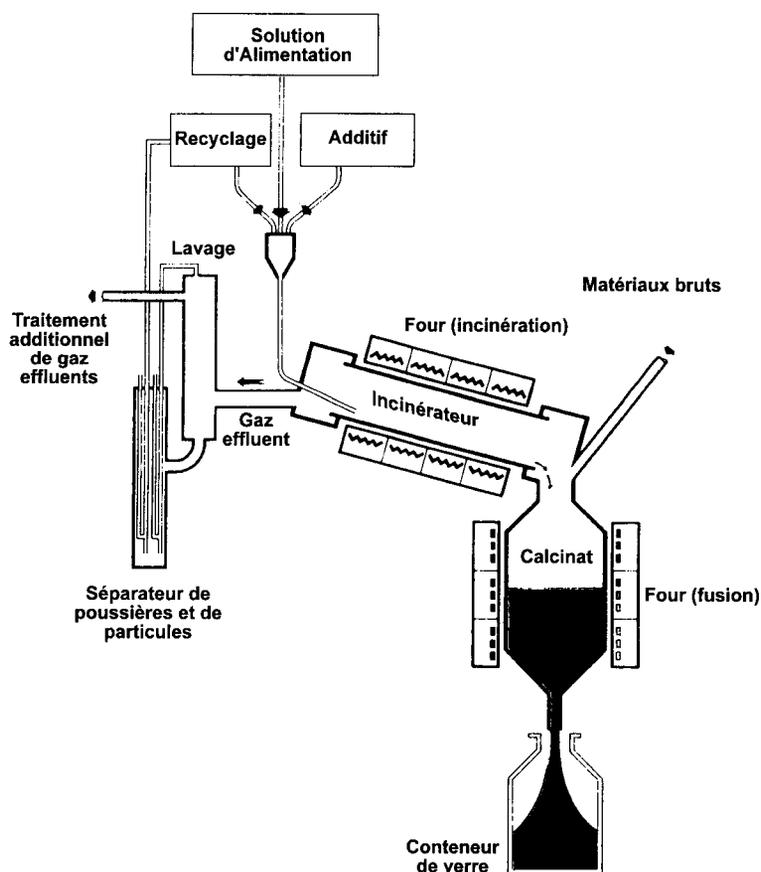


Figure 2 : Schéma de principe d'une installation de vitrification.

vanne thermique. Cette vanne est ouverte toutes les huit heures pour évacuer le verre en fusion. Le verre est coulé dans un conteneur métallique sur lequel, après remplissage, un couvercle est posé et soudé (voir figure 3).

Les gaz issus du four et du calcinateur sont évacués à contre-courant à travers le calcinateur et traités.

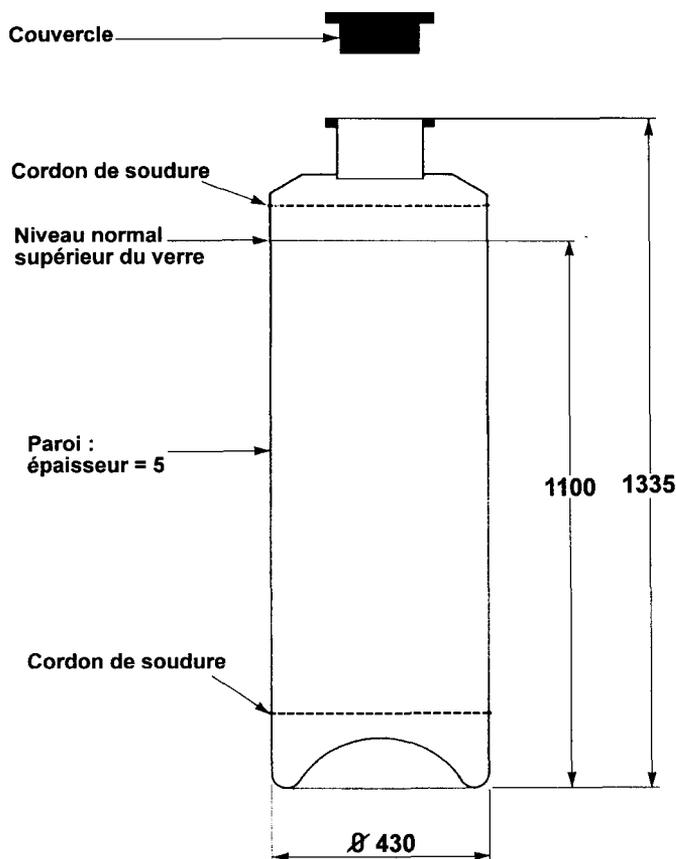


Figure 3 : Conteneur de verre R₇T₇.

5. Caractérisation des déchets

Pour être acceptés sur un site de stockage, les colis de déchets doivent satisfaire à un certain nombre de spécifications. Celles-ci sont édictées par l'ANDRA qui est en France l'organisme en charge de la gestion finale des déchets radioactifs et qui en particulier construit et exploite les centres de stockage. Ces spécifications sont

elles-mêmes établies à partir des règles fondamentales de sûreté (RFS) émises par la Direction de la sûreté des installations nucléaires. Elles tiennent compte à la fois des objectifs de sûreté du stockage, des caractéristiques du stockage et de la nature du déchet concerné.

Il appartient à chaque producteur de déchets d'apporter la preuve que les colis fabriqués satisfont bien aux spécifications. L'ensemble des opérations développées pour apporter ces preuves s'appelle la *caractérisation*. Le dossier de caractérisation, établi en concertation entre l'ANDRA et le producteur, constitue l'une des pièces essentielles du dossier d'agrément d'un colis, qui comporte par ailleurs un descriptif du procédé de fabrication, un descriptif détaillé du déchet et des méthodes de mesures qui lui sont appliquées, et un descriptif de l'organisation qualité du producteur.

Les propriétés des colis sont évaluées à partir de tests normalisés qui portent sur :

- les propriétés mécaniques : essais de chute, résistance à la compression... ;
- le comportement en présence d'agressions variées : variations de température, humidité ambiante, action des micro-organismes, résistance au feu, à l'irradiation... ;
- les propriétés de confinement qui sont déterminées par un test de *lixiviation*.

Le test de lixiviation est un test arbitraire, pratiqué sur des échantillons représentatifs du colis ou sur des colis entiers, maquettes inactives dans un premier temps, mais dans lesquelles des traceurs sont incorporés, ou colis réels actifs dans un second temps. L'objet soumis au test est immergé dans un bac, rempli d'une eau de composition déterminée. La plupart du temps on débarrasse le colis d'une partie ou de la totalité du conteneur de façon à ce que l'eau puisse être en contact direct avec le déchet conditionné.

On détermine avec précision le rapport S/V, surface libre de l'échantillon rapportée au volume de lixiviant. L'eau est renouvelée à intervalles définis, et lors de chacun des renouvellements on mesure la quantité de traceurs ou de radionucléides dans la solution. Les tests de lixiviation s'étalent sur des périodes qui dépassent généralement l'année. En rapportant les quantités de radionucléides entraînées dans la phase liquide à l'activité initiale du colis, on détermine un taux de lixiviation et une fraction annuelle lixiviée.

Le test de lixiviation, ainsi pratiqué, ne vise pas à reproduire les conditions réelles d'agression par l'eau d'un colis dans l'environnement d'un stockage. Dans le cas d'un stockage de surface en particulier, les colis ne baignent pas dans l'eau, mais sont le plus souvent en contact avec un milieu solide poreux plus ou moins saturé en eau. Le test vise seulement à évaluer, dans des conditions standard reproductibles, la capacité de confinement d'un colis et à en permettre la comparaison avec celle d'autres conditionnements.

6. Contrôle des colis

Une fois l'agrément des colis décerné, et indépendamment des audits qu'elle effectue régulièrement chez les producteurs de déchets, l'ANDRA procède à des contrôles *a posteriori* des propriétés des déchets délivrés. Ces contrôles sont pratiqués sur des colis prélevés sur les chaînes de production. Ils consistent en des mesures "non destructives", effectuées sur les colis entiers : mesures d'activité globale, contrôle d'homogénéité par tomographie d'émission réalisée à l'aide de source de cobalt 60 ou d'accélérateur, mesures de rayonnement et de dégagements gazeux par exemple. Ces contrôles peuvent également requérir l'échantillonnage, ou même la dissection complète d'un colis et la mise en œuvre des "méthodes destructives" : détermination des propriétés physiques élémentaires, analyse de la composition des déchets et des matrices de conditionnement par exemple.

La cellule Alceste construite par le CEA dans l'installation Chicade, à Cadarache, a pour vocation d'effectuer de tels contrôles sur des colis réels actifs de faible et de moyenne activités.

Tous les colis entrant sur le centre de stockage de l'Aube sont identifiés, leur composition est vérifiée par rapport à une composition de référence (code Gide), leur emplacement à l'intérieur du stockage est parfaitement repéré, et toutes ces données sont archivées.

7. Études de comportement à long terme

Les études de comportement à long terme ont pour objet de déterminer l'évolution dans le temps des propriétés d'un colis de déchets, dans les conditions réelles d'un stockage. Ces prévisions sont en effet indispensables à l'évaluation de la sûreté du stockage et à l'étude de son impact sur l'environnement. Dans un stockage, et plus particulièrement dans le cas des stockages géologiques dont les risques potentiels s'étendent sur des durées qui s'évaluent en millénaires, il est évident que les colis, soumis à différentes agressions, seront progressivement dégradés. Après fermeture du stockage, dès que le milieu au voisinage immédiat du colis aura atteint un état de resaturation, l'eau souterraine viendra au contact du colis entraînant une corrosion du conteneur, puis une lixiviation du déchet conditionné. Mais le colis sera également soumis à différentes forces de pression, à l'irradiation due aux différents radionucléides des déchets, aux effets de l'élévation de température consécutive à la radioactivité, à l'action éventuelle de micro-organismes.

Il est indispensable de pouvoir prédire le mieux possible le moment et les formes sous lesquelles les différents radionucléides vont quitter le colis et commencer leur migration au travers des barrières successives du système multibarrières mis en place.

L'établissement de ces prévisions se heurte à deux difficultés majeures. La première réside dans le fait que les prévisions portent sur des périodes très longues qui dépassent largement les possibilités d'expérimentation. Il est possible de soumettre un colis à des expériences de dégradation pendant quelques années au mieux, alors que les prévisions portent au minimum sur plusieurs siècles. Il est envisageable d'accélérer les cinétiques de vieillissement en augmentant l'intensité de l'un des paramètres étudiés (élévation de la température ou du débit de dose par exemple) mais bien souvent cette modification risque de changer la nature même du phénomène observé. Il est donc nécessaire d'avoir recours à une modélisation prédictive qui permet, à partir des résultats expérimentaux obtenus sur le court terme et des lois phénoménologiques qui en découlent, d'extrapoler sur de longues périodes les prévisions d'évolution.

La seconde difficulté est liée au fait qu'aucun des phénomènes observés n'est simple, mais que l'on est confronté à une combinaison de phénomènes qui interagissent entre eux. Par exemple, les effets de la lixiviation dépendent de la composition des eaux lixiviantes. Or, la composition des eaux souterraines, qui résulte d'un équilibre avec les minéraux de la formation géologique traversée, est modifiée lors du passage au travers des barrières ouvragées qu'elles altèrent, et par les produits de la corrosion du conteneur, avant d'atteindre le déchet conditionné. De la même façon, les produits de corrosion du conteneur vont modifier les conditions de potentiel d'oxydoréduction du milieu avoisinant le déchet, mais la radiolyse va également influencer sur ce paramètre, et pas forcément dans le même sens. Il est donc indispensable de procéder à un couplage des différents facteurs d'altération.

La pertinence des modèles élaborés peut, dans une certaine mesure être contrôlée à partir d'expériences "globales" au sein desquelles tout ou une partie de ces couplages sont réalisés. Leur validation peut aussi s'appuyer en partie, sur l'observation d'objets ou de systèmes naturels présentant des "analogies" avec les déchets, les matériaux mis en œuvre ou les systèmes de stockage. L'altération géothermale des basaltes présente par exemple des analogies avec celle des verres nucléaires en condition de stockage. Au niveau des systèmes, le site d'Oklo au Gabon, qui recèle plusieurs réacteurs naturels fossiles vieux de 2 milliards d'années environ, présente des analogies indiscutables avec un stockage géologique de combustibles usés, et fait d'ailleurs l'objet d'un vaste programme d'études au plan international.

L'objectif ultime des études de comportement à long terme est la description du "terme source" qui :

- prend en compte l'altération des colis en interaction avec tous les composants du champ proche ;
- établit quantitativement et qualitativement les lois de relargage des radionucléides hors du système de confinement établi par les barrières de proximité ;

- permet d'aborder les études de migration au travers de la barrière géologique, jusqu'à l'exutoire dans la biosphère et par conséquent d'effectuer des évaluations d'impact sûres et crédibles.

8. Stockage des déchets

Les objectifs du stockage peuvent être atteints de différentes manières suivant qu'il s'agit d'un stockage de surface destiné à n'accueillir que des déchets contenant des radionucléides à vie courte (période inférieure ou égale à 30 ans) ou d'un stockage géologique.

Sans entrer dans une description détaillée des concepts envisagés, nous nous contenterons d'indiquer, pour chacun des deux cas, les grandes lignes des systèmes adoptés ou en cours d'étude.

8.1. Des stockages de surface

Rappelons qu'en France, ils sont conçus pour n'accepter que des déchets de catégorie A dont la radioactivité atteindra après 300 ans un niveau voisin de celui de la radioactivité naturelle.

Le concept de stockage de surface, tel qu'il est appliqué sur le centre de stockage de l'Aube (CSA), actuellement en service, a été progressivement élaboré au cours de l'exploitation du centre de stockage de la Manche (CSM) ouvert en 1969 et dont l'exploitation s'est arrêtée en 1994 avec un peu plus de 525 000 m³ de déchets réceptionnés.

L'implantation idéale d'un site de stockage de surface est représentée par une formation géologique drainante disposée sur un substratum imperméable avec un exutoire parfaitement identifié (voir figure 4).

Cette situation correspond à celle du CSA, situé dans la région de Soulaïnes Dhuis, à environ 50 km à l'Est de Troyes, en Champagne, où les sables de l'Albien et de l'Aptien supérieur reposent sur les argiles très peu perméables de l'Aptien inférieur.

Dans son principe général, les colis de déchets sont disposés dans des cases de béton, construites sur des dalles drainées. Les interstices entre les colis sont comblés, soit par du sable, soit par un coulis de béton, suivant les propriétés mécaniques intrinsèques des colis. Lorsque les cases sont pleines, elles sont recouvertes d'une couche de ciment et de polymères imperméables. Pendant toute la durée de leur construction et de leur exploitation, les ouvrages sont couverts par une toiture mobile qui les tient à l'abri des intempéries.

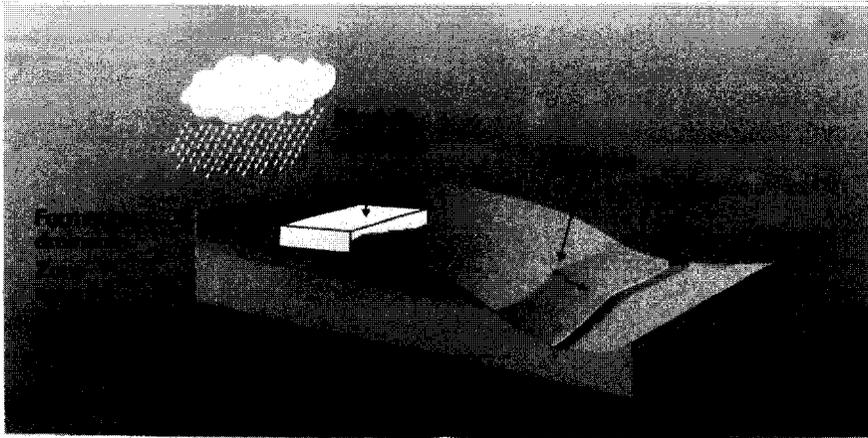


Figure 4 : Choix du site d'entreposage de surface.

Lorsque l'exploitation d'un ensemble d'ouvrages est terminée, ceux-ci sont recouverts d'une couverture imperméable, constituée d'une alternance de géomembrane et de matériaux naturels (argiles compactés), puis de terre végétale (voir figure 5) pour assurer une protection à long terme.

Les drains des ouvrages sont reliés à une série de collecteurs visitables et surveillés en permanence.

La capacité prévue pour le CSA est de 1 000 000 m³, ce qui, au rythme des livraisons actuelles de colis, correspond à une durée d'exploitation d'environ 50 ans.

À l'issue de cette période d'exploitation, et après fermeture, le site fera l'objet d'une surveillance de 300 ans, période après laquelle il pourra être banalisé.

Ce système de stockage a été adopté par un certain nombre de pays étrangers, en Europe et aux États-Unis.

8.2. D'éventuels stockages profonds

La France ne dispose pas, pour l'instant de sites de stockage géologique pour les déchets des catégories B et C, qui sont au fur et à mesure de leur fabrication, entreposés sur les sites de production. L'étude d'un tel type de stockage est régie par la loi sur les déchets du 30 décembre 1991 qui prescrit (axe 2 de recherche) que l'ANDRA est chargée d'étudier la faisabilité d'un stockage en formation géologique profonde, réversible ou irréversible, à l'aide en particulier d'au moins deux laboratoires souterrains. Elle remettra son rapport en 2006.

Nous nous contenterons donc seulement, en nous appuyant sur les études effectuées antérieurement tant en France qu'à l'étranger, de donner les grandes

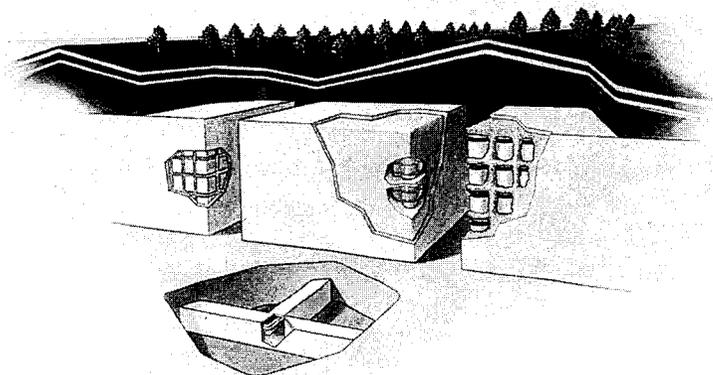


Figure 5 : Schéma des ouvrages au CSA.

lignes de ce que pourrait être un stockage géologique, en gardant présent à l'esprit que les types de formations géologiques prospectés dans le contexte national concernent le granite et l'argile.

Les accès au stockage, qui pour éviter les risques d'intrusion et les risques dus à une possible érosion au cours des périodes géologiques, se situera à une profondeur optimisée de l'ordre de 500 m, se feront par puits ou par descenderie.

La formation géologique sélectionnée sera stable, située en dehors des zones de déformations tectoniques et ne comportera pas de ressources minérales reconnues.

Elle aura une puissance (une épaisseur) suffisante. Le gradient hydraulique y sera faible, elle présentera des propriétés de perméabilité et de rétention satisfaisantes. Les caractéristiques mécaniques des roches seront telles que la construction et l'exploitation des ouvrages, ne se heurteront pas à des difficultés particulières.

Les colis de déchets pourront être entourés par une barrière ouvragée (voir figure 6). Celle-ci étant constituée de matériaux rapportés, disposés entre le colis et la barrière géologique.

Le type d'ouvrage et de BO mis en œuvre sont définis par la formation géologique, le colis de déchets considérés et les différentes fonctions attribuées à chacune des barrières au sein du concept de stockage développé.

Les principales fonctions assignées à une barrière ouvragée de voisinage, c'est-à-dire disposée au contact des colis, sont au nombre de deux :

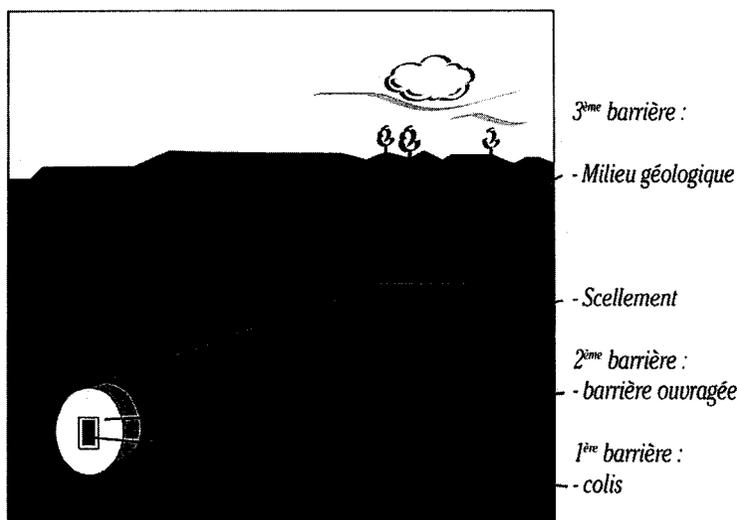


Figure 6 : Principe d'un concept de stockage profond.

- protéger les colis, c'est-à-dire favoriser les conditions d'environnement qui garantiront leur durabilité ;
- empêcher ou ralentir le flux des radionucléides vers la géosphère, en cas de dégradation des colis.

Les matériaux utilisés pour la confection des BO, outre le fait qu'ils doivent pouvoir être mis en œuvre sans difficulté dans les conditions du stockage souterrain, peuvent être appelés à satisfaire à 4 critères essentiels :

- occuper totalement et durablement les espaces résiduels du stockage : vides technologiques, fissures de la roche d'accueil. Les qualités requises sont une plasticité et un pouvoir de gonflement élevé ;
- limiter l'accès de l'eau aux colis de déchets, l'eau constituant le premier facteur d'altération des colis. Il s'agit pratiquement de limiter la corrosion des conteneurs puis la mise en solution du déchet conditionné. La qualité requise est une faible perméabilité à l'eau ;
- limiter l'arrivée des espèces chimiques, en provenance du milieu d'accueil susceptibles de corroder les colis, et retarder la migration des radionucléides solubilisés vers la géosphère. Les qualités requises sont celles de "tampon chimique" et de rétention des radionucléides ;
- évacuer la chaleur éventuellement dégagée par le colis. La qualité requise est une bonne condition de conductivité.

Les deux matériaux candidats à la confection de BO sont les liants hydrauliques et les argiles.

Les argiles dont l'utilisation est envisagée appartiennent à la famille des smectites, qui offrent la propriété de gonfler lorsqu'elles sont mises en présence d'eau. Leur pouvoir de gonflement est très dépendant de la densité du matériau mis en œuvre. Il est possible de compacter et de façonner ces argiles en pièces ajustables pour la confection des BO.

À l'issue d'une période de réversibilité plus ou moins longue et qui peut d'ailleurs être établie par degrés décroissants au cours de la vie du stockage, les ouvrages seront comblés et les orifices scellés de façon à restituer à la formation son intégrité initiale.

9. Conclusion

Depuis leur production, au niveau des installations, jusqu'à leur dépôt en stockage, les déchets radioactifs font l'objet d'une gestion soignée et qui se veut exemplaire.

Après concentration de la radioactivité et stabilisation, les déchets sont conditionnés sous une forme solide, constituant un colis dont les propriétés satisfont aux spécifications des entreposages et des stockages. Les prévisions du comportement des colis en condition de stockage font l'objet d'études approfondies et de modélisation.

Les concepts de stockage sont élaborés dans un cadre réglementaire précis, en fonction des propriétés des sites retenus et des colis stockés, de façon à garantir la sûreté des générations futures et la protection de l'environnement pendant toute la durée du risque que présente la radioactivité, et en fonction de toutes les circonstances raisonnablement prévisibles.

10 Enfouissement des déchets nucléaires en formation géologique

Ghislain de Marsily^(★)

1. Introduction

Les déchets issus du programme électronucléaire français ont été traditionnellement classés en trois catégories distinctes (voir tableau 1).

Les déchets dits A comportent des éléments à période inférieure à 30 ans, si bien qu'après une durée de 10 périodes (300 ans) de surveillance institutionnelle, la radioactivité contenue aura décré à des niveaux insignifiants. Des normes très strictes sont appliquées pour que des émetteurs α à vie longue ne soient pas également contenus dans ces déchets (teneur maximum de 0,1 Ci/t par colis, ou de 0,02 Ci/t pour l'ensemble du stockage). En France, ces déchets sont stockés en surface, au Centre de la Manche, actuellement en cours de fermeture, et depuis 4 ans au Centre de l'Aube. Dans certains pays, des déchets de ce type sont aussi stockés à faible profondeur (par exemple en Suède, au "SFR" près de Forsmark.

(★) Université Paris VI, Laboratoire de géologie appliquée, 4, place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05

Tableau 1 : Catégories utilisées en France pour classer les déchets nucléaires; devenir potentiel et quantités produites.

Type de déchets	Activité	Période	Devenir	Volume cumulé, an 2030
A	Faible	Courte	Surface	1 000 000 m ³
B	Moyenne	Longue	Souterrain	90 000 m ³
C	Forte	Longue	Souterrain	4 500 m ³

Dans ce qui suit, nous ne parlerons que des déchets dits B et C, qui sont de moyenne ou forte activité et à vie longue.

Les catégories de déchets B et C sont, en France, celles destinées en principe à un stockage géologique en profondeur. Si pour les déchets C, le programme de recherche de la France porte aussi sur la séparation poussée et la transmutation, il faut savoir que ces recherches visent essentiellement à réduire la toxicité et la durée de vie de ces déchets C, jamais à les faire disparaître totalement, ce qui serait aujourd'hui utopique. Quant aux déchets B, dont le volume est de plus d'un ordre de grandeur plus grand que celui des déchets C, il n'existe aujourd'hui pas d'autres solutions pour les éliminer que de les stocker en profondeur, bien que des actions de réduction de volume ou d'amélioration des conditionnements soient l'objet de recherches.

Les déchets B sont constitués d'un assez grand nombre de déchets et de conditionnements : coques et embouts des combustibles nucléaires, boues résiduelles issues du retraitement, déchets technologiques, certains filtres ou résidus du cycle du combustible, ou enfin certaines quantités de matériaux issus du démantèlement des installations nucléaires ; les conteneurs sont en métal, en béton, en résines synthétiques ; les matrices de conditionnement sont en métal, en bitumes, en béton, en résines, *etc.* Quant aux déchets C, il s'agit pour l'essentiel en France des verres issus du retraitement des combustibles usagés, contenus dans des enveloppes en métal. Il pourrait s'y ajouter dans l'avenir une certaine quantité de combustibles usagés non retraités, ou des combustibles spéciaux non retraités tels que ceux des sous-marins nucléaires.

2. Fonctions principales d'une barrière géologique

Quelles sont les raisons qui poussent à vouloir stocker les déchets B et C en profondeur ? On peut en citer au moins quatre.

- 1) Protéger ces déchets des "accidents" susceptibles de se produire en surface. On sait en effet entreposer ces déchets de façon sûre et sans danger en surface ou

en subsurface, dans des installations industrielles surveillées en permanence. En France, de tels entreposages existent à La Hague, Marcoule, Cadarache, *etc.* Mais vu la période de certains éléments contenus, qui peut aller de dizaines de milliers d'années à des millions d'années, il n'est pas raisonnable de vouloir compter sur les générations futures pour s'acquitter indéfiniment de la surveillance de stockages de surface, en attendant que la radioactivité ait décréu avant de les "banaliser". Une fois laissés à l'abandon, ces stockages de surface seraient très vulnérables aux intrusions volontaires ou accidentelles, et de plus les processus naturels à la surface du globe (altération, corrosion, érosion, entraînement par les glaciers en période froide, *etc.*) auraient tôt fait de disperser les éléments stockés dans l'environnement, alors que leur toxicité n'est pas encore réduite. On peut dire enfin que les actes de guerre, de vandalisme, les accidents (chute d'avion, de météorite, *etc.*) sont plus susceptibles de conduire à une perte de confinement d'un entreposage de surface que d'un stockage en profondeur. De même, la probabilité d'une intrusion humaine accidentelle dans le stockage (en cas d'oubli de son existence) est d'autant moins élevée dans le futur que ce stockage est éloigné de l'homme, par exemple en profondeur.

- 2) Assurer un "environnement" stable et favorable à l'intégrité, sur des durées très longues, des barrières ouvragées qui conditionnent ou isolent les déchets. Il est par exemple plus facile de prévoir un conteneur métallique de déchets de durée de vie longue (milliers d'années) si les conditions géochimiques du stockage sont invariables, et même si possible favorables (conditions réductrices par exemple, pour empêcher la corrosion).
- 3) Assurer une barrière naturelle capable de ralentir ou même d'arrêter la migration vers l'environnement de surface des radionucléides qui auraient été relâchés par les barrières ouvragées, soit à très long terme, après la durée de vie nominale de ces barrières, soit à la suite d'intrusions humaines intempestives.
- 4) Assurer en dernier ressort, quand toutes les autres barrières mises entre les déchets et l'environnement de surface ont été (au moins en partie) traversées par les radionucléides, une capacité de dilution des effluents quittant le milieu géologique profond, de façon à ce que les concentrations des radionucléides dans les milieux superficiels (eau, sols, atmosphère...) soient aussi faibles que possible.

3. Formations géologiques envisagées pour recevoir des déchets

Quels sont les milieux géologiques susceptibles d'accueillir des déchets et de remplir les fonctions de confinement dégagées ci-dessus ? Il est clair que l'eau est l'élément contre lequel il faut tout d'abord chercher à se prémunir. Les déchets

sont en effet stockés sous forme solide, et la voie la plus probable de retour de la radioactivité dans l'environnement superficiel est le transfert en solution dans l'eau. Celle-ci est en effet un agent puissant de dégradation des conteneurs et des matrices, et finalement de solubilisation des radionucléides contenus. Si de plus cette eau est naturellement mobile dans les roches, elle peut constituer la voie de retour la plus vraisemblable de la radioactivité vers l'homme. Ce n'est cependant pas la seule voie à considérer. Un transfert en phase gazeuse est aussi possible, les gaz étant produits par biodégradation de la matière organique contenue dans certains déchets B, par corrosion des métaux ou par radiolyse. Ces gaz peuvent être chargés en radionucléides (carbone 14, krypton 85 ou radon 222). Une autre voie de transfert qui peut se révéler en dernier ressort la voie dominante est celle liée aux intrusions humaines dans le stockage pour des raisons de prospection ou d'exploitation ultérieures des ressources minérales, ou toute autre raison de pénétration dans le sous-sol qui pourrait être mise en œuvre par les générations futures (autres stockages, tests d'armes, *etc.*), l'existence du stockage ayant été oubliée. Donnons tout d'abord une brève liste des milieux qui ont été considérés comme *a priori* favorables au stockage, avec leurs avantages et inconvénients majeurs, et les pays qui s'y intéressent.

3.1. Sel

Ce milieu contient *a priori* très peu d'eau, et de plus cette eau y est quasi immobile (voir par exemple les travaux de Cosenza et Goyerechi, 1997, à ce sujet). Le sel a été le premier type de formation géologique étudié aux États-Unis, et fait aujourd'hui l'objet de la première demande officielle d'autorisation de création d'un centre de stockage de déchets B aux États-Unis, sur le site du "WIPP" dans le bassin de Carlsbad au Nouveau-Mexique (dépôt officiel de la demande en octobre 1996). L'Allemagne et la Russie s'intéressent aussi au sel. Cette roche a l'avantage d'être plastique, c'est-à-dire que les cavités créées pour le stockage se refermeront naturellement et de façon étanche après la fermeture, facilitant d'autant le scellement des voies d'accès au stockage. Le principal inconvénient du sel est qu'il constitue aussi une ressource, et donc une "cible" *a priori* intéressante pour les générations futures. Sur le site du WIPP, ceci s'accompagne de la présence de ressources pétrolières potentielles sous le sel, et le point le plus délicat de la demande de création d'un stockage en cours de dépôt est lié aux scénarios d'intrusion humaine. La France a pour l'instant abandonné ce type de roche à cause de son caractère de ressource. Le sel peut aussi, dans certains cas, être "trop imperméable", et ne pas permettre l'évacuation lente des gaz de biodégradation, de corrosion et de radiolyse, avec risque de montée en pression de ces gaz et de fracturation de la roche.

3.2. Argile

Cette roche contient en général beaucoup d'eau (porosité de 20 à 40 %) mais cette eau est en général en écoulement lent à très lent, ce qui lui assure un fort pouvoir de confinement. L'argile possède aussi un sérieux avantage, celui de pouvoir retenir à long terme certains radionucléides qui auraient traversé les autres barrières : les éléments cationiques sont en effet en général retenus par le solide par échanges d'ion. Bien que ce phénomène soit en général réversible, il se traduit par un fort ralentissement de la migration des cations par rapport à la vitesse éventuelle de l'eau. L'argile est aussi, si elle n'est pas trop consolidée, une roche au comportement plastique qui, à long terme, se refermera sur les déchets et améliorera le scellement des ouvertures. Cependant, l'argile est mauvaise conductrice de la chaleur et ne peut accueillir des déchets C fortement thermogènes, c'est-à-dire des verres nucléaires ou des combustibles usés, qu'après une période d'attente, de l'ordre de 50 ans, qui permet une décroissance forte de leur pouvoir thermogène. Enfin l'argile fortement consolidée perd peu à peu ses propriétés de plasticité, pour devenir un "shale" ou une ardoise. Elle peut alors se fissurer, et devenir perméable par fracturation. Un exemple de telles argiles fracturées a été étudié à des fins méthodologiques par le CEA-IPSN dans le tunnel de Tournemire, dans les argiles du Toarcien, près de Roquefort dans l'Aveyron, où ces fractures sont parfois recimentées par de la calcite apportée par des circulations d'eau, rendant alors la roche à nouveau très peu perméable (Barescut et Michelot, 1997). L'argile est étudiée depuis 20 ans environ par les Belges à Mol, par les Italiens, et fait l'objet de prospection sur deux sites en France, celui dit "de l'Est" à la frontière des départements de la Haute-Marne et de la Meuse (argiles callovo-oxfordiennes du Jurassique supérieur) et celui du Gard près de Marcoule (argiles vracono-taviennes, du milieu du Crétacé).

3.3. Granite

L'avantage du granite est avant tout sa forte résistance mécanique, qui rend les travaux de construction du stockage plus aisés et moins onéreux que dans les roches plus plastiques exigeant des soutènements importants. C'est aussi une roche où le risque de prospection minière ou aquifère en profondeur est en principe très limité, si elle ne contient pas d'anomalie particulière (en particulier uranium ou thorium). Le granite contient peu d'eau, sa porosité est faible, de l'ordre de 1 % ; mais il est très souvent parcouru de fractures de longueur et d'ouverture très variables, si bien que sa perméabilité "en grand" peut être faible ou élevée, en fonction de la densité et de la connectivité des fractures. C'est là son défaut majeur. De plus, en cas de mouvements tectoniques même de faible ampleur, de nouvelles fractures peuvent être créées, ou d'anciennes rejouer. Le transport d'éléments en solution dans les fractures est relativement rapide, car le volume de

ces fractures est petit, conférant au granite un faible pouvoir de confinement propre. Si le granite est altéré (ce qui signifie qu'il est fracturé et que des circulations d'eau y ont pris naissance), les produits d'altération dans les fissures, souvent argileux, peuvent avoir un pouvoir de rétention des cations. Enfin si le granite sain de part et d'autre des fissures possède une certaine porosité (aux joints de grains), cette porosité peut servir de lieu de diffusion transversale des éléments circulant dans les fissures, ralentissant ainsi la migration des éléments en solution. Le granite est étudié par les Suédois, les Canadiens, les Suisses, les Japonais ; en France, dans le département de la Vienne, est examiné un granite recouvert par des sédiments secondaires et tertiaires du seuil du Poitou.

3.4. Roches volcaniques

Aux États-Unis, pour les déchets C (combustibles usés non retraités), le site actuel de recherche est situé au Nevada (Yucca Mountains) dans des tufs volcaniques soudés (c'est-à-dire que les cendres volcaniques dont est formée la roche sont retombées encore suffisamment chaudes sur le sol pour se souder entre elles et former une roche dure mais poreuse). À la bonne résistance mécanique et à l'absence de ressources de ce site s'ajoute l'avantage de son climat quasi désertique (au moins à l'heure actuelle) et à la très grande profondeur du niveau de la nappe phréatique, qui se situe à environ 500 m sous le site de stockage potentiel : la partie supérieure du massif, à très faible saturation en eau du fait du climat, ne laisserait donc en principe pas circuler rapidement les radionucléides entrés en solution. Mais c'est actuellement le seul site volcanique étudié au monde.

3.5. Déserts

Il ne s'agit pas à proprement parler de stocker en profondeur, mais de profiter de la présence d'une ceinture désertique sous les latitudes sub-tropicales pour y déverser des déchets, non susceptibles d'être mis en contact avec l'eau, pour des durées indéfinies. Cette solution était autrefois préconisée par C.J. Allègre, au moins pour des stockages "provisoires" surveillés. Dans les années 1980, des contacts ont eu lieu entre des industriels allemands et les autorités chinoises, pour éliminer ainsi des déchets B. Mais le Gouvernement allemand y a mis fin, au moins dans l'immédiat.

3.6. Glaciers

Cette solution a été brièvement évoquée dans les années 1970. Les grands glaciers de l'Antarctique ou du Groenland constituent des masses de glace épaisses et en

écoulement lent vers la mer. Depuis les zones hautes, le temps de transfert vers la mer est estimé à 200 000 ans environ. Il avait donc été imaginé que des déchets enfouis dans la glace seraient "éliminés" de la biosphère pendant cette durée. Si ces déchets émettent de la chaleur, ils seraient même capables de descendre verticalement au sein de la masse de glace par fusion lente, sous l'effet de leur propre poids. Outre les problèmes politiques (zones protégées...), ces idées ont été abandonnées parce que la vitesse d'écoulement de la glace en profondeur est inconnue, et parce qu'un relâchement des déchets dans 200 000 ans dans l'océan ne serait pas nécessairement sans danger, vu la période de certains radionucléides.

3.7. Fonds sous-marins

Il s'agit là d'un projet bien plus sérieux, qui a fait l'objet d'un programme de recherche international sur dix ans dans les années 1980, auquel a participé la France (OCDE-NEA, 1988 ; Stanners *et al.*, 1991). Les avantages de l'enfouissement des déchets nucléaires dans les fonds sous-marins profonds sont multiples et réels. En tout premier lieu, la probabilité d'une intrusion humaine accidentelle y est quasi nulle, alors qu'à terre, ce risque constitue peut-être le problème majeur du stockage des déchets. En second lieu, les fonds sous-marins envisagés sont constitués d'argiles plastiques récentes, ayant donc toutes les "bonnes" propriétés déjà citées, qui se situent en plus dans des zones du globe terrestre où la tendance générale est à la sédimentation (et non à l'érosion comme sur les continents) : au cours du temps, le stockage de déchets se trouvera être de plus en plus enfoui. Si les argiles des grands fonds sous-marins sont gorgées d'eau (porosités de 60 à 40 %), en revanche cette eau est *a priori* immobile du fait de l'absence de moteur d'un écoulement ; ce point demande cependant encore à être confirmé expérimentalement. Enfin, en cas de relâchement accidentel ou imprévu de radioactivité, le potentiel gigantesque de dilution des effluents dans l'océan, et l'absence totale de risque de prélèvement direct de ces effluents aux fins de distribution en eau potable, font de cette option l'une des plus sûres vis-à-vis de l'environnement. La faisabilité technique est à peu près acquise : on peut, par pénétrateur ou par forage profond, enfouir des déchets C à des profondeurs de plusieurs dizaines ou centaines de mètres sous le fond des océans. La solution est cependant quasi irréversible, nous reviendrons en fin de chapitre sur le problème de la réversibilité. La difficulté majeure de cette option est politique : la Convention de Londres, qui règle internationalement les rejets en mer et l'utilisation des zones maritimes internationales, s'est opposée à la poursuite des travaux de recherche. Le Japon et les États-Unis poursuivent cependant, à faible cadence, quelques travaux sur ce domaine.

3.8. Îles désertes

Une façon de bénéficier de certaines des propriétés très favorables des fonds sous-marins, idée discutée en particulier lors du Congrès géologique international de 1987 à Washington, a été l'utilisation comme site de stockage de sites insulaires, *a priori* inhabités. Les avantages peuvent être analogues à ceux des stockages sous-marins : si les puits et descenderies peuvent être construits à terre, les galeries de stockages peuvent, elles, être construites sous la mer, réduisant d'autant les risques d'intrusion humaine, et offrant également un milieu où les eaux sont *a priori* immobiles ou très faiblement mobiles, avec un potentiel de dilution très important aux effluents éventuels. Malgré ces avantages indéniables, ce type de milieu ne fait pour l'instant pas l'objet de recherches nationales ou internationales connues.

3.9. Environnements géologiques

Nous venons de décrire ci-dessus quelques formations géologiques hôtes potentielles de stockages de déchets. À vrai dire, un stockage de déchets s'étudie en fonction non seulement de la formation particulière où sera construit le stockage, mais aussi des formations qui l'entourent. Toutes les formations sédimentaires (sel, argile) vont être rencontrées dans des bassins sédimentaires où coexisteront sur la verticale d'autres formations sédimentaires (sables, grès, calcaires, marnes...) qui pourront soit constituer des ressources aquifères, soit contenir d'autres ressources potentielles (pétrole, minerais) susceptibles d'être prospectées ou exploitées dans le futur. C'est l'ensemble de ce système qui doit être étudié quant au potentiel de confinement des déchets et de dilution des éventuels effluents. Pour le granite, il en va de même, en particulier s'il se trouve sous recouvrement comme c'est le cas du site de la Vienne. De plus, il faut inclure dans les environnements géologiques la place qu'occupe le site dans l'activité géodynamique interne ou externe de la zone étudiée : stabilité, sismicité, risque d'érosion, de glaciation, *etc.* Mais pour en parler plus clairement nous allons tout d'abord décrire en quelques mots les principaux mécanismes de la géodynamiques qui obligent à se poser la question de la pérennité des structures géologiques telles que nous pouvons les observer aujourd'hui.

4. Structure interne et géodynamique de la Terre

Grâce aux travaux réalisés depuis près d'un siècle sur la structure interne de la Terre, à partir de l'interprétation des enregistrements sismiques lors des séismes,

on connaît assez bien la structure interne du globe jusqu'en son centre, même si le forage le plus profond jamais réalisé ne dépasse pas une douzaine de kilomètres (presqu'île de Kola en Russie). Le rayon de la Terre est d'environ 6 500 km (voir figure 1). En résumant, on trouve au centre, sur un rayon de 1 400 km, un noyau solidifié dit "la graine", fait pour l'essentiel de fer et de nickel. Ensuite vient le noyau ayant les propriétés d'un liquide vis-à-vis de la transmission des ondes acoustiques, sur une couronne de 2 200 km, fait lui aussi de fer, de nickel et d'un peu de soufre. Peu à peu, la Terre se refroidit et la graine solide s'accroît au détriment du noyau liquide. Au-dessus vient le manteau, fait de roches silico-alumineuses, riches en magnésium, qui n'est ni liquide ni solide : on dit qu'il est pâteux. Le manteau s'étend presque jusqu'à la surface, sur 2 900 km. La température qui y règne varie de 1 000 °C à sa surface, à 3 900 °C au contact avec le noyau. Celui-ci serait à près de 4 000 °C. Cependant, sous les pressions très fortes qui y règnent, le manteau est un corps lentement déformable, sa viscosité est estimée à 10^{21} Pa.s à 150 km de profondeur, là où elle est la plus faible. Cette viscosité non nulle lui permet d'être animé de lents mouvements de convection. Il n'est recouvert que par une mince épaisseur de roches rigides, dite "la croûte", qui mesure 10 km sous les océans et 30 à 70 km environ sous les continents. On regroupe cependant sous le nom de lithosphère la croûte et la partie supérieure rigide du manteau, jusqu'à la profondeur de 100 km environ. Ensuite viennent l'asthénosphère (300 km), la zone de transition (500 km) puis le manteau inférieur.

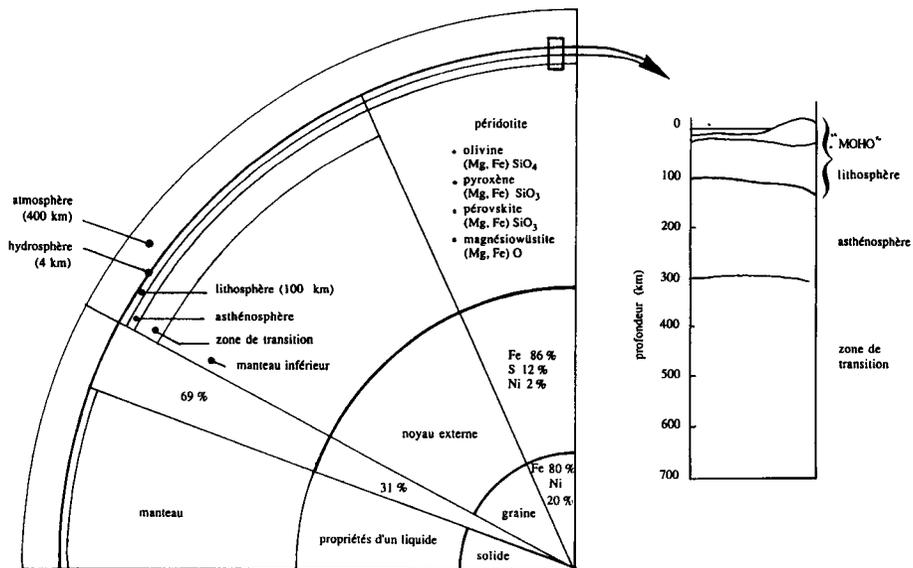


Figure 1 : La structure interne de la Terre (reproduit d'après Caron *et al.*, 1989)

Le bilan thermique de la Terre, malheureusement estimé encore de façon peu précise, serait le suivant, en térawatts (10^{12} W) :

- refroidissement du globe : entre 11 et 22 ;
- radioactivité (essentiellement contenue dans la croûte) : entre 15 et 20 ;
- ralentissement de la vitesse de rotation par suite du travail des forces de gravité lunaires et solaires par déformation du géoïde) : entre 0 et 7 ;
- chaleur de solidification du noyau : entre 1 et 2,8 ;
- total : environ 42.

Cette chaleur est transportée dans le globe par conduction et convection, puis irradiée dans l'espace par le rayonnement terrestre dans l'infrarouge. Le flux émis à la surface du sol, appelé flux géothermique, est de l'ordre de 100 mW/m^2 , à comparer au flux solaire incident sur Terre, de l'ordre de 100 W/m^2 . Sur les 42 TW émis, 20 % traversent les continents, et 80 % passent par les océans.

Au sein du noyau liquide, les courants de convection d'origine thermique seraient responsables de mouvements dans le noyau de fer (vitesses estimées à 1 km/an), engendrant ainsi le champ magnétique terrestre. Dans le manteau pâteux, ces mêmes phénomènes de convection thermique engendreraient un lent écoulement de la matière, en grandes cellules de convection, dont on ignore encore les dimensions tant verticales qu'horizontales (voir figure 2). Les vitesses sont très lentes : de l'ordre du cm au dm par an. C'est donc le transfert de chaleur par convection qui est responsable de la géodynamique interne, c'est-à-dire des mouvements du manteau qui entraînent ceux de la croûte, et du tir des éléments par leur densité depuis la formation de la Terre.

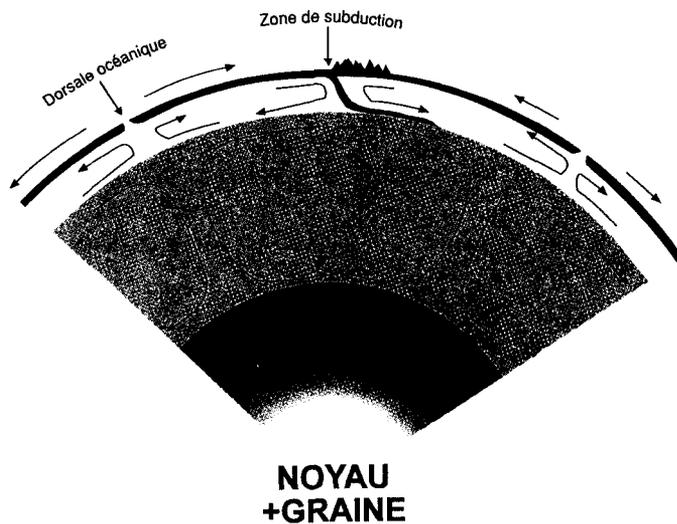


Figure 2 : Hypothèse de l'organisation en deux étages des cellules de convection dans le manteau. La lithosphère est en noir (reproduit d'après Nicolas, 1990)

4.1. Géodynamique interne

Depuis une vingtaine d'année, la théorie de la tectonique des plaques est venue expliquer les causes de la déformation incessante des continents et des océans. Lors de la formation de la Terre, il y a près de 4,6 milliards d'années, la surface du globe était encore pâteuse et trop chaude pour former une croûte solide. Avec le refroidissement et la condensation de la vapeur d'eau, s'est formé le premier océan, dont la masse s'est probablement grossie de l'arrivée de glaces sous l'effet d'un bombardement de comètes. La Terre ne possédait alors qu'une croûte océanique, et pas de continents. Peu à peu, des épaisseurs de croûte solidifiée se sont empilées, formant les premiers continents. Cette croûte continentale plus épaisse et plus légère, qui dépasse le niveau des mers, s'enfonce aussi dans le manteau, plus dense : celui-ci se comporte comme un "liquide", et, pour qu'un "objet" y dépasse le niveau moyen, il doit s'enfoncer dans le "liquide" pour pouvoir flotter, comme un bateau à la surface de l'eau (principe de l'isostasie). La surface de la croûte continentale a crû, entre 0,5 et 4 milliards d'années après la formation de la Terre, pour se stabiliser depuis à la surface actuelle (les continents représentent 1/3 de la surface du globe, la croûte continentale un peu plus, car il faut y ajouter le plateau continental sous-marin). Mais la croûte continentale n'est pas stable : elle est entraînée dans un mouvement horizontal sur le manteau, par le jeu de la convection. La croûte océanique est, elle aussi, animée de mouvements semblables. Ces mouvements redécoupent les continents en morceaux, pour les regrouper ultérieurement, comme des radeaux à la dérive. On identifie actuellement 17 "plaques" principales, constituant soit des portions de continents, soit d'océans, qui se déplacent les unes par rapport aux autres (voir figure 3). La surface du globe étant constante, ces mouvements de plaques se font avec trois types de déplacement relatifs (voir figure 4) :

- deux plaques s'écartent, l'ouverture qui se crée est immédiatement occupée par de la lave provenant du manteau, qui se solidifie : on crée ainsi de nouvelles surfaces de croûte océanique. Le meilleur exemple classique de ce type de déplacement est donné par la ride médio-atlantique, constituée de volcans sous-marins dont l'Islande est une manifestation émergée. Cette ouverture de l'Atlantique Nord a commencé il y a environ 100 millions d'années, l'Europe et l'Amérique du Nord faisant auparavant partie d'un même continent. Plus récents sont les prémices de l'ouverture d'un nouvel océan en Afrique de l'Est, dans la région des grands lacs, qui "bientôt" (dans quelques millions d'années) formeront peut-être une mer, comme l'est devenue la mer Rouge. Plus proche encore, la vallée du Rhin est une proto-ouverture, qui a commencé à véritablement écarter la France de l'Allemagne il y a environ 30 millions d'années, mais cette ouverture est demeurée au stade du rifting continental avorté, et la plaque Eurasie est actuellement considérée comme stable ;

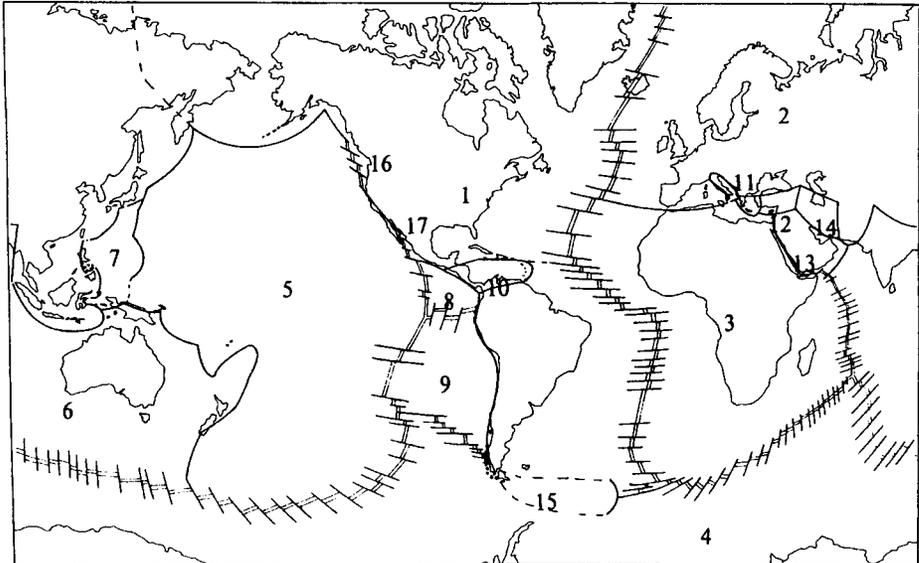


Figure 3 : Principales plaques lithosphériques. 1. Américaine ; 2. Eurasiatique ; 3. Africaine ; 4. Antarctique ; 5. Pacifique ; 6. Indoaustralienne ; 7. Philippine ; 8. Cocos ; 9. Nazca ; 10. Caraïbe ; 11. Hellénique ; 12. Turquie ; 13. Arabique ; 14. Iranienne ; 15. Scotia ; 16. Juan de Fuca ; 17. Rivera (reproduit d'après Caron *et al.*, 1989).

- deux plaques se rapprochent l'une de l'autre. S'il s'agit d'une plaque océanique rencontrant une plaque continentale, la première glisse sous la seconde, on parle de subduction. L'exemple le plus proche est la subduction sous l'Italie de la plaque océanique qui sépare l'Europe de l'Afrique, ces deux dernières plaques étant en cours de rapprochement. La collision des plaques africaine et eurasienne est la cause de la formation des Alpes. Un autre exemple est la subduction de la plaque Pacifique sous la plaque sud-américaine, responsable de la phase actuelle de surrection de la cordillère des Andes. En effet, une plaque qui subducte entraîne une compression et un relèvement de la plaque sus-jacente, créant un nouveau relief. De plus, en s'enfonçant dans le manteau, la plaque qui subducte finit par s'échauffer et entre en fusion partielle, engendrant une remontée de magma qui perce la plaque sus-jacente et forme des volcans ; en arrière du front de subduction (par exemple les volcans des Andes ou du Sud italien).

S'il s'agit de deux plaques continentales, il y a en général collision, plissement et accumulation de croûte, formant alors un relief très important. C'est le cas de la collision de l'Inde, autrefois un continent autonome, qui a dérivé de la position actuelle de Madagascar jusqu'à rencontrer le continent asiatique, avec comme conséquence la formation de l'Himalaya ;

- deux plaques peuvent se déplacer dans la même direction mais dans des sens opposés : il y a alors frottement des deux plaques à leur contact ; on parle de

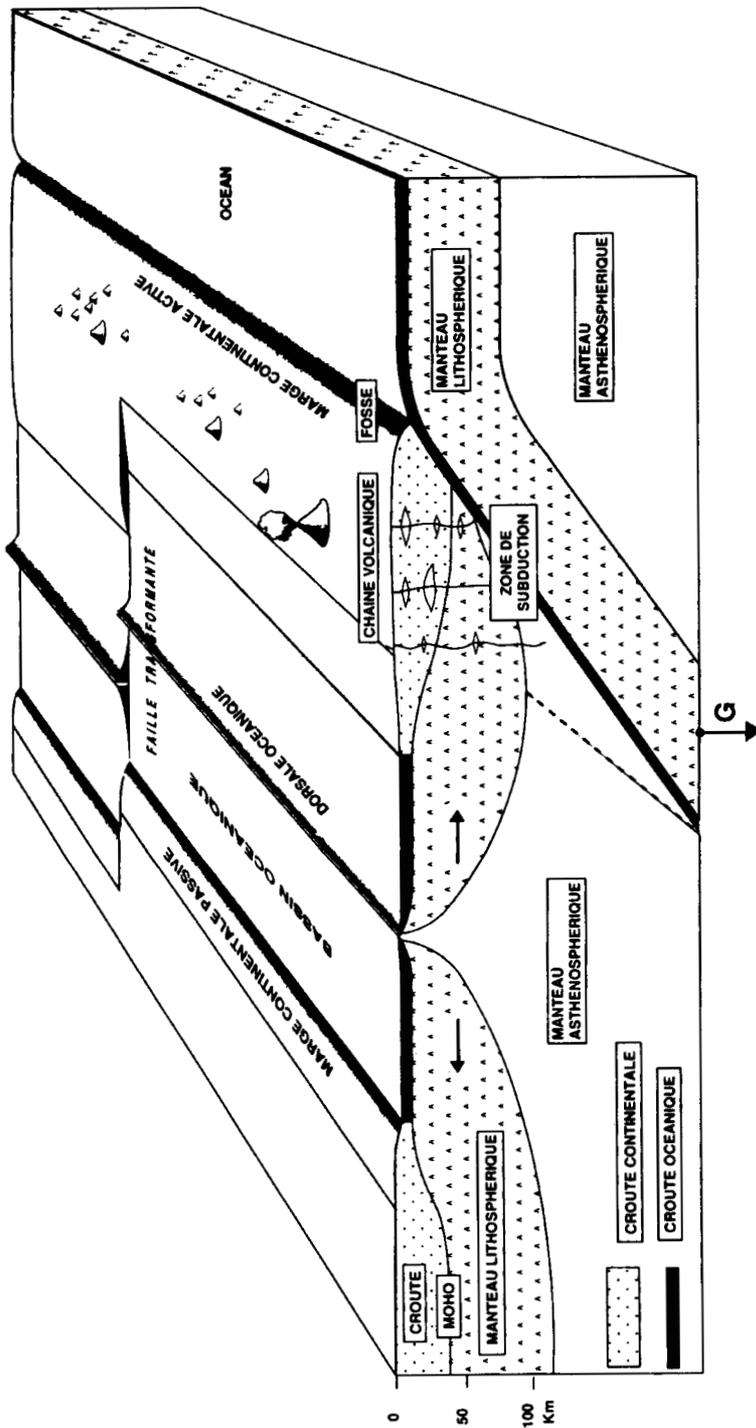


Figure 4 : La tectonique des plaques. La dorsale océanique est la frontière de plaques divergentes, la marge continentale active celles des plaques convergentes et la faille transformante celles des plaques qui coulissent l'une contre l'autre. G est la force de gravité entraînant dans l'asthénosphère la plaque en subduction (reproduit d'après Boillot, 1996)

zone de cisaillement ou de failles transformantes. L'exemple le plus classique est la faille de San Andréa, qui passe par San Francisco et longe la côte ouest de la Californie, responsable de nombreux séismes.

Les vitesses de déplacement des plaques les unes par rapport aux autres sont du même ordre que les vitesses des cellules de convection dans le manteau : du centimètre au décimètre par an. Ainsi, l'Amérique s'éloigne actuellement de l'Europe au rythme de 3 cm par an environ, soit encore 30 km par million d'années.

Un autre type de phénomènes liés à la géodynamique interne est l'existence de "points chauds". Ceux-ci se manifestent par l'apparition, en plein milieu d'une plaque, en général océanique, d'un volcan, d'abord sous-marin, puis émergeant au-dessus du niveau de la mer. Les meilleurs exemples de ces points chauds sont les îles de La Réunion, Hawaii, ou la Polynésie, ou à terre, Yellowstone aux États-Unis. Il semble que ces points chauds soient la manifestation de remontée anormale de chaleur (de magma liquide) qui proviendrait du noyau et traverserait le manteau. On constate en effet que la position du point chaud semble fixe par rapport à un référentiel interne, alors que la plaque qui est "percée" par l'apport de chaleur et de magma se déplace au-dessus du point chaud, à sa vitesse normale d'entraînement par les cellules de convection. Il en résulte que le volcan correspondant semble se déplacer en sens inverse du mouvement de la plaque, formant ainsi un chapelet d'îles volcaniques successives. Ainsi, La Réunion possède un volcan ancien éteint, le Piton des Neiges, à l'ouest, qui a fonctionné de - 3 millions d'années à - 20 000 ans, puis à l'est, le volcan actif actuel, le Piton de la Fournaise, qui fonctionne depuis 350 000 ans et représente la migration relative de l'île vers l'ouest, avec la plaque océanique qui la porte, par rapport au point chaud.

4.2. Géodynamique externe

On appelle géodynamique externe l'ensemble des processus géologiques dont la cause a pour source d'énergie principale le rayonnement solaire et les effets de la gravité. Ils conduisent d'abord à l'altération et à l'érosion des roches en surface, puis au transport (sous forme dissoute ou particulaire) des éléments par les eaux météoriques (liquides ou sous forme de glaces), ou encore le transport des poussières par le vent. Vient enfin la sédimentation ou la précipitation des éléments transportés dans les zones d'accumulation continentales ou marines. Ces processus conduisent à l'érosion des reliefs et à la formation des roches dites sédimentaires. L'eau est l'acteur essentiel de ces processus. Pour fixer des ordres de grandeur, les vitesses d'érosion verticale sont de l'ordre de 20 m par million d'années en plaine, et de 200 m en montagne. Si les mécanismes géodynamiques internes ne venaient sans cesse rajeunir les reliefs par le jeu des mouvements des plaques, les plus hauts reliefs seraient effacés en quelques dizaines de millions

d'années, et tous les continents auraient disparu, vu l'âge de la Terre (4,6 milliards d'années).

4.3. Roches de la croûte terrestre

En simplifiant, on peut restreindre la nature des roches présentes à la surface du globe à un petit nombre de familles.

4.3.1. Roches cristallines

Les roches cristallines ou magmatiques sont issues des émissions de liquides silicatés fondus (magma) en provenance soit de la croûte, soit du manteau. Le magma mantellique n'est pas véritablement du manteau fondu, mais seulement le résultat de l'expulsion (par effet densitaire) d'une fusion partielle du manteau : les éléments les moins réfractaires du manteau, d'une profondeur allant de 100 à 700 km environ, entrent en fusion alors que les éléments les plus réfractaires restent à l'état solide ; ce liquide est alors expulsé vers la surface, laissant sur place le solide (mais qui est entraîné par les mouvements de convection lents du manteau). Des magmas sont aussi émis dans les zones de subduction, car l'eau présente dans la plaque descendante abaisse la température du point de fusion des roches.

Au cours du temps, les magmas évoluent par refroidissement et cristallisation fractionnée, engendrant des liquides basaltiques plus riches en calcium et magnésium, ou granitiques, plus riches en silice, sodium et potassium. Ils peuvent incorporer des cristaux déjà formés précédemment, ou des roches environnantes qu'ils mettent en fusion. Ils perdent aussi au cours du temps une partie de la phase fluide, qui entraîne avec elle certains éléments tels les halogènes, l'étain, le wolfram, le molybdène, le cuivre, le plomb, le zinc. Un magma granitique contient environ 15 % de son poids en eau. Les émissions magmatiques se rencontrent dans les zones de rifting, dans les marges actives en arrière des zones de subduction, ou encore dans les points chauds.

Dans l'ascension des magmas, deux cas peuvent se produire. Dans le premier, le liquide pénètre à l'intérieur de la croûte continentale, incorpore en les fondant les roches présentes sur son passage, et finit par être arrêté dans cette ascension par son refroidissement lent, à des profondeurs entre 2 et 10 km (voir figure 5). On forme alors un granite, ou l'équivalent, c'est-à-dire une roche constituée de cristaux qui se sont formés lentement dans un liquide en fusion. La cristallisation s'effectue à environ 600°C et à 4 kbars. Ces cristaux, de nature variée (quartz, feldspaths, micas, amphiboles, minéraux rares) sont jointifs car la croissance cristalline s'arrête quand les minéraux entrent en contact et que le liquide a disparu. Seuls subsistent de petits volumes de vide, les joints entre grains, qui sont occupés par de l'eau. Le refroidissement d'un massif granitique, qui a

grossièrement la forme d'un champignon ou d'une poire renversée, s'effectue en un temps de l'ordre de quelques dizaines à centaines de milliers d'années, pendant lequel il expulse vers la surface l'eau que contenait le magma. La taille de ces massifs va de l'ordre de quelques kilomètres jusqu'au millier de kilomètres (1 000 km au Yosemite Park au États-Unis, 100 km dans le massif de la Margeride dans le Massif central). Plusieurs "bulles" de granites intrusifs peuvent se succéder, les suivantes pouvant partiellement refondre les précédentes, ou les traverser suivant des conduits ou failles formant ce que l'on appelle des dykes. Pour que le granite arrive ensuite en surface à l'affleurement, il suffit de laisser à l'érosion le temps d'araser les 2 à 10 km de roches sous lesquelles s'était mise en place la bulle de magma. Une zone de croûte continentale chaude où se succèdent les intrusions magmatiques peut mettre plusieurs dizaines de millions d'années à se refroidir.

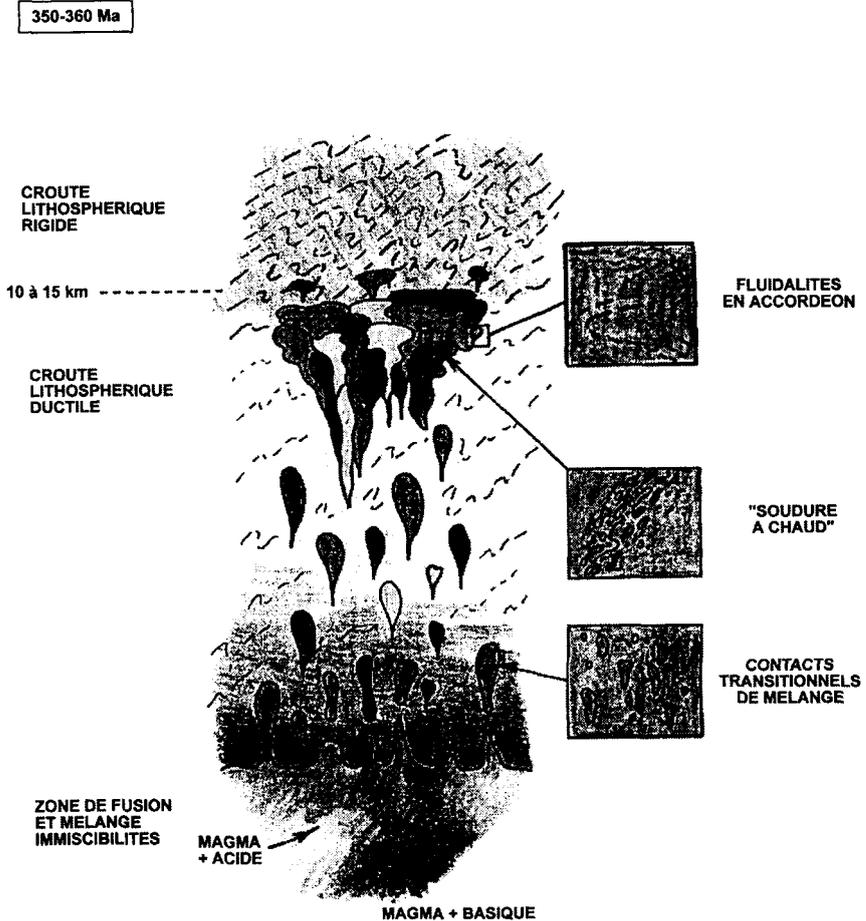


Figure 5 : Mise en place de l'ensemble grandioritique dans le sud de la Vienne (reproduit avec la permission de D. Virlogeux, ANDRA).

Dans le second cas, le magma fondu remonte jusqu'à la surface : il s'agit alors de phénomènes volcaniques, et les laves se solidifient à la surface de la Terre ou sous la mer (cas des remontées de magma dans les zones d'écartement de deux plaques, avec formation de croûte océanique, par exemple). Les roches formées sont de composition chimique variable mais en fin de compte peu différente de celle des granites ; elles n'ont cependant pas de minéraux cristallisés de grande taille car le refroidissement est trop rapide pour que les cristaux se développent et il se forme du verre ou des microcristaux. Les laves les plus courantes sont les basaltes, mais il existe de très nombreux types de roches volcaniques en fonction de la composition chimique du magma émis, qui peut être plus liquide ou plus visqueux, engendrant des formes de volcans et des dynamiques éruptives très variables. La durée de l'activité volcanique se chiffre en centaines de milliers ou en millions d'années, jusqu'à ce que la source de magma s'épuise (sauf dans les zones d'écartement des plaques, où l'émission est continue). Mais cette émission peut être discontinue, avec des phases d'arrêt de plusieurs milliers d'années suivies de reprises. Le volcanisme en Auvergne, par exemple, s'est déroulé sur 10 millions d'années, et la dernière éruption ne remonte qu'à environ 4 000 ans, si bien qu'il n'est pas du tout sûr que de nouvelles émissions ne puissent encore y avoir lieu.

4.3.2. Roches sédimentaires

Les roches sédimentaires sont issues de la dégradation des continents (roches cristallines et anciens sédiments). Elles sont soit détritiques, c'est-à-dire constituées de l'accumulation de particules solides érodées et transportées par les eaux, le vent ou la glace, soit chimiques par précipitation d'éléments en solution, soit biogéniques (accumulations de restes de faune et flore marine ou continentale). Elles peuvent aussi résulter de la conjugaison de ces trois origines, les matériaux provenant dans tous les cas de la dégradation des roches antérieures. La plupart des roches détritiques sont formées par l'accumulation des particules érodées (quartz, argiles, galets de toute nature). Transportées par les glaces, les fleuves puis par les courants marins, ces particules s'accumulent sur le talus continental (zones peu profondes qui entourent les continents) et parfois jusqu'au pied des talus (deltas sous-marins). Elles sont en général naturellement classées par taille en fonction de l'énergie du milieu ; ainsi par exemple près des côtes, les particules sont plus grossières, tandis que les plus fines peuvent être propagées beaucoup plus loin. Au centre des océans, ne s'accumulent plus que les poussières transportées par les vents, ou les particules argileuses les plus fines qui ne descendent dans la colonne d'eau qu'en plusieurs années. Cette belle régularité de principe est cependant perturbée par un grand nombre de mécanismes qui agissent sur le long terme : d'abord la variation du niveau de la mer, qui déplace la position des côtes. Cette variation peut être générale ; ainsi la rupture de continents en plusieurs morceaux, comme cela s'est produit par exemple il y a 200 millions d'années, quand le continent unique "la Pangée" a commencé à se diviser (voir figure 6), engendre une montée générale de la mer, tandis que la coalescence de

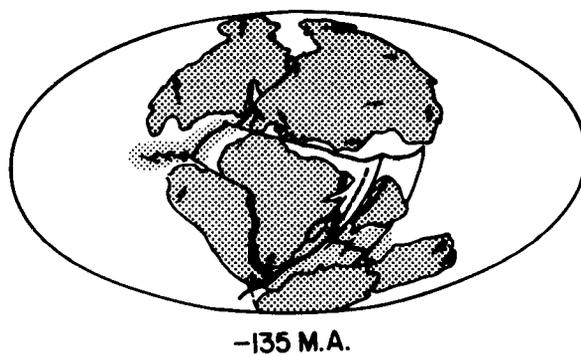
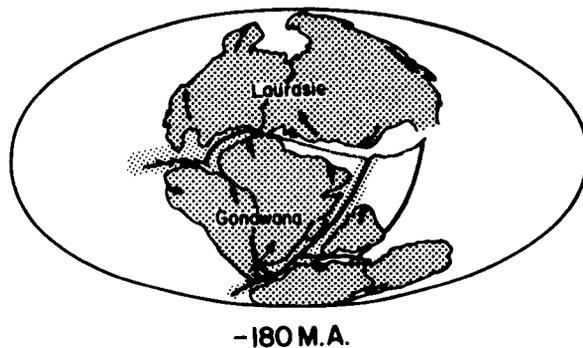
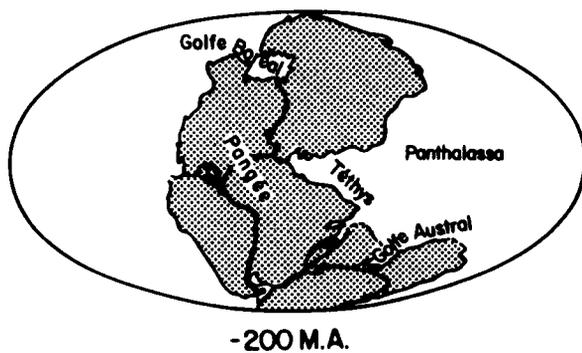
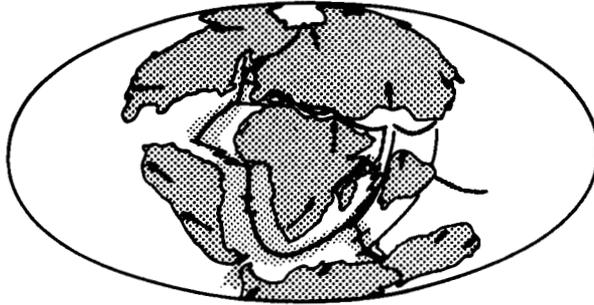


Figure 6 : Évolution des continents depuis 200 millions d'années (reproduit d'après Allègre, 1983).



- 65 M.A.



0



+ 50 M.A.

continents épars en un super-continent unique engendre une baisse de la mer. On tente d'expliquer cette observation soit par des variations climatiques entraînées par cette division, soit par des effets thermiques sur la croûte, le flux thermique augmentant lors d'une division (remontée de magma). Les glaciations, par stockage d'eau près des pôles, font aussi varier le niveau général des océans. Cette variation peut aussi être locale, par déformation de la croûte, qui peut localement s'enfoncer ou s'élever par rapport au manteau. Ces variations du niveau de la mer conduisent, en un même point, à une succession verticale de sédiments plus fins ou plus grossiers. Une autre cause de complexité est l'existence d'instabilités dans la masse de sédiments accumulés sur le talus continental incliné : des glissements sous-marins plus ou moins importants peuvent se produire, entraînant des coulées de sédiments remélangés, qui peuvent se propager très loin vers le large, parfois sur des centaines ou des milliers de kilomètres (on les appelle des courants de turbidité).

Si les sédiments sont le plus souvent déposés en mer, dans les zones de rift, il existe aussi des dépôts continentaux, tels que les dépôts superficiels fluviaux ou morainiques, les dépôts éoliens (loess) ou les dépôts dans les lacs ou les lagunes. Ainsi la sédimentation carbonifère (345 à 280 millions d'années) résulte-t-elle d'accumulations de sédiments riches en débris végétaux dans des zones lacustres intra-montagneuses (bassins limniques) ou lagunaires (bassins paraliques). Il arrive aussi que ces bassins lacustres ou lagunaires, sous des climats chauds, perdent leur eau par évaporation et précipitent leurs sels. Des dépôts salifères (sulfates, chlorures) contenant parfois des alternances détritiques s'accumulent alors. Cela s'est produit de façon très importante au Trias (200 millions d'années), donnant en France, par exemple, les couches salifères du bassin de Paris qui affleurent en Lorraine mais se poursuivent en profondeur jusqu'à Reims ; de même, au Ludien, vers 40 millions d'années, dans le centre du bassin de Paris se sont à nouveau accumulés des évaporites, principalement du gypse, d'où l'on tire le plâtre de Paris, probablement par lessivage et redépôt des sels des formations triasiques de l'Est de la France.

Il faut ajouter encore, parmi les roches sédimentaires, les formations biogéniques, qui résultent de l'accumulation de débris de squelettes d'organismes aquatiques, comme par exemple la craie, formée de minuscules pièces calcitiques accumulées, les coccolithes. Ces accumulations calcaires ne peuvent cependant pas se déposer dans des mers très profondes (la limite se situe entre 4 et 5 km, selon la température et la teneur en CO_2 des océans), car à plus grande profondeur, le carbonate de calcium se redissout en réagissant avec le CO_2 dissous. Peuvent s'y associer des squelettes siliceux, ou des particules détritiques. Les sables de plage coquilliers sont d'autres exemples de sédiments biogènes. Les barrières de récifs à polypiers forment l'essentiel des masses de calcaires dans le monde, elles se forment dans des eaux chaudes et peu profondes. Enfin certaines couches calcaires sont formées, dans des mers chaudes et peu profondes (comme aux Bahamas aujourd'hui) par précipitation des carbonates dans l'eau, en sus des dépôts bioclastiques.

Les roches détritiques dominent aux latitudes élevées, tandis que les roches biogéniques (principalement les calcaires) se rencontrent aux latitudes basses, sauf en face des déserts. Dans ceux-ci s'accumulent des sables dunaires, dont une partie est cependant entraînée jusqu'en mer.

4.3.3. Roches métamorphiques

Les roches métamorphiques sont le fruit de la transformation des roches sédimentaires ou magmatiques à la suite d'une augmentation de température et/ou de pression due à l'enfouissement, à l'orogénèse, à une intrusion magmatique, ou à une "bouffée" thermique dont on ne connaît pas encore clairement l'origine. Les roches ainsi formées conservent plus ou moins trace de leur structure originelle et acquièrent de nouveaux minéraux (dits de métamorphisme), de nouveaux plans de débits (clivages ardoisiers, schistosités) et/ou de nouvelles structures (foliation, microplis). Le stade ultime du métamorphisme est la fusion et la granitisation (granites d'anatexie), qui peuvent encore se solidifier par deshydratation, alors que la température continue à croître (faciès granulites).

4.4. Évolution des roches à la surface de la Terre

Une fois les roches mises en place, par les processus internes ou externes, elles subissent de nombreuses transformations ou agressions au cours de leur histoire.

Pour les roches magmatiques, les processus majeurs d'évolution sont le refroidissement engendrant des contractions et des fracturations, les mouvements tectoniques dus à la mécanique des plaques créant déformations et fracturations, et enfin la circulation des fluides dans les fractures. Ces fluides peuvent venir de la surface, et initier des processus d'altération et de dissolution des minéraux ainsi que la formation de minéraux nouveaux à partir des éléments dissous (calcite, silice, argiles). Ceux-ci vont peu à peu boucher les fissures et arrêter les circulations, jusqu'à ce que de nouveaux mouvements viennent créer de nouvelles fractures ou réactiver les anciennes. Ces fluides peuvent aussi venir des profondeurs, il s'agit alors d'eau expulsée par le refroidissement de magmas plus profonds, ou même d'eau provenant des sédiments pénétrants dans le manteau dans les zones de subduction. On parle alors d'eaux "juvéniles". Ces fluides juvéniles ou météoriques contiennent des éléments dissous à des profondeurs plus grandes, qui vont eux aussi précipiter dans les fractures ou dans les pores lors du refroidissement des eaux qui remontent. Il peut s'agir de silice, de silicates et d'argiles, mais aussi de minéraux métalliques tels que des sulfures de plomb, de zinc, de l'or, de la fluorine, de la barytine, ou aussi des minéraux d'uranium et de thorium. On parle de circulations hydrothermales pour désigner ces circulations complexes dans les massifs chauds fracturés, où se mêlent les fluides issus des profondeurs et ceux issus de la surface, entraînés par des mouvements de

convection d'origine thermique, par la gravité, ou résultant de l'expulsion de l'eau par compaction des sédiments.

Pour les roches sédimentaires, les processus majeurs sont la compaction (et l'expulsion d'eau qui en résulte), sous l'effet du poids apporté par les sédiments surincombants. Cet enfouissement des sédiments s'accompagne d'une élévation de la température, sous l'effet du gradient géothermique. Les fluides contenus peuvent se mettre alors à dissoudre certains des minéraux présents, et à en précipiter de nouveaux, phénomènes dits diagénétiques. Si ces fluides se déplacent (sous l'effet de la compaction, de la convection thermique ou de mises en charge gravitaires sur les bordures), ces dissolutions et précipitations peuvent se produire dans des lieux distincts, conduisant à des ouvertures ou à des colmatages de la porosité. La matière organique des sédiments est aussi transformée par l'élévation de la température, pouvant conduire à la formation d'hydrocarbures liquides ou gazeux, de bitumes, ou de charbons, suivant l'origine de la matière organique...

Les roches sédimentaires sont aussi soumises aux contraintes tectoniques résultant de la dynamique des plaques. Si elles sont "plastiques", comme le sel ou les argiles, elles peuvent se déformer sans casser. Si, au contraire, elles sont mécaniquement résistantes, comme les calcaires, les grès ou certaines argiles compactes et indurées, elles peuvent se fracturer, comme les roches cristallines. La circulation des eaux dans ces fractures peut alors y avoir les mêmes effets que ceux déjà cités : altérations, dissolutions, précipitations. Le cas des roches calcaires doit être mis à part : du fait de la présence de CO_2 dans les eaux météoriques, les calcaires se dissolvent bien plus facilement que les autres roches. Cette dissolution commence dans les fractures, qui se trouvent bientôt élargies et transformées en conduits, puis en un réseau complexe de cavités et de fractures où circulent les eaux : on parle de systèmes karstiques, domaines que visitent les spéléologues dans les conduits les plus grands.

Un processus majeur de la géodynamique externe est aussi la succession des cycles glaciaires, en particulier depuis le quaternaire. La cause des variations climatiques majeures conduisant aux glaciations est, pense-t-on, liée aux fluctuations mineures des paramètres de rotation de la Terre autour du Soleil : petites variations périodiques de l'excentricité de l'orbite (périodes de 100 000 et 400 000 ans), de l'obliquité de l'axe de rotation sur le plan de l'écliptique (période 41 000 ans), et enfin de la précession des équinoxes (période 19 000 à 23 000 ans). Le physicien Serbe Milankovitch (1930), qui a donné son nom à cette théorie, a mis en évidence de façon empirique une forte corrélation entre les cycles résultants de la superposition de ces variations périodiques et les variations climatiques. Cette corrélation a été renforcée depuis par les données de paléo-températures qui ont pu être obtenues par mesure de l'oxygène 18 dans les carottes de sédiments marins, qui renseignent sur la température des océans lors de la sédimentation, ou plus récemment par analyse des carottes de glace des régions polaires. On explique cette corrélation par la variation de l'intensité du rayonnement solaire incident, amplifiée par la variation de l'albédo (pouvoir réflecteur) de la Terre quand la surface couverte de glaces augmente. Ces

variations climatiques sont aussi liées à la variation de la teneur en CO_2 de l'atmosphère, gaz dont on connaît le rôle d'effet de serre par adsorption du rayonnement infrarouge de la Terre. On sait ainsi, par l'analyse des gaz piégés dans les glaces polaires, que la teneur de l'air en CO_2 dans l'atmosphère a varié de façon naturelle entre 190 ppmv (c'est-à-dire ppm en volume), il y a moins 40 000 ans, et 280 ppmv au XIX^e siècle, sachant que les rejets atmosphériques anthropiques ont maintenant fait grimper ce chiffre à 345 ppmv, et que le maximum enregistré dans le passé a pu aller jusqu'à 750 ppmv. Il n'est cependant pas clairement établi aujourd'hui si les variations naturelles des teneur en CO_2 de l'atmosphère sont une conséquence des variations climatiques d'origine orbitale, ou au contraire peuvent avoir d'autres origines, et engendrer à elles seules des variations climatiques.

Lors d'une glaciation, le niveau des mers diminue par immobilisation de l'eau sur les calottes glaciaires. Les continents où s'accumulent les glaces, par exemple la Scandinavie, l'Écosse, le nord de l'Europe jusqu'à la Belgique, s'enfoncent dans le manteau sous l'effet de cette surcharge, dont la hauteur peut atteindre plusieurs kilomètres. Ce poids supplémentaire engendre un enfoncement de plusieurs centaines de mètres de la croûte continentale dans le manteau sous-jacent. De même, lors de la fonte des glaces, le continent allégé remonte. On appelle cet effet isostasie. Mais ces mouvements verticaux sont lents et différés ; à l'heure actuelle par exemple, le golfe de Botnie, entre la Suède et la Finlande, remonte encore de 9 mm/an, après une remontée totale estimée à 400 m. Ces mouvements verticaux sont accompagnés de petits mouvements différentiels au sein de la croûte, réactivant le plus souvent des fractures antérieures. Ces mouvements se répercutent assez loin, bien en avant du front des glaciers, sous l'effet de flexure de la croûte rigide. Ainsi de petites déformations sont engendrées en France sous l'effet des glaciations en Europe du Nord.

Pendant les périodes glaciaires, le sol est fortement érodé par la masse de glace qui s'écoule et "rabote" la surface, et parfois aussi profondément entaillé par des vallées profondes et étroites creusées par des rivières sous-glaciaires. Au centre du glacier, le contact entre glace et roche est généralement une zone de fusion, à cause du flux géothermique venant des profondeurs, et de l'effet isolant de la glace. De l'eau liquide se forme, et est soit injectée dans le sol en profondeur si la roche est perméable, soit drainée par ces rivières sous-glaciaires, laissant sur place des alluvions (moraines ou eskers). Au voisinage du front du glacier, on constate que le sol est gelé sous la glace et même devant le glacier, formant un pergélisol. La profondeur de sol gelé peut être très importante : jusqu'à 500 ou 1 000 m au nord du Canada, en Sibérie ou au Spitzberg aujourd'hui. Ce sol gelé constitue un obstacle à l'écoulement des eaux souterraines, qui sont ainsi obligées de circuler plus profondément pour contourner par le bas le "bouchon" constitué par le pergélisol. On explique ainsi, en Hollande et en Belgique du Nord, l'âge relativement récent des eaux souterraines profondes, qui auraient été forcées par le pergélisol de s'écouler en profondeur il y a plus de 10 000 ans, avant la dernière déglaciation.

4.5. Écoulement des eaux souterraines

Un dernier domaine important de la géologie dont il faut prendre connaissance est celui de la circulation des eaux souterraines. En effet, en matière de stockage en profondeur des déchets nucléaires, le principal ennemi est l'eau. D'une part, elle permet la corrosion des conteneurs, la dissolution des radioéléments, la modification des conditions physico-chimiques par radiolyse ; d'autre part, elle permet la migration éventuelle des éléments en solution vers la surface, la biosphère et l'homme. Cette migration peut se produire par deux mécanismes principaux : si l'eau est immobile, la diffusion moléculaire ; si l'eau est en mouvement, s'y ajoute la convection, c'est-à-dire l'entraînement par cet écoulement.

Du point de vue des écoulements, on classe les roches en deux catégories : les roches perméables, où des vitesses d'écoulements relativement importantes peuvent être observées : du mètre par jour au mètre par an, ou même moins. Il s'agit en général de sables, de grès, de calcaires poreux, ou encore de roches fortement fissurées, les fissures jouant le rôle de chemins de circulation, les "blocs" entre fissures étant en général à vitesse lente ou nulle. Les roches imperméables ou peu perméables sont au contraire parcourues par des écoulements nuls ou très lents : de l'ordre du mm/an ou moins. Il ne faut pas croire que cette quasi absence d'écoulements est liée à une absence d'eau : les argiles, par exemple, peuvent avoir une forte teneur en eau, 20 à 30 % en volume, et pourtant ne pas être perméables : les pores des argiles où se trouve cette eau sont si petits, que les forces de frottement empêchent toute circulation rapide. Mais aucune roche n'est totalement imperméable ; même le sel, l'une des moins perméables, possède une perméabilité qui a été mesurée récemment *in situ* (Cosenza et Goyerechi, 1997). De plus, toute roche initialement imperméable, si elle vient à être fracturée, devient perméable "en grand" par l'intermédiaire de son réseau de fractures, si celles-ci sont connectées. Une des grandes questions qui se pose dans les projets de stockage dans des roches dures fissurées, comme le granite, est donc la connectivité de son réseau de fractures, et de très nombreux travaux récents ont examiné ce sujet à la lumière de la théorie de la percolation, due à Hammersley et Welsh. (1980), voir par exemple Cacas *et al.* (1990 a,b), Bourg et Davy (1997).

Quels sont les moteurs des écoulements : on en connaît trois principaux. Le premier est la mise en charge gravitaire. À la surface du sol, l'eau météorique s'infiltré et descend en profondeur. Elle s'écoule alors, dans les horizons perméables et dans les fissures, et va rejoindre les points bas de la topographie : vallées, sources, rivages, ou parfois forages de prélèvement, ce qu'on appelle les exutoires. Les écoulements souterrains se font donc dans le sens général de la structure des couches perméables, avec toutefois des trajets qui peuvent descendre assez bas en profondeur, bien en dessous des exutoires, comme dans un siphon. Ainsi, dans le bassin de Paris, les eaux qui s'infiltrèrent sur les hauteurs des Vosges peuvent descendre jusqu'à 2 km de profondeur sous le niveau de la mer

avant de pouvoir s'échapper, en remontant, aux exutoires de la baie de Seine. De tels trajets demandent donc un temps fort long, de la dizaine de milliers au million d'années.

Le second moteur est la compaction des séries argileuses, sous l'effet de leur propre poids, ou encore le refroidissement des roches cristallines. L'eau expulsée traverse alors les séries sus-jacentes, mais les vitesses sont faibles, de l'ordre du mm/an. Ce moteur là n'est en réalité important qu'au début de l'histoire d'une roche, car il finit par se ralentir, une fois l'eau expulsée, ou la roche refroidie.

Le troisième moteur est d'origine thermique : il s'agit de la convection naturelle. Le gradient géothermique étant orienté vers le bas, les eaux sont plus chaudes en profondeur qu'en surface. Elles sont plus légères, et donc en position instable vis-à-vis des eaux plus froides de la surface. En l'absence de tout autre moteur, cette instabilité peut engendrer des écoulements en circuit fermé, soit sans seuil dans le cas de couches inclinées, soit avec un seuil si les couches perméables sont horizontales : l'écoulement ne peut se produire que si un nombre de Raleigh critique, fonction du gradient thermique et des propriétés des roches, est dépassé. De nouveau, les vitesses sont en général faibles, du mm/an au cm/an.

Quand des éléments en solution sont emportés par les écoulements d'eau, il faut prendre en compte le fait que ces éléments peuvent encore interagir avec le milieu solide, vu la très grande surface de contact disponible entre fluide et solide (de $1,5 \times 10^4 \text{ m}^2/\text{m}^3$ pour un sable, à plus de $10^8 \text{ m}^2/\text{m}^3$ pour une argile). Du fait de l'existence sur certains minéraux, en particulier les argiles, de déficits de charges aux bordures des réseaux cristallins, ces solides sont susceptibles de fixer par attraction électrique des cations métalliques. Il s'agit en fait d'une substitution, sur les sites électriques de fixation, de cations majeurs (Ca, Na, K...) par les radioéléments. Cette fixation, appelée sorption, n'est en général pas irréversible, mais ralentit fortement la vitesse de migration des cations par rapport à celle de l'eau, on parle de "coefficient de retard". D'autres réactions (co-précipitations...) sont aussi susceptibles de se produire. Les anions en revanche, tels que l'iode ou certains métaux complexés et donc non chargés, ou des particules colloïdales, peuvent migrer à la vitesse de l'eau sans être retardés.

5. Bref aperçu de l'histoire géologique de la France

Les terrains constituant le sous-sol de la France se répartissent en quatre groupes :

- 1) en profondeur, les roches granitiques et métamorphiques d'âge primaire et plus ancien constituant le socle hercynien, qui affleure par endroit ;
- 2) au-dessus, les roches constituant la couverture sédimentaire, d'âge Secondaire et Tertiaire, accumulée dans trois bassins principaux ;
- 3) la France Alpine, où l'ensemble des terrains hercyniens surmontés de leur couverture sédimentaire ont été raccourcis, charriés, métamorphisés par endroit

et portés en altitude sous l'effet des compressions consécutives au rapprochement puis à la collision entre l'Afrique et l'Europe, qui a commencé vers 100 millions d'années ;

- 4) un dernier groupe de roches, d'importance mineure en surface, correspond aux terrains volcaniques du Massif central (Cantal, Mont Dore, chaîne des Puys) épanchés depuis l'Oligocènes (30 millions d'années) jusqu'à une date récente.

Les terrains hercyniens ont connu une histoire longue (4 milliards d'années), donc complexe, rythmée par l'alternance de périodes de dislocation et de collision des masses continentales.

À partir du Cambrien (540 millions d'années) la Pangée s'est disloquée pour donner naissance aux continents du Gondwana au sud (bloc contenant les futurs Amérique du Sud, Afrique du Sud, Inde, Australie, Antarctique) et du Laurasia au nord (Amérique du Nord, Europe, Asie), séparés par un océan central, lui-même parsemé de micro-continentes. Laurasia s'est dissociée à son tour en un bloc Nord américain et un bloc Eurasiatique séparés par l'océan Iapetus.

La dislocation de la Pangée une fois achevée, les pièces du puzzle sont rassemblées à nouveau, à partir de l'Ordovicien supérieur (450 millions d'années) avec la fermeture de l'océan Iapetus et la collision des blocs Nord américain et Européen : ce fut l'édification de la chaîne calédonienne d'où ont résulté le Groenland, la Scandinavie et le nord de l'Écosse et dont les effets se sont fait sentir à distance sur le territoire français par des discontinuités dans l'empilement des dépôts. Un peu plus tard, le rapprochement du Gondwana et d'un continent Nord atlantique (Amérique du Nord plus Europe) a conduit à l'édification de la chaîne hercynienne elle-même. Ce vaste ensemble plissé s'étendait des frontières du Maghreb et du Sahara actuel jusqu'à la Grande-Bretagne et l'Europe du Nord. La France était ainsi située au coeur de la chaîne hercynienne, qui était caractérisée dans nos régions par le métamorphisme, la mise en place de grandes masses de granite en profondeur, et l'empilement de nappes de charriage associant couches sédimentaires, coulées volcaniques d'âge primaire, fragments de croûte océanique et terrains métamorphiques précambriens.

Aussitôt constitués, les reliefs de la chaîne hercynienne ont été soumis à l'érosion, qui a commencé dès le début du Carbonifère (environ 350 millions d'années). Dans les régions continentales basses de la surface d'érosion, les dépôts riches en matière végétale du Carbonifère se sont accumulés tout en se déformant, engendrant ainsi les bassins houillers du Nord-Pas-de-Calais, Sarro-Lorrain, et plus récemment, du Massif central tel celui de Saint Étienne.

L'érosion a duré assez longtemps, jusqu'à la fin du Primaire (250 millions d'années), pour atteindre les parties profondes de la chaîne et permettre aux granites et aux terrains fortement métamorphisés d'affleurer. La surface d'érosion résultante était la pénéplaine hercynienne, ainsi nommée car bien aplanie sur l'ensemble de l'Europe occidentale, et désormais prête à recevoir les transgressions marines dans ses régions subsidentes, tandis que dans ses régions hautes, les roches hercyniennes vont continuer à affleurer à la surface du sol, pour

constituer le Massif armoricain, le Massif central, les Vosges, les Ardennes, où l'érosion va se poursuivre.

À l'issue de cette longue histoire, les continents étaient à nouveau rassemblés et constituaient une nouvelle Pangée. Dès le début du secondaire (Trias, 250 millions d'années) celle-ci s'est disloquée à son tour en plusieurs phases successives (voir figure 6) pour aboutir à la dérive des masses continentales de configuration actuelle. Ces phases ont été :

- du Trias (250 millions d'années) au Jurassique moyen (160 millions d'années), l'ouverture provisoire de l'océans téthysien de l'est vers l'ouest, du sud de l'Asie aux Antilles en passant par la Méditerranée. Une nouvelle séparation de Laurasia au nord et de Gondwana au sud en est résultée ;
- du Crétacé (à partir de 120 millions d'années) au Présent, l'ouverture progressive des différents segments de l'Atlantique, la séparation de l'Amérique du Sud de l'Afrique, puis ultérieurement l'Amérique du Nord de l'Europe. L'ouverture du Golfe de Gascogne et la séparation de l'Ibérie de la côte bretonne date du Crétacé inférieur (vers 110 millions d'années) et se situent dans cette phase. Les Pyrénées et les chaînons provençaux résultent des raccourcissements consécutifs à ces mouvements, avec un paroxysme dans la déformation datant de l'Éocène supérieur (35 millions d'années environ) ;
- à l'Oligocène (vers 30 millions d'années), l'ouverture de la mer du Labrador entre le Groenland et le Canada prolongée dans le bloc Européen par un réseau parallèle de fossés d'effondrement, analogues en petit aux rifts actuels de l'Est africain, qui se remplissent de sédiments : en France, en particulier, Alsace, Bresse, Limagnes, Vallée du Rhône. Dans ces régions, la dislocation s'est arrêtée avant la création de croûte océanique.

Ces distensions successives ont été enregistrées dans l'ensemble du continent Européen par un champ de déformations responsables de la fracturation des terrains cristallins hérités de la chaîne hercynienne. Il n'y a donc pas, en France, de granite sain resté massif, comme s'il venait de cristalliser. Dans le réseau des fractures, certaines d'entre elles, plus importantes que les autres, ont délimité des régions plus rapidement subsidentes que les autres, où se sont accumulés les dépôts des trois principaux bassins sédimentaires français : Bassin parisien, Bassin aquitain, Couloir Rhodanien ou Bassin du Sud-Est. Les terrains hercyniens y sont recouverts de sédiments d'âge Secondaire et Tertiaire, issus du démantèlement de la chaîne hercynienne, dont l'épaisseur atteint 3 000 m sous la Champagne, et jusqu'à 10 000 m sous la Camargue.

Le remplissage des bassins sédimentaires est marqué par une succession d'étapes, liées en partie aux variations de la profondeur de la mer, avec des dépôts caractéristiques de certaines époques qui enregistrent des événements singuliers ayant affecté l'ensemble de l'Europe, sinon le monde entier : on peut citer ainsi le dépôt des sels évaporitiques du Trias moyen et supérieur (200 millions d'années), où des épaisseurs de gypse et sel gemme allant jusqu'à 1 000 m sous la Camargue, et 150 m sous la Lorraine, se sont accumulées en conditions lagunaires ; on peut citer aussi les argiles à matière organique du Lias supérieur (schistes carton, 180

millions d'années), qui contribueront à la formation des petits gisements d'hydrocarbures des Bassins parisien ou aquitain. On peut citer encore les puissantes couches calcaires, en partie biogéniques, en partie formées par précipitation au Dogger (176 millions d'années) ; pendant cette période, les apports détritiques sont très faibles, les chaînes hercyniennes sont déjà passablement érodées. Les argiles noires du bas du Jurassique supérieur (Oxfordien, 160 millions d'années) correspondent à des périodes de très haut niveau marin. Le développement des dépôts calcaires à partir du Jurassique supérieur (150 millions d'années) a répondu à un événement de l'histoire de l'évolution : la prolifération des nano-fossiles calcaires (les coccolithes) dans le plancton marin, qui a été responsable du dépôt des calcaires pélagiques dans l'Océan téthysien, des calcaires récifaux du Jurassique supérieur sur les plates-formes sous-marines adjacentes (récifs du Jura et du Bassin de Paris), de la Craie de l'Europe du Nord au Crétacé supérieur (100 millions d'années).

Les émergences et les érosions de la limite Jurassique-Crétacé (135 millions d'années) et Crétacé-Tertiaire (65 millions d'années) sont rapportées à des périodes de bas niveau marin à l'échelle globale. Un regard particulier est porté sur la limite Crétacé-Tertiaire à cause des nombreuses publications de vulgarisation à son sujet, et de la popularité des grands reptiles terrestres du Secondaire et de fossiles marins tels que les ammonites et les belemnites. Pour interpréter ces événements, des scientifiques de diverses disciplines ont invoqué successivement des éruptions volcaniques particulièrement fréquentes et volumineuses (trapps du Dekkan aux Indes), l'impact de la météorite géante de Chixulub au Mexique, l'ouverture de la mer de Norvège et les modifications climatiques consécutives à l'irruption d'eaux arctiques dans l'Atlantique Nord, les effets sur la paléogéographie et le climat de l'orogénèse alpine dont la phase majeure date de cette période. Les paléontologistes pensent, quant à eux, que l'histoire de la biosphère est marquée par une succession d'extinctions à toutes époques, que les extinctions de faune à la fin du Secondaire ne sont pas les plus importantes en nombre d'espèces malgré le caractère spectaculaire de la fin des dinosaures, et que les disparitions de faune à la limite Primaire-Secondaire, par exemple, ont été beaucoup plus sévères, enfin que l'accord d'ensemble n'est pas fait sur le sujet, même s'il y a des explications raisonnables pour divers cas singuliers.

La dernière étape de l'histoire est celle que nous vivons actuellement. C'est une nouvelle phase de rassemblement des masses continentales qui a débuté au Crétacé (vers 100 millions d'années) avec le rapprochement de l'Afrique et de l'Europe, la fermeture progressive de l'océan téthysien et l'édification de la chaîne alpine par la collision des marges téthysiennes Nord et Sud et l'incorporation à l'édifice de portions de croûte océanique. Par exemple, le Mont Viso et le massif du Chenaillet au dessus du col du Mont Genève à la frontière franco-italienne sont constitués de fragments détachés de la croûte océanique téthysienne et charriés par dessus la croûte continentale Européenne.

L'une des conséquences de la déformation alpine (serrage et distensions alternantes) enregistrée à distance dans le socle Européen a été l'activité

volcanique du Massif central français dont la dernière éruption, celle du Puy de la Vache, date seulement de 4 000 ans. Cet intervalle de temps est inférieur à la durée moyenne des périodes de calme entre les périodes d'éruptions des derniers millions d'années dans cette région, si bien qu'on ne peut savoir si les volcans de la chaîne des Puys sont définitivement éteints ou non.

Une autre conséquence des surrections alpines a été la fermeture temporaire du détroit de Gibraltar par suite du rapprochement de l'Afrique. Pendant cet épisode très particulier qui s'est produit au Messinien (5,3 millions d'années), la mer Méditerranée s'est trouvée isolée de l'Atlantique. Comme le bilan de la Méditerranée est déficitaire (les fleuves y apportent moins d'eau que l'évaporation n'en enlève), la Méditerranée s'est partiellement asséchée, probablement en moins de mille ans. Cet assèchement a pu cependant se produire en deux phases successives, et aurait duré environ 300 000 ans, avant que d'autres mouvements tectoniques ne rouvrent le détroit de Gibraltar. La conséquence principale de cet assèchement a été le dépôt de sel dans la partie centrale de la Méditerranée, et aussi le creusement très important du lit de toutes les rivières aboutissant à la Méditerranée, du fait de la chute de près de 1 500 m du niveau de la mer. Ainsi le Rhône a-t-il ré-entaillé sa vallée sur une très grande profondeur, et cela s'est fait ressentir au-delà de Lyon, jusqu'à Génissiat. À Marcoule, le Rhône s'est enfoncé d'environ 700 m, et la Cèze, son affluent en rive droite, sur près de 500 m, créant une entaille en V atteignant une largeur de près de 4 km en surface, et entaillant les couches sous-jacentes en profondeur. Lors de la remise en eau de la Méditerranée, cette entaille a été comblée par de nouveaux sédiments, argileux d'abord, puis plus grossiers, pour former la plaine du Rhône actuelle, où cette ancienne crise n'est plus visible en surface, mais observable en sondages ou par géophysique. Les mêmes phénomènes ont aussi été observés dans la vallée du Nil, confirmant la généralité de cette crise en Méditerranée, qui ne s'est cependant jamais reproduite depuis.

On imaginait autrefois que la Méditerranée actuelle correspondait à ce qui reste de la Téthys d'où les Alpes sont sorties depuis 100 millions d'années. En fait, seule la partie mer Noire et Caspienne représente les restes de la Téthys qui auraient échappé au serrage Alpin. La Méditerranée actuelle a un tracé différent de celui de la Téthys et résulte de distensions récentes au travers de l'édifice Alpin. Par exemple, la Méditerranée occidentale entre l'Espagne et la Sardaigne s'est ouverte vers 20 millions d'années lors du décollement et de la rotation dans le sens trigonométrique du bloc Corso-Sarde à partir du continent Européen, autrefois accolé le long de la Provence et de la Catalogne.

Depuis le Quaternaire (deux millions d'années), la France actuelle est exondée. Elle subit donc une érosion par le ruissellement, les fleuves, le vent, et aussi par les glaciers dans les zones alpines. Quand les glaciers de l'Europe du Nord s'avancent, un désert froid les précède, battu par les vents. Il se dépose alors du lèss (sédiment éoliens, appelé aussi limon des plateaux), que l'on trouve par exemple au sommet des formations superficielles, sur quelques mètres environ, dans le centre du bassin de Paris. Depuis deux millions d'années, une vingtaine de

cycles glaciaires se sont succédés, les périodes interglaciaires (telles que l'actuelle) ne représentant qu'une très faible part de cette durée (10 %). À chaque nouvelle glaciation, le niveau des mers descend, d'une hauteur pouvant aller jusqu'à 100 m environ, rendant par exemple la Manche franchissable à pied, et unissant l'Angleterre au continent. L'embouchure de la Seine se trouve alors au large de la Bretagne, et la Tamise devient son affluent...

6. Sites géologiques français retenus pour examiner la faisabilité éventuelle d'un stockage

Sur des critères à la fois de la nature des formations géologiques disponibles, et d'accord de principe des collectivités locales concernées, la France étudie actuellement trois sites potentiels de stockage de déchets nucléaires en profondeur.

Le premier site est localisé dans l'est de la France, aux confins des départements de la Meuse et de la Haute-Marne. La couche étudiée composée d'argiles silteuses de 130 m environ d'épaisseur est sub-horizontale et comprise entre 400 et 600 m de profondeur. Elle fait partie du bassin de Paris, et s'est déposée au Callovo-Oxfordien (160 millions d'années), après les calcaires du Dogger, et avant la sédimentation crétacée. Comme elle s'est déposée dans un environnement marin assez éloigné des côtes, il ne faut pas s'attendre à y rencontrer de fortes variations de faciès : la couche devrait être continue et à propriétés constantes latéralement et verticalement (ceci doit être confirmé par les travaux de reconnaissance). Bien qu'assez compacte, elle possède encore des propriétés plastiques, et se serait déformée au cours des événements tectoniques alpins sans se fracturer de façon importante (bien que ce point reste à vérifier). Quelques failles importantes entourent cependant le site, mais délimitent un "bloc" de près de 400 km² qui serait exempt de fractures. La couche est *a priori* très imperméable, conférant ainsi une quasi immobilité à l'eau qu'elle contient dans sa porosité. Ceci reste aussi à confirmer. De part et d'autre de cette couche existent des sédiments plus perméables, principalement calcaires, mais qui restent pauvres en eau et ne constituent pas des aquifères productifs, au moins au voisinage immédiat de la couche. Des aquifères exploités existent cependant en surface. La sûreté de ce site réside principalement dans la démonstration de l'imperméabilité, l'absence de fracturation, et donc de la très faible vitesse de circulation des eaux. La migration des radionucléides à long terme ne pourrait se faire alors que par diffusion, qui est extrêmement lente et permettrait aux radionucléides de disparaître par décroissance radioactive avant d'avoir pu migrer vers la surface. De plus la nature argileuse de la roche offre l'avantage de permettre une bonne rétention des radionucléides métalliques, qui sont adsorbés par les argiles et ainsi ralentis dans leur migration. La plasticité probable de la couche permettra aussi

une fermeture efficace des ouvrages de stockage, par convergence et serrage des galeries et puits d'accès sur le matériau de colmatage, à la fin des travaux.

Le deuxième site se trouve près de Marcoule, dans le Gard. Il s'agit là aussi d'une couche argilo-silteuse, de 300 m d'épaisseur, située entre 400 et 800 m de profondeur, où une surface utile de 15 km² semble disponible. Elle fait partie du bassin du Sud-Est, et s'est déposée au Vracono-Tavien (milieu du Crétacé, 100 millions d'années). Cependant, les conditions sédimentologiques de dépôt sont différentes du site de l'Est ; le site se trouve dans une zone de variation rapide d'épaisseur (zone de comblement rapide d'un fossé d'effondrement), pouvant entraîner des variations éventuelles de faciès (granulométrie, pourcentage d'argile, qui doivent être étudiées). Du point de vue tectonique, le site se trouve dans une zone plus active, plus soumise aux contrecoups des poussées alpines. À proximité du site, des failles actives comme celles de Nîmes et de Bagnols (d'orientation sud-sud-est nord-nord-ouest), ou de Mondragon et de Roquemore (d'orientation est ouest) semblent cependant délimiter un panneau de 600 km² qui serait relativement stable, et où ne devraient exister que de petites failles à faible rejet, scellées par des argiles (à confirmer). Du point de vue du confinement, cette couche posséderait les mêmes propriétés *a priori* favorables que les argiles de l'Est, tant du point de vue perméabilité que plasticité et environnement hydrogéologique (ceci reste à confirmer). Il faut cependant rappeler que ce site de la vallée du Rhône est très voisin du sillon creusé par le Rhône lors de la crise Messinienne, décrite ci-avant. La question qui se pose est d'estimer si une nouvelle crise de fermeture du détroit de Gibraltar pourrait se reproduire. La réponse à cette question est malheureusement "oui" ; il est même certain qu'à terme la Méditerranée sera entièrement refermée, du fait de l'avancée constante de l'Afrique vers l'Europe. La seule question est de savoir quand. Les meilleures estimations donnent un chiffre minimum de 500 000 ans. Il reste cependant à étudier où le nouveau creusement se mettrait en place, et s'il menacerait d'inciser la formation hôte choisie, et de mettre à nu les déchets. Ceci demande à être examiné plus avant.

Le troisième site est situé sur le seuil du Poitou, dans le département de la Vienne. Il s'agit d'un granite qui s'est formé il y a – 360 millions d'années, et qui au Lias (– 180 millions d'années) a été recouvert par des sédiments allant du Lias au Dogger. Deux aquifères très exploités sont situés dans ces formations sédimentaires calcaires recouvrant le granite. Celui-ci, qui constitue la roche cible, se trouve à 180 m sous le sol, et s'étend vers le bas jusqu'à au moins 1 000 m, où il surmonte probablement un autre granite légèrement plus jeune (voir figure 5). Depuis la mise en place de ces granites, et avant le dépôt sédimentaire, une épaisseur d'au moins quelques kilomètres de terrains a été érodée. Ce granite est, dans ses parties saines, très peu perméable, et ne laisserait pas s'écouler l'eau. Il est cependant, comme presque tous les granites, assez fortement fissuré, on compte en sondage environ 4 fractures au mètre. L'essentiel de ces fractures est colmaté par des remplissages argileux ou calcaires, mais un petit nombre d'entre elles sont ouvertes et perméables, même en profondeur, l'espacement moyen de ces fractures conductrices étant hectométrique (à confirmer). Il n'est pas établi si ces fractures

communiquent faiblement avec les aquifères sus-jacents, au moins dans la zone de La Chapelle Baton retenue. L'éventuel pouvoir de confinement de ce site sera limité à la dimension des "blocs" sains (non fracturés) que l'on pourrait y trouver ; le risque que les fractures hectométriques communiquent avec les aquifères pompés ne permettant pas d'exclure un transfert potentiel rapide vers la surface des radionucléides qui s'échapperaient (par diffusion par exemple) des blocs sains lorsque ils arriveraient dans ces fractures perméables. Il faut aussi noter que ce granite renferme des eaux salées (de composition se rapprochant d'une eau de mer, peut-être ancienne), de plus en plus concentrées lorsque l'on descend plus profond. La présence de ce sel pose les problème de son origine, de sa pérennité, et de la nature des éventuels écoulements qui pourraient y exister. Son influence sur la vitesse de corrosion des barrières ouvragées doit être examiné.

7. Analyse de sûreté d'un stockage géologique

7.1. Aléas naturels

Pour chacun des sites décrits ci-dessus, il faut se poser la question du devenir de la formation pendant la période où les déchets stockés conserveront leur radiotoxicité. Si la radioactivité décroît assez vite avec le temps pour la majorité des éléments, c'est-à-dire qu'en 10 000 ans, par exemple, la toxicité a très fortement décliné, il faut dire qu'après cette première phase, la toxicité résiduelle des déchets est extrêmement longue à totalement disparaître, puisque certains éléments ont des périodes très longues, comme le plutonium 239 (24 000 ans), le technétium 99 (213 000 ans), le césium 135 (2,3 millions d'années), le neptunium 237 (2,1 millions d'années) ou l'iode 129 (16 millions d'années). Il est donc nécessaire de se poser des questions concernant l'évolution du milieu sur des durées géologiques.

Dans le contexte tectonique français, et sur ces durées, les mécanismes naturels susceptibles de pouvoir porter atteinte au pouvoir de confinement de la barrière géologique semblent être principalement :

- 1) la fracturation, sous l'influence des mouvements différentiels ou d'ensemble de la tectonique des plaques. On donne (voir figure 7) une carte de l'activité sismo-tectonique de la France, qui fournit une image des zones où se concentre actuellement l'activité tectonique, à l'échelle historique ;
- 2) les effets des variations climatiques, qui pourraient engendrer des modifications du régime des eaux souterraines. Si, au vu des climats passés au moins, le risque est faible de voir un glacier s'établir sur l'un quelconque des trois sites Français, en revanche, la variation du niveau des mers, donc l'érosion des fleuves et leur enfoncement, est certain, de même que l'installation d'un régime périglaciaire.

En revanche, des phénomènes plus hypothétiques, dans le contexte français, sur les sites considérés et pour des durées de quelques millions d'années, seraient l'apparition de nouvelles manifestations volcaniques, la chute de météorites (dont la probabilité, uniforme sur Terre, est estimée à 2×10^{-5} /an pour une taille supérieure à 1 km), l'ouverture d'un nouvel océan par fracturation de la croûte continentale, ou la création de nouvelles chaînes de montagnes. On peut considérer que leur probabilité d'occurrence est trop faible pour devoir être prise en compte.

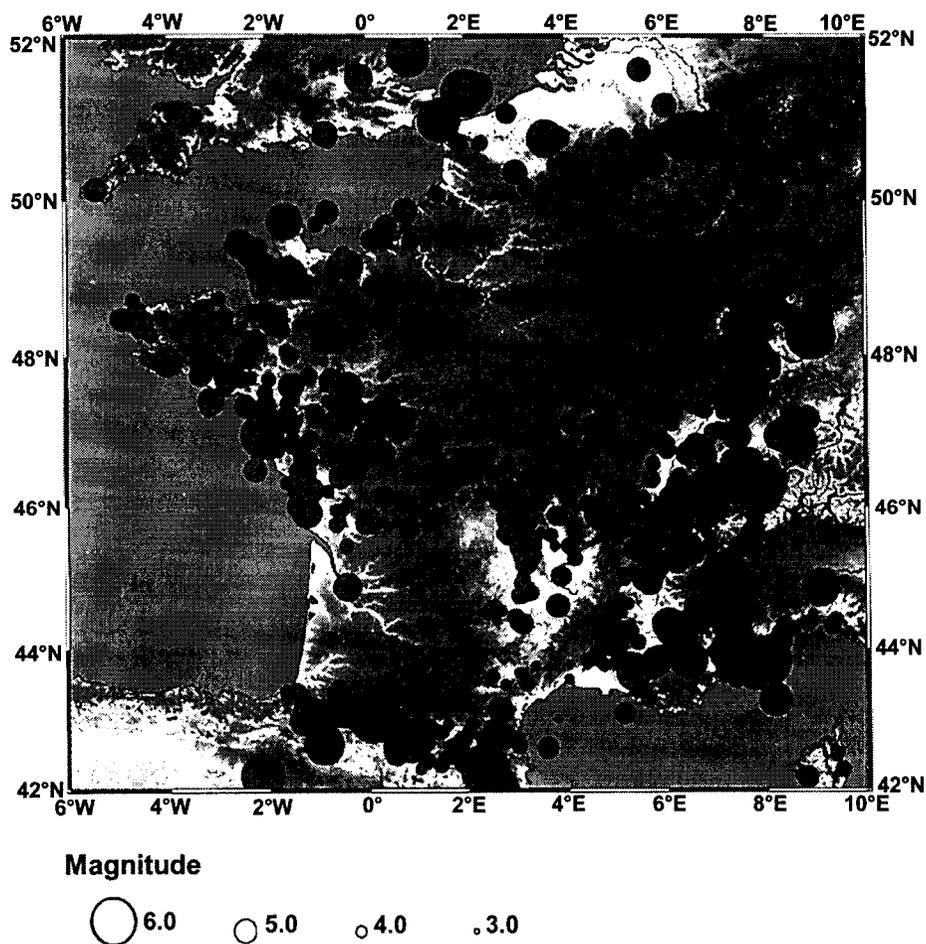


Figure 7 : Les séismes historiques en France
(reproduit d'après CEA-IPSN-BERSSIN, 1997).

7.2. Aléas d'origine anthropique

Ces aléas sont de deux natures différentes. La première est liée à la présence des déchets dans le sous-sol, la seconde aux actions futures des générations qui nous suivront. Ces deux sources d'incertitude sur le devenir du stockage doivent bien sûr être considérées en même temps que les aléas naturels.

Les effets du stockage lui-même sur la roche hôte, vis-à-vis du confinement, sont nombreux et engendrent donc de nombreuses incertitudes. Les déchets, principalement ceux de type C, engendrent de la chaleur. Celle-ci chauffe le massif, qui donc se dilate et peut éventuellement se fracturer. Pour fixer les idées, cette dilatation va engendrer une élévation du niveau du sol de l'ordre du mètre, à l'endroit du stockage, mais sous forme d'un bombement très amorti. Il faut quelques centaines d'années pour que cet effet se manifeste, et plusieurs milliers pour qu'il se résorbe. Il est clair que ceci n'est pas observable expérimentalement, à l'échelle d'espace et de temps d'un stockage, et doit être déterminé par modélisation à partir d'expériences à échelle réduite. Cette chaleur engendrera des effets mécaniques, et de convection thermique sur les fluides contenus dans la porosité. Les déchets sont aussi susceptibles de former des gaz, par décomposition des éléments organiques contenus dans les déchets B, par corrosion des parties métalliques, ou par radiolyse. Ces gaz peuvent se dissoudre dans l'eau et diffuser ou être entraînés par convection ; ils pourraient en revanche, si le taux de production dépasse le taux de diffusion ou convection, s'accumuler, former une phase séparée dont la pression pourrait, à terme, dépasser la limite de rupture de la roche et créer une fracturation nouvelle, au moins locale. D'autres effets sont également à étudier : du point de vue mécanique, les puits et galeries d'accès au stockage, et les emplacements de stockage eux-même, seront rebouchés avec des matériaux appropriés (qui restent encore à définir, pour chaque site). Leur porosité, perméabilité et résistance mécanique seront différentes de celle des roches en place. Une fois le stockage fermé, quel va être le devenir de ces remblais, sur le plan mécanique et minéralogique, et leur rôle vis-à-vis de la compaction des roches en place, si elles sont plastiques, ou sur la qualité des serrements, si les roches ne sont pas plastiques. Ces remblais vont-ils jouer le rôle de chemins préférentiels pour les écoulements ? Un dernier point concerne les effets géochimiques induits par la présence du stockage. Ainsi par exemple, si le stockage contient beaucoup de ciment, le pH des eaux va devenir basique, ce qui est *a priori* favorable vis-à-vis de la solubilité des métaux. Mais pour quelle durée ce pH élevé sera-t-il conservé ? Peut-il y avoir des effets pervers sur le confinement ? Un autre exemple est l'effet de la géochimie des eaux naturelles sur les barrières de confinement. Si des barrières argileuses de type Montmorillonite sont utilisées dans certains points du stockage, et si les eaux contiennent du potassium, peut-il y avoir à long terme une transformation des smectites en illites, avec perte partielle du pouvoir de confinement ?

Tous ces effets peuvent faire l'objet d'expériences et d'extrapolations à long terme, mais il subsistera toujours une incertitude, qui obligera à s'interroger sur les conséquences d'une défaillance de l'une ou l'autre des barrières, comme nous le verrons plus loin.

En ce qui concerne les actions des générations futures, il est clair que les incertitudes sont encore bien plus importantes. Il est admis par presque tous que la connaissance de la présence du stockage ne pourra pas être garantie sur le long terme : la mémoire institutionnelle la plus longue connue ne dépasse pas quelques siècles, et rien ne permet d'assurer que notre civilisation actuelle sera pérenne. Il faut donc admettre que des travaux ultérieurs pourront être entrepris par nos descendants sans savoir que le site a été utilisé pour y stocker des déchets. Il faut donc s'efforcer de minimiser les raisons que pourraient avoir les générations futures d'y réaliser des travaux. Un premier critère est l'absence de ressources dans le sous-sol, qui puisse conduire à des travaux de prospection de type minier ou pétrolier. Mais ceci n'est pas suffisant pour totalement exclure ce risque. Un risque encore plus important est le forage de puits pour prélèvement d'eau, pour l'irrigation ou l'eau potable. Il faut alors déterminer si ces prélèvements pourraient induire, dans le stockage, une circulation accrue des eaux souterraines et donc un retour plus rapide (et aussi plus direct vers l'homme, puisque utilisé pour la boisson ou l'irrigation) des radionucléides. Mais il est très difficile d'imaginer toutes les actions que les générations futures pourraient décider d'entreprendre dans le sous-sol, et la capacité éventuelle qu'elles auraient à détecter la présence des déchets et à mettre en œuvre des mesures de sauvegarde. Il n'est cependant, à mon avis, pas possible de négliger ces risques, et de ne prendre en compte, pour juger de l'acceptabilité d'un projet de stockage, que les phénomènes naturels. Si la France n'a pas retenu aujourd'hui le sel parmi les roches hôtes potentielles, c'est à la suite d'une réflexion menée dans le cadre d'une Commission présidée par le Professeur Castaing, qui avait conclu qu'en France, les ressources en sel devaient être considérées comme peu nombreuses, et dès lors que la probabilité de voir les générations futures les mettre en exploitation était significative, et ne pouvait être négligée.

7.3. Les aléas dus à l'imperfection des connaissances

Une troisième source d'incertitude doit être prise en compte. Elle résulte de la connaissance imparfaite que nous avons des mécanismes qui vont engendrer l'éventuel retour des radionucléides dans l'environnement. On peut distinguer trois sources d'incertitudes, qui sont toutes liées à la nécessité de pouvoir modéliser le fonctionnement du stockage, pour prévoir son comportement. La première est une incertitude sur les processus mis en jeu. Quelle est par exemple la bonne loi de lixiviation d'un verre qu'il faut adopter ? Peut-on utiliser une loi empirique, calée sur des observations s'étalant sur quelques années ? Doit-on au contraire établir une loi sur une base théorique (laquelle ?), et en estimer les paramètres ? On

appelle cette incertitude celle du choix du modèle conceptuel, et elle se pose pour chaque modèle utilisé.

La seconde incertitude est liée au choix des valeurs des paramètres utilisés dans les modèles. Quand bien même un modèle est choisi, quelles sont les valeurs des paramètres à y introduire ? Peut-on les mesurer, et les considérer comme constantes dans le temps ? Ce problème est le plus aigu pour les paramètres géologiques, car d'une part on sait que les roches sont spatialement assez hétérogènes, et que d'autre part il est impossible de mesurer leurs propriétés partout, ne serait-ce que parce qu'il est exclu de transformer le site en y forant de trop nombreux trous. On tente de résoudre cette difficulté en considérant que les paramètres des modèles sont incertains, et en les considérant comme des variables aléatoires, dont on cherche à caractériser la loi de distribution, plutôt qu'à vouloir estimer une valeur unique. On passe alors de modèles déterministes de comportement d'un stockage à des modèles stochastiques, donnant des probabilités de comportement, non des valeurs certaines.

La troisième source d'incertitude est liée au souci d'exhaustivité. Tous les mécanismes capables de jouer un rôle ont-ils été considérés ? Tous les aléas naturels ou anthropiques ont-ils été examinés ? La plus grande question est généralement celle des effets synergiques de plusieurs événements, qui pourraient – à tort – être considérés comme indépendants. Un exemple peut être pris dans une analyse de sûreté suédoise, un peu ancienne maintenant. On y considérait le cas pessimiste où avait disparu (pour une raison non spécifiée) l'anneau de bentonite qui doit entourer le conteneur de cuivre protégeant les déchets. On calculait donc le transport des radionucléides dans la roche, sans la bentonite, une fois le conteneur percé, pour le comparer au cas avec bentonite. Mais on n'avait pas pris en compte le fait que, sans la bentonite, la vitesse de corrosion du conteneur serait plus élevée, et donc que son percement interviendrait bien plus tôt, avec une radioactivité résiduelle bien plus élevée. La comparaison effectuée n'avait donc pas grand sens...

7.4. Le concept multibarrière

De cette description des aléas auxquels seront soumis les sites de stockage, on pourrait vouloir conclure qu'il vaudrait mieux s'abstenir, et ne pas stocker de déchets à vie longue en profondeur. C'est ce sentiment qui a conduit, dans la loi du 30 décembre 1991, à vouloir examiner la solution alternative du retraitement poussé et de la transmutation, qui ont pour but de réduire et la période et la quantité des déchets à vie longue qui seront à stocker en profondeur. Quelle autre attitude adopter ?

La première est de multiplier les barrières entre les déchets et l'homme, pour avoir un système de stockage dont la sécurité soit redondante, et ne repose pas sur une seule barrière, quelle qu'en soit la qualité. Ainsi par exemple, pour les déchets C, les verres nucléaires constituent une première barrière, confinant la radioactivité

par leur faible vitesse de lixiviation dans l'eau. Le conteneur métallique qui contient les verres, et le surconteneur en acier épais dont il est question d'entourer le précédent, constituent une deuxième barrière, qui empêche que la lixiviation des verres ne commence avant que le métal n'ait été corrodé. En Suède, l'essentiel de la sûreté est confiée à ce conteneur, que l'on a choisi de construire en cuivre, vu son excellente résistance à la corrosion. Autour de ce conteneur, on envisage de mettre une troisième barrière, fait d'une couche d'argile de quelques dizaines de centimètres d'épaisseur, qui d'une part protégera de l'eau le conteneur, ralentissant sa vitesse de corrosion, et d'autre part ralentira la migration des radionucléides, quand le conteneur sera corrodé, et que commencera la lixiviation des verres. Enfin, après cette argile, la formation géologique hôte puis les couches qui séparent cette roche de la surface forment l'ultime barrière. À cet égard, la solution de l'enfouissement dans les fonds sous-marins présentait l'avantage supplémentaire de fournir une barrière de plus, celle de l'océan, qui d'une part rendait très improbable tout scénario d'intrusion humaine accidentelle, et d'autre part constituait un immense réservoir de dilution. À ceux qui s'inquiéteraient de voir utiliser l'océan pour y diluer des déchets, il faut rappeler que tout stockage à terre qui se mettrait à relâcher des radionucléides dans l'environnement conduirait ceux-ci inéluctablement à se retrouver aussi dans l'océan, car à terre tous les effluents finissent toujours par arriver aux fleuves et donc à la mer. Ce retour à l'océan se fait de plus dans les zones côtières, les plus biologiquement actives et sensibles, et non pas dans les grands fonds, où la dilution serait bien meilleure, et l'activité biologique plus réduite.

Ce concept de dilution des effluents qui sont relâchés par une barrière géologique confinant un stockage mérite que l'on s'y arrête un instant. Il est clair que le choix d'un site de stockage doit en priorité être fondé sur le pouvoir de confinement des déchets par la barrière géologique. Si cependant, à long terme, un faible relâchement de radioactivité intervient, il est clair que le site où la dilution de ce relâchement dans l'environnement sera la plus élevée apportera une sûreté plus grande qu'un site où cette dilution serait plus faible. La dilution des effluents dans un lac, une rivière, la mer, ou un aquifère de surface à vitesse élevée est donc *a priori* favorable.

7.5. Le risque

Le concept de barrières successives et redondantes est donc susceptible d'apporter une sûreté qui devrait pouvoir être jugée satisfaisante au problème du stockage des déchets. Mais que veut dire "satisfaisante" ? Nous sommes maintenant obligés de parler de risque. Le risque, c'est à la fois l'estimation de la probabilité d'occurrence d'un événement délétère, et celle de la conséquence de cet événement. Quelqu'inconfortable que cela puisse sembler, il faut admettre que toute activité humaine peut comporter un risque, et que le risque nul n'existe pas.

Le fonctionnement d'un réacteur nucléaire n'est pas sans risques, et les cas de Three-Mile-Island et de Tchernobyl nous l'ont rappelé. La société actuelle semble prête à accepter un risque de l'ordre de 10^{-6} par an, c'est-à-dire qu'une activité dangereuse qui pourrait soumettre chacun d'entre nous à un décès (ou une effet mutagène) par million d'année serait acceptable (ou encore un décès par an par million d'habitant, ou une probabilité de décès anticipé de 10^{-4} sur une vie humaine). Par les connaissances acquises de l'effet de la radioactivité sur l'homme, la Commission internationale de protection radiologique a tenté d'établir une relation entre dose radioactive reçue (par irradiation externe, inhalation ou ingestion) et l'effet cancérogène ou mutagène. Ces travaux sont pour beaucoup basés sur l'analyse des effets à long terme des explosions de Hiroshima et Nagasaki, puis des accidents ou activités industrielles nucléaires ou des irradiations médicales. De temps en temps, cette Commission est amenée à modifier ses relations entre dose et effets, en fonction de nouvelles observations. Elle fait de plus, pour établir ses recommandations, une hypothèse forte, parfois controversée, qu'il existe une relation linéaire entre dose et effets, dans le domaine des faibles doses. Quoiqu'il en soit, une limite supérieure de dose acceptable a ainsi été définie pour toute activité touchant au nucléaire. Pour le public, et sur le long terme, cette limite est de 1 mSv/an (ou encore de 100 mrem/an). Ce chiffre est de l'ordre de la dose que reçoit en moyenne chacun d'entre nous, du fait de la radioactivité naturelle des roches. On a dénombré en effet au sein de l'écorce terrestre plus de 40 radionucléides naturels, issus de la matière stellaire primordiale, et donc à très longue période pour être encore présents aujourd'hui, ou fabriqués par exemple dans la haute atmosphère par le rayonnement cosmique, comme le tritium ou le carbone 14. L'*United nations scientific committee for the evaluation of atomic radiations* (UNSCEAR, 1993) évalue les doses naturelles moyennes reçues par l'homme à 2,4 mSv/an, dont 55 % dus à l'inhalation de radon 222, 21 % au rayonnement γ de l'écorce terrestre, 16 % au rayonnement cosmique, et 8 % aux radionucléides contenus dans le corps humain, principalement le potassium 40. On sait aussi que certains terrains très chargés en uranium peuvent conduire à des doses naturelles bien supérieures, en particulier par inhalation de radon, qui est un descendant de l'uranium. Comme la norme de 1 mSv/an s'entend pour toute activité nucléaire confondue, il est admis que 10 à 25 % de cette valeur est un chiffre acceptable pour les doses qui seraient engendrées par la présence d'un stockage. Il est parfois fait état, dans les analyses de sûreté poussées à très long terme, par exemple en Suède, de comparaisons entre les flux (en Becquerels/an) de radionucléides qui seraient relâchés par un stockage, et les flux de radionucléides issus naturellement de l'écorce terrestre (flux de radon, radioactivité relâchée par altération des roches...) sur une surface équivalente. Si une telle comparaison est intéressante, elle reste d'emploi difficile car la radiotoxicité et la mobilité dans l'environnement des éléments sont différentes, nécessitant des pondérations qui font à nouveau appel à des scénarios de transfert de la radioactivité vers l'homme.

7.6. Les scénarios

L'analyse de sûreté d'un stockage consiste donc à estimer le risque qu'il fait courir aux générations futures, qui ne peut être nul, mais qui doit être acceptable, c'est-à-dire conforme aux normes actuelles rappelées ci-dessus. Il faut donc estimer la probabilité d'occurrence des événements, et les conséquences en terme de doses reçues par les populations vivant sur place dans le futur. On voit tout de suite que l'exercice n'est pas simple. La manière la plus fréquente de s'en charger est de fonctionner par scénarios. Un scénario est un enchaînement d'événements qui se succèdent, sur l'horizon de temps que l'on s'est fixé. Aux États-Unis, par exemple, la loi fixe à 10 000 ans cet horizon. En France, la réglementation ne fixe pas de limite, mais considère que l'analyse doit être précise sur les premiers 10 000 ans, puis plus indicative au-delà. En Suède, par exemple, des analyses de sûreté ont été menées jusqu'au milliard d'années, ce qui devient de l'ordre de grandeur de la durée de vie résiduelle du Soleil, qui devrait passer à l'état de géante rouge dans cinq milliards d'années, et volatiliser la Terre...

Chaque scénario est bâti sur une hypothèse. Un scénario "normal" est que le stockage restera dans les conditions que nous observons aujourd'hui. Les barrières assemblées autour des déchets jouent leur rôle, et la dispersion de la radioactivité est très modeste, par le double jeu de la décroissance radioactive, et du faible taux de relâchement du stockage. Pour le montrer, on modélise le fonctionnement à long terme de chacune de ces barrières, en interaction permanente. Il faut donc connaître tous ces fonctionnements, en ayant su bâtir un modèle de comportement à long terme, à partir des observations à court terme. Un scénario "tendanciel" est celui où le stockage subit les variations considérées comme "probables" sur le site choisi. Il faut donc prévoir les variations du climat, l'érosion des vallées, la fracturation naturelle que pourraient connaître les roches du fait de la tectonique, *etc.* Les effets attendus du stockage sur le milieu (thermiques, géochimiques, *etc.*) doivent aussi être pris en compte. Là encore, le retour de la radioactivité dans l'environnement doit être modeste. Plusieurs scénarios différents doivent être examinés, car les prévisions d'évolution du climat sont bien sûr incertaines ; l'objectif n'est pas d'être précis dans les prédictions, mais de couvrir un ensemble de scénarios potentiels, qui donnent un échantillon des futurs possibles du site. La troisième catégorie de scénarios est celle des événements accidentels. Ils peuvent être d'origine naturelle (grande faille nouvelle par exemple, ou encore existence d'un défaut du site qui n'a pas été mis en évidence lors de la construction, ou aussi défaut de fabrication ou de mise en œuvre d'une barrière). Ils peuvent surtout être d'origine humaine (intrusion, usage de l'espace). À chaque scénario est associé une dose, reçue par le "groupe critique", c'est-à-dire par des personnes qui vivront sur le site et se trouveront, de par leurs pratiques, les plus exposées à la radioactivité. On ne peut éviter de devoir faire des hypothèses sur le mode de vie de ces populations, puisque les doses ne seront reçues que s'il y a exposition externe, inhalation, ou ingestion de cette radioactivité, ce qui demande de connaître les

habitudes alimentaires de nos descendants. Une certaine robustesse de ces hypothèses peut cependant être obtenue en utilisant la voie d'ingestion par l'eau de boisson : c'est bien souvent la voie la plus pénalisante pour le groupe critique, et il est vraisemblable que nos descendants continueront à boire environ deux litres d'eau par jour. Mais on peut imaginer d'autres voies plus pénalisantes (par exemple irrigation avec de l'eau contaminée et enrichissement peu à peu dans l'environnement et dans certains aliments).

Si aucun de ces scénarios ne conduit à des doses supérieures aux normes, on peut considérer que l'analyse de sûreté est positive. Notez que l'on a évité ainsi le difficile problème de l'estimation des probabilités d'occurrence de chaque scénario. Mais si un quelconque scénario conduit à une dose supérieure aux normes, il faut alors tenter d'estimer la probabilité d'occurrence du scénario. Pour donner un exemple, sur le site potentiel de stockage de déchets de type B "WIPP" dans le sel au Nouveau-Mexique aux États-Unis, le scénario le plus pénalisant résulte d'intrusions humaines par forages de reconnaissance pétroliers, qui traverseraient par mégarde (et oubli de son existence) le stockage. Il a été admis que la probabilité d'occurrence de ce scénario pouvait être estimée en prenant le nombre de forages réalisés depuis le début du siècle sur le bassin pétrolier avoisinant, et en l'affectant d'un coefficient égal au rapport de la surface du stockage à la surface totale du bassin pétrolier où se sont faits les forages. D'autres règles de cette nature peuvent être utilisées, mais ce sera quand même le bon sens qui sera utilisé en dernier ressort : il est toujours possible d'imaginer un scénario particulièrement pervers, et/ou un choix des paramètres incertains des modèles particulièrement conservatifs, pour que la dose reçue dépasse les normes. Dans les années 1970, on pensait pouvoir démontrer la sûreté d'un stockage en étudiant ces scénarios pessimistes (appelés *worst case*), espérant que, même dans ces cas, les doses resteraient faibles, mais cet espoir a fait long feu : il est toujours possible de cumuler les hypothèses pessimistes, et d'engendrer des doses plus ou moins élevées. Il faudra donc tenter de juger les scénarios sur leur plausibilité, et dire si le risque encouru paraît acceptable, *in fine*, sans trop vouloir s'attacher à quantifier des probabilités. Mais il est vrai que les opinions divergent sur ce point.

8. La réversibilité du stockage

Avant de conclure, disons quelques mots sur cette question, qui est fréquemment évoquée lorsque l'on parle de stockage de déchets en profondeur. Pourquoi évoquer la réversibilité d'un stockage ? *A priori*, on peut y voir deux raisons :

- 1) pour extraire les déchets, et leur donner une meilleure destination, grâce à des techniques que les générations futures pourraient mettre au point, et que nous n'imaginons pas aujourd'hui. Ceci peut recouvrir un objectif de valorisation énergétique ou métallique des éléments contenus dans les déchets, en

particulier si des combustibles irradiés sont stockés directement sans retraitement, car leur potentiel énergétique résiduel est fort (U, Pu) ;

- 2) pour porter remède à un stockage dont les conditions de sûreté n'apparaîtraient plus remplies, soit à la suite d'un défaut d'auscultation initiale, soit à la suite d'une bévue dans le fonctionnement prédit.

Sur la faisabilité technique d'une opération de reprise de déchets, on peut d'ores et déjà dire qu'elle est en permanence faisable ; sa difficulté et son "coût" (économique et en terme de doses reçues par le personnel qui sera chargé de la mettre en œuvre) seront cependant fonction de la date de cette décision. Pendant la phase opérationnelle de la mise en place des déchets, elle sera en permanence faisable ; il suffit que les machines prévues pour la mise en place soient également prévues pour la reprise, ce qui semble une mesure de toutes façons nécessaire en cas d'incident de manutention. Une fois le stockage fermé, une reprise des déchets est coûteuse (nécessité de creusement) mais sans véritable problème technique majeur, tant que les conteneurs seront restés étanches, c'est-à-dire pendant quelques centaines d'années au moins. Il se peut qu'il soit plus aisé de reforer des galeries un peu au-dessus des galeries initiales, pour travailler en terrain vierge, plutôt que de vouloir excaver les galeries remblayées. Par des puits verticaux, on atteindrait les conteneurs de déchets. Quand les conteneurs ont perdu leur étanchéité, et que la radioactivité a commencé à se répandre dans la troisième barrière et la roche hôte, il serait encore possible de retirer tout ou partie des déchets, mais à des "coûts" plus élevés et en utilisant des moyens de travail télécommandés.

Sur le premier type de raisons de reprendre un stockage, il n'y a pas grand chose à dire, si ce n'est que les générations à venir, si elles décident de procéder à cette reprise, le feront en pleine connaissance du risque encouru, et de la nature des enjeux. Nous n'avons donc pas à nous en préoccuper outre mesure. Sur la deuxième raison de reprendre les déchets, il faut bien évidemment tout mettre en œuvre pour que le besoin ne s'en fasse pas sentir. On peut aussi choisir un concept de mise en place des déchets et de remblayage des galeries qui rende cette reprise éventuellement moins difficile, mais il faut par dessus tout s'interdire de mettre la sûreté à long terme du stockage en péril par des dispositions qui viseraient à faciliter une éventuelle reprise : le stockage est *a priori* une mesure définitive, et si au moment de sa mise en œuvre, sa sûreté ne semble pas définitivement acquise, mieux vaut abandonner le site, que de mettre en œuvre des dispositifs de récupération potentielle qui pourraient, à terme, nuire à la sûreté.

9. Conclusion

La démarche qui a conduit à concevoir le stockage des déchets nucléaires dans des formations géologiques en profondeur, et à l'état de cette question aujourd'hui, que j'ai voulu résumer ci-dessus, est relativement linéaire.

- 1) L'industrie nucléaire produit des déchets, il faut donc s'en débarrasser.
- 2) Ces déchets sont toxiques sur des durées longues, un stockage en surface ou proche de la surface ne saurait suffire, les risques anthropiques ou climatiques de dispersion sont trop élevés.
- 3) On trouve en profondeur des gisements miniers, c'est donc que la Terre est capable de confiner pendant des durées très importantes des métaux. Il suffit donc de reproduire ce que sait faire la nature.
- 4) L'analyse plus poussée des capacités de confinement d'une barrière géologique montre que ce confinement peut être réel, pour des sites bien choisis, en particulier s'il est allié à des barrières artificielles confinant à sa source la radioactivité (verres, conteneurs métalliques) ; cependant la démonstration de sûreté est délicate, et oblige à se projeter dans le temps sur des durées très importantes. Il est alors nécessaire de faire de nombreuses hypothèses sur l'avenir, tant sur les phénomènes naturels (climats, tectonique) que sur le comportement des barrières et sur leurs propriétés à long terme, ou sur le comportement des sociétés humaines du futur. Si de telles prévisions sont plausibles sur des durées de quelques siècles, elles peuvent être qualifiées de hautement hypothétiques pour des durées plus longues. De plus, la démonstration de sûreté peut être bien plus difficile à faire sur certains sites que sur d'autres, du fait des incertitudes qui peuvent les caractériser (incertitudes sur la connaissance ou sur le devenir).
- 5) Devant cette constatation, on peut observer aujourd'hui trois tendances : la première est de donner un poids très important, dans la démonstration de sûreté, aux barrières ouvragées. C'est l'option prise par exemple par la Suède, qui préconise de confiner les déchets dans des conteneurs en cuivre épais, dont la résistance à la corrosion devrait se prolonger sur des millions d'années, en situation normale. La barrière géologique sert alors simplement à garantir au cuivre des conditions géochimiques où sa vitesse de corrosion est minimale. La deuxième est de rechercher les moyens d'extraire des déchets les éléments à vie longue, pour les détruire dans des réacteurs ou accélérateurs en les transmutant. Seuls seraient alors stockés en profondeur des déchets à vie plus courte, ou en faible quantité, qui ne poseraient pas de problème à long terme ; c'est l'un des axes de la loi du 30 décembre 1991 votée en France. La troisième est de rechercher un site de stockage où le confinement de déchets non retraités ni séparés puisse être réalisé, en limitant arbitrairement la portée des analyses de sûreté, afin de pouvoir réaliser une démonstration de sûreté jugée acceptable. C'est le cas par exemple de l'Allemagne, qui a décidé que le scénario d'une intrusion humaine dans un dépôt dans le sel, jugée non réaliste, ne serait pas analysé. C'est aussi le cas des États-Unis, où la décision de limiter à 10 000 ans la durée pendant laquelle sera démontrée la sûreté, revient à admettre que les doses éventuellement délivrées par les radionucléides de très longue période sur le long terme ne seront pas considérées.
- 6) Notons enfin que certains pays ont décidé simplement de surseoir à toute décision, c'est le cas par exemple de l'Angleterre, où le stockage en profondeur

des seuls déchets B est envisagé (bien que le site initialement retenu de Sellafield pour ce stockage vienne d'être abandonné par le Gouvernement anglais, par suite de doutes sur la faisabilité du projet), le devenir des déchets C étant laissé en suspens ; c'est le cas de l'Italie, qui a cessé tout programme de recherche en matière de déchets nucléaires. Notons aussi que la solution des fonds sous-marins, ou celle des îles désertiques, qui possèdent de réels attraits du point de vue de la sûreté, et pourraient faire l'objet de programmes multinationaux ou internationaux (alors que le stockage dans un pays de déchets d'un pays tiers est à l'heure actuelle pratiquement un sujet tabou) sont, pour des raisons politiques, écartées.

Remerciements

L'auteur tient à remercier Messieurs F. Boyer, M. Demange, J.-C. Macquar, J. Pellissier-Tanon, T. Tabti, J. Thibieroz, pour leurs conseils et commentaires pendant la mise au point de ce texte, P.C. de Graciansky pour de très nombreuses suggestions, en particulier à la section 5, et enfin D. Virlogeux et l'IPSN pour l'autorisation de reproduire les figures 5 et 7, inédites.

Bibliographie

- Allègre C.J., *L'écume de la Terre* (Fayard, Collection Pluriel, Paris, 1983).
- Barescut J.C. and Michelot J.L., Constraints on transport in the Tournemire clay site, *J. Contaminant Hydrology, Special Issue, Migration'95* (1997) à paraître.
- Bear J., de Marsily G. and Tsang C.F., Editors, *Flow and transport in fractured rocks*, (Academic Press, Orlando, 1993).
- Boilot G., *La dynamique de la lithosphère* (Masson, Paris, 1996).
- Bourg O. and Davy P., Connectivity of random fault networks following a power-law fault length distribution, *Water Resour. Res.* (1997) à paraître.
- Cacas M.C., Ledoux E., de Marsily G., Tillie B., Barbreau A., Durand E., Feuga B. and Peaudecerf P., Modelling fracture flow with a discrete fracture network: calibration and validation - 1. The flow model, *Water Resour. Res.* **26** 1 (1990) 479-489.
- Cacas M.C., Ledoux E., de Marsily G., Barbreau A., Calmels P., Gaillard B. and Margritta R., Modelling fracture flow with a discrete fracture network: calibration and validation - 2. The transport model, *Water Resour. Res.* **26** 1 (1990) 491-500.

Caron J.M., Gauthier A., Schaaf A., Ulysse J. et Wozniak J., Comprendre et enseigner la planète Terre (Ophrys, Paris, 1989).

Commission nationale d'évaluation relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs, Rapport n°1 (1995).

Commission nationale d'évaluation relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs, Rapport n°2 (1996).

Cosenza P. et Goyerechi M., Évolution de la perméabilité du sel gemme sous sollicitations mécano-chimiques. *Bull. Soc. Géol. Fr.* (1997) à paraître.

Hammersley J.M. and Welsh D.J.A., Percolation. Theory and its ramification, *Contemp. Phys.* **21** (1980) 593-605.

de Marsily G., Barbreau A., Ledoux E. and Margat J., Nuclear waste disposal: can the geologist guarantee isolation ? *Science* **197/4303** (1977) 519-527.

de Marsily G., Quantitative hydrogeology, groundwater hydrology for engineers (Academic Press, New-York, 1986).

Milankovitch M., Handbuch der Klimatologie (Teil I., Koppen A. und Geiger, Berlin, 1930).

Ministère de l'Industrie, Règle fondamentale de sûreté n°III.2.f, Stockage définitif des déchets radioactifs en formation géologique profonde, *Journal Officiel de la République Française*, 1^{er} juin 1991.

Nicolas A., Les montagnes sous la mer. (BRGM, Orléans, 1990).

OCDE, Nuclear energy agency, Feasibility of disposal of high level radioactive waste into the seabed. Vol. 1-8. (OECD Publications, Paris 1988).

Renard M. et Pomerol C., Éléments de géologie (Armand Colin, Paris, 1989).

Savage D. Ed., The scientific and regulatory basis for the geological disposal of radioactive waste (J. Wiley & Sons, Chichester, UK, 1995).

Stanners D.A., de Marsily G., Behrendt V., Ensminger D.A., Flebus C., Hutchinson B.L., Kane P., Karpf A., Klett R.D., Mobbs S. and Poulin M., Radiological assessment of the consequences of the disposal of high level radioactive waste in sub-seabed sediments, *Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle* **15** 2-3 (1991) 99-119.

UNSCEAR, United nations scientific committee for the evaluation of atomic radiations, Annual Report (United Nations, New York, 1993).

**Normes de
radioprotection
et effets biologiques**

11 Principes et normes de radioprotection*

Henri Métivier (**)

1. Introduction

Il y a un siècle, fin 1895, Konrad Röntgen découvrait les rayons X, quelques mois plus tard, en mars 1896, Henry Becquerel décrit pour la première fois la radioactivité. On mesure, depuis les découvertes de ces deux hommes, leurs conséquences pour l'histoire de l'humanité, la radiographie médicale a fait rapidement progresser la médecine, l'énergie nucléaire est aujourd'hui la source principale d'électricité de notre pays.

Rapidement, on a su que les rayonnements provoquaient des effets sur l'homme. Ainsi, trois mois après la découverte des rayons X, on décrivait leur effet irritant pour l'œil. Peu de temps après sa découverte, Becquerel s'aperçut qu'un tube de matière radioactive gardé dans la poche de sa veste avait provoqué un érythème de la peau, comparable à un coup de soleil. Vinrent ensuite les effets néfastes observés chez les radiologues et dès lors il apparut le besoin de réglementer l'utilisation des rayonnements ionisants. Dès 1913 en Allemagne, et 1915 en Grande-Bretagne, on parla de réglementation pour protéger les patients et le corps médical, mais ce n'est qu'en 1925 (Londres) et 1928 (Stockholm) que l'on créa, lors des congrès internationaux de radiologie, deux commissions

(*) Cet article est extrait de la collection des Techniques de l'Ingénieur (Génie Nucléaire).

(**) Institut de protection et de sûreté nucléaire, BP 6, 92265 Fontenay-aux-Roses Cedex.

internationales chargées l'une de définir les unités concernant la radioactivité et leur effets avec la matière, la Commission internationale pour les unités de rayonnements et leur mesure, la CIUR, l'autre de définir des règles de radioprotection, la Commission internationale de protection radiologique, la CIPR. Aujourd'hui ces deux commissions existent toujours, la CIPR a régulièrement émis des recommandations généralement reprises dans les réglementations nationales. Depuis l'origine cette réglementation est devenue de plus en plus contraignante, pour que l'utilisation des rayonnements ait le moins de conséquences possibles sur l'homme et son environnement.

Pour s'appliquer, cette réglementation s'appuie sur des concepts qui nous permettent d'évaluer les risques que courent les hommes au contact de ces rayonnements et, connaissant ces risques, d'établir des normes tant pour les travailleurs que pour le public. C'est ce que nous allons expliquer dans le présent chapitre.

2. Origine des règles de la radioprotection

2.1. Radioactivité et exposition, quelques définitions

Nous allons rappeler ici quelques notions nécessaires pour comprendre et appliquer les règles de radioprotection.

La première notion est la *radioactivité*. Elle est liée à la désintégration de noyaux d'atomes, appelés pour cette raison radioactifs. Lors de cette désintégration, il y a émission de particules α (noyau d'hélium) ou β (électron) qui peuvent être accompagnés de rayonnements électromagnétiques γ lorsque l'atome produit retrouve un état stable. Ces désintégrations peuvent se produire dans des corps rencontrés dans la nature, c'est la *radioactivité naturelle* ; elles pourront être provoquées par des actions de l'homme, c'est la *radioactivité artificielle*. Qu'elle soit d'origine naturelle ou artificielle, la radioactivité se manifeste de la même façon, se mesure par les mêmes méthodes et produit les mêmes effets sur l'homme. Aujourd'hui, l'unité de mesure de la radioactivité est le *becquerel*, notée Bq⁽¹⁾, qui correspond à une désintégration par seconde. Si pour un poids égal, un produit est plus radioactif qu'un autre, on dit que sa *radioactivité spécifique* est plus grande.

Cette radioactivité est partout présente. Notre terre est faiblement radioactive, notre corps aussi. Ainsi le potassium, essentiel pour notre vie, est très faiblement radioactif, notre corps en contient environ 160 grammes, dont la radioactivité est d'environ 6 500 Bq. Ainsi chaque seconde, 6 500 désintégrations dues au potassium se produisent dans notre corps.

(1) L'ancienne unité est le curie (Ci). $1 \text{ Ci} = 37 \times 10^9 \text{ Bq}$, il correspond à la radioactivité de 1 g de radium.

Le temps nécessaire pour que la moitié des atomes initialement présents se soit désintégrée s'appelle la *période radioactive*. Au bout d'une période, l'activité d'un radioélément a diminué de moitié, au bout de deux périodes la matière est quatre fois moins radioactive, au bout de trois périodes, huit fois moins et ainsi de suite. Cette durée varie considérablement d'un atome à l'autre. Ainsi, le potassium 40 a une période de 1,3 milliard d'années, l'iode 131, 8 jours, le césium 137, 30 ans, le tritium, 12 années, le technétium 99m utilisé pour faire des examens médicaux, 6 heures, le plutonium 239, 24 000 ans.

L'irradiation d'un individu est une irradiation externe lorsque la source de rayonnement est à l'extérieur de l'organisme. Cette irradiation s'arrête dès que nous avons quitté le faisceau. À l'inverse, si la source radioactive est à l'intérieur de l'organisme, l'irradiation est appelée irradiation interne, elle continue tant que le radioélément n'est pas éliminé. En mangeant ou en respirant, nous incorporons chaque jour des radioéléments présents dans notre environnement. Leur quantité est faible. Dans des zones très contaminées, comme celles autour du réacteur accidenté de Tchernobyl, leur quantité est plus importante ; c'est pourquoi il a été interdit la consommation des produits locaux.

Si nous incorporons des radioéléments dans l'organisme, en mangeant des aliments contaminés par exemple, nous retiendrons plus ou moins longtemps les atomes radioactifs. La période biologique est le temps nécessaire pour que la moitié d'un radioélément absorbé soit éliminé naturellement. Cette période biologique est indépendante de la période radioactive. Ainsi, le tritium s'élimine avec une période biologique d'environ 10 jours, alors que sa période radioactive est de 12,3 ans ; pour le césium, cette période biologique est d'environ une centaine de jours chez l'adulte, moitié moins chez l'enfant, alors que la période radioactive est de 30 ans. À l'inverse, pour certains radioéléments, tel le plutonium, la période biologique est très longue ; environ 30 ans au niveau du foie, 50 ans au niveau de l'os. Un individu contaminé garde toute sa vie la trace d'une contamination par ce radioélément.

2.2. La Commission internationale de protection radiologique

Créée en 1928 la Commission internationale de protection radiologique est constituée d'experts entièrement indépendants des gouvernements, choisis par cooptation. Elle est constituée d'une commission principale et de quatre comités.

La commission principale comprend une quinzaine de membres. Les comités comprennent 15 ou 16 personnes. Tous ces experts proviennent d'environ une vingtaine de pays. La France a huit représentants pour la période 1993–1997. Tous les quatre ans, la CIPR renouvelle une partie de ses membres, ainsi qu'une partie de ses comités. Tous les deux ans, la Commission et ses comités se réunissent ensemble, les autres années, les comités se réunissent séparément.

Les présidents des quatre comités sont obligatoirement membres de la Commission, où ils rapportent les travaux de leur comité.

La CIPR émet régulièrement des recommandations aux utilisateurs de sources de rayonnement. Destinées à l'origine aux médecins radiologues, ces recommandations sont maintenant destinées à l'ensemble des professions soumises aux rayonnements ionisants qu'ils soient d'origine naturelle ou artificielle, mais aussi au public pouvant être exposé du fait d'activités industrielles ou par la radioactivité naturelle.

2.2.1. L'organisation de la CIPR

La Commission s'appuie sur les quatre comités pour émettre ses recommandations. Le travail de ces comités consiste uniquement à écrire des rapports à partir des données de la littérature scientifique. Ces rapports ne sont publiés qu'avec l'accord de la commission.

Le comité 1 étudie l'effet des radiations, il estime les risques de l'exposition aux rayonnements ionisants sur les organismes vivants et tout particulièrement chez l'homme. Il s'appuie pour ce faire sur les études d'autres organismes tels que les rapports du comité américain sur les effets biologiques des rayonnements ionisants (*Committee of the Biological Effects of Ionizing Radiation, BEIR*) ou ceux du Comité scientifique des Nations Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants (*United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR*⁽²⁾) ainsi que tout autre documents.

Le comité 2 calcule les valeurs des limites secondaires pour les irradiations interne et externe. Les limites primaires sont les limites de doses que la CIPR recommande de ne pas dépasser. Les limites secondaires sont, par exemple, des niveaux d'activité qui conduisent à une irradiation à un niveau de dose égal aux limites recommandées par la CIPR. Nous reviendrons sur ces limites dans la section 3.5.

La Commission considère que la protection radiologique doit également s'appliquer à l'exercice de la médecine, à la protection des patients et des travailleurs en radiologie, à la radiothérapie et à la médecine nucléaire. Elle s'appuie pour ce faire sur les travaux du comité 3.

Le comité 4 traite de l'application des recommandations de la Commission. Il est le point de contact avec les autres organisations internationales concernées par la protection ; la Commission de l'Union européenne, l'Agence internationale pour l'énergie atomique (l'AIEA est plus connue sous le nom d'agence de Vienne), le Bureau international du travail, l'Agence pour l'énergie nucléaire de l'OCDE, etc.

(2) À noter qu'à la différence de la CIPR les experts de l'UNSCEAR sont nommés par les représentants nationaux à l'agence de Vienne (AIEA). Ils parlent donc au nom de leur délégation nationale.

2.2.2. Les publications de la CIPR et leur devenir

L'élaboration des documents peut se faire soit directement par la Commission (Publication 60 par exemple) mais plus généralement ce sont les groupes de travail créés par les comités qui rédigent. Dans ce cas, le document est d'abord discuté par le comité et, quand celui-ci estime le document publiable, il le soumet pour approbation définitive à la Commission elle-même.

Les recommandations de la CIPR sont généralement reprises par les États. Ainsi pour la Communauté européenne, elles sont la base d'une directive européenne que les États membres sont obligés d'introduire dans leur législation ou leur réglementation. Pour les autres pays aucune structure similaire existe, c'est pourquoi plusieurs agences se regroupent (Agence internationale pour l'énergie atomique, l'Organisation de coopération et de développement économique, l'Organisation mondiale de la santé, le Bureau international du travail...) pour les transformer en "*Basic Safety Standards*" (BSS) utilisables comme tels par les pays qui le souhaitent. Enfin les États-Unis ont leur propre Commission de protection radiologique, la NCRP qui émet des recommandations quelques peu différentes de celles de la CIPR, bien que des représentants des États-Unis participent activement à la rédaction des BSS et que de nombreux experts américains soient membres de la CIPR.

À ce jour le niveau de qualité de radioprotection dans le monde est largement imputable à la CIPR. Tous les États adoptent quasiment les mêmes normes en matière de radioprotection, normes issues de ces recommandations.

La Commission a publié son premier rapport en 1928. Le premier rapport de la série actuelle, renuméroté *Publication 1* (1959), contenait les recommandations approuvées en septembre 1958. Des recommandations générales ont été présentées ultérieurement dans les *Publications 6* (1964), *9* (1966) et *26* (1977). L'avant dernière recommandation de la CIPR (*Publication 26*) a servi à établir la directive des Communautés européennes de juillet 1982, ayant force de loi actuellement dans les pays de la Communauté. Ces directives sont reprises par le *Journal Officiel français* daté du 12 octobre 1986 sous la forme d'un décret, le décret n° 86-1103 du 2 octobre 1986, relatif à la protection des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants.

Depuis, la CIPR tenant compte des nouvelles données concernant la population des survivants des bombardements d'Hiroshima et de Nagasaki, et la réestimation des facteurs de risque publiée par l'UNSCEAR en 1986 a émis en 1990 de nouvelles recommandations (*Publication 60*). Ce document a servi de base pour la rédaction des nouveaux "*Basic Safety Standards*" définitivement acceptées par les organismes internationaux en septembre 1994. Pour l'Union européenne, des directives prenant en compte les évolutions entre la *Publication 26* et la *Publication 60* seront probablement publiées dans l'année 1995, elles seront, comme toutes directives, contraignantes pour les États de l'Union qui devront, dans les cinq ans, les intégrer dans leur législation. Enfin, les États-Unis, en 1992, ont

intégré dans leur législation les limites de doses recommandées par la *Publication 26*. Il sera nécessaire de revenir sur cette particularité plus tard.

Pendant ces dernières décennies, on a constaté une évolution importante des recommandations. Au départ et pendant une partie des années 1950, on avait tendance à considérer le respect des limites de doses individuelles comme un résultat satisfaisant. Depuis on a beaucoup insisté sur le besoin de maintenir toutes les expositions aussi basses que possible, compte tenu des facteurs économiques et sociaux. Ceci a eu pour effet de restreindre le nombre de situations dans lesquelles les limites de dose jouent un rôle majeur dans le système de protection. Ceci a aussi changé la finalité des limites de dose ; initialement leur principale fonction était d'éviter l'apparition d'effets non cancéreux, aujourd'hui elles sont destinées à limiter la fréquence de cancers et des effets héréditaires radio-induits.

Les modifications entre les recommandations de 1977 (*Publication 26*) et de 1990 (*Publication 60*) portent essentiellement sur le niveau des limites de doses et la simplification de certaines définitions. Pour les principes généraux le nouveau texte est peu modifié. Vivant une période de transition, nous serons amené à parler parfois de la *Publication 26* pour expliquer les modifications apportées dans la *Publication 60*.

3. Énoncés des principes

La différence entre la protection et la sûreté est que la sûreté se rapporte à la machine ou à l'installation, la protection se rapporte à l'homme et à son environnement. Celui-ci doit être pris au sens large du terme, c'est-à-dire environnement à l'intérieur des locaux, telle l'atmosphère des locaux, et à l'extérieur dans l'eau, le sol ou l'air. En matière d'environnement, il est acquis qu'un système protégeant l'homme au niveau individuel protège *de facto* l'espèce dans son ensemble et l'environnement dans lequel il vit.

3.1. Nature des effets

La protection contre les rayonnements a pour but de protéger de ses effets les individus, leurs descendants et le genre humain dans son ensemble, tout en permettant d'exercer des activités qui sont jugées nécessaires.

La première notion est le *détriment*. Il définit les effets préjudiciables, sur la santé de l'homme, d'une exposition aux rayonnements. Les effets préjudiciables dont il y a lieu de se protéger comprennent les effets *somatiques* lorsqu'ils se manifestent chez l'individu exposé lui-même et les effets *héréditaires* lorsqu'ils affectent sa descendance.

Parmi les effets somatiques les radiations ionisantes causent à la fois des *effets stochastiques* et *déterministes*, dans les tissus irradiés.

Les effets *déterministes* (non stochastiques) sont ceux pour lesquels la gravité de l'effet varie avec la dose et pour lesquels il y a un seuil. Ce sont par exemple, la cataracte, les atteintes non malignes de la peau, l'appauvrissement cellulaire de la moëlle osseuse, des dommages cellulaires dans les gonades provoquant une baisse de la fertilité, *etc.* Pour l'ensemble de ces transformations, la gravité de l'effet dépend de l'importance de la dose reçue et il existe une dose-seuil au-dessous de laquelle on n'observe aucun effet nocif. Ces seuils sont différents selon l'effet observé.

Les *effets stochastiques* sont ceux pour lesquels c'est la probabilité d'apparition de l'effet et non sa gravité, qui est considérée comme une fonction, sans seuil de la dose. Ce sont par exemple les effets héréditaires et les cancers. Ainsi la gravité du cancer dépend de sa nature et non de la dose d'exposition, c'est sa fréquence qui dépendra du nombre de personnes exposées et de la dose reçue par chacun.

Pour mieux illustrer la différence entre les effets déterministes et les effets stochastiques, nous pouvons prendre exemple sur les radiations ultraviolettes, non ionisantes. Si des citoyens s'exposent sans précautions et longuement au soleil durant leurs vacances, on observera chez la totalité des personnes exposées, d'abord des "coups de soleil" si l'exposition n'est pas trop forte, puis des brûlures si l'exposition est forte. On peut éviter ces effets si l'on ne dépasse pas un seuil d'exposition. Cependant, parmi ces personnes, certaines développeront plus tard, un cancer de la peau (mélanome). Heureusement leur nombre est limité, il est directement proportionnel au produit du nombre de personnes exposées et du temps passé au soleil par chacun.

La *Publication 60* introduit dans sa définition du risque un nouveau concept, plus réaliste qui est la notion de perte d'espérance de vie et de qualité de vie. Ainsi un cancer de l'enfant n'aura pas le même poids qu'un cancer du vieillard, c'est ce que ressentent traditionnellement les populations.

3.2. Le cadre conceptuel de la protection radiologique

Toute personne dans le monde est exposée à des rayonnements venant de sources naturelles et artificielles. Le but premier de la protection radiologique est de fournir un niveau de protection adapté à l'homme sans limiter indûment les pratiques bénéfiques.

Le système de protection radiologique, appliqué à ce jour dans le monde entier, est basé sur l'hypothèse que même de faibles doses de rayonnement peuvent produire des effets stochastiques nocifs sur la santé. Étant donné qu'il y a des seuils pour les effets déterministes, il est possible de les éviter en limitant les doses délivrées aux individus. L'objectif de la protection radiologique est donc d'empêcher l'apparition d'effets déterministes, en maintenant les doses en dessous

des seuils appropriés, et de s'assurer que toutes les mesures raisonnables sont prises pour limiter l'induction d'effets stochastiques à des niveaux soit imperceptibles, soit très faibles et considérés comme acceptables.

3.2.1. Les activités

La *Publication 60* classe les activités humaines en deux groupes :

- certaines activités humaines augmentent l'exposition aux rayonnements soit en augmentant l'exposition des individus, soit en augmentant le nombre d'individus exposés. Ces activités sont appelées des "*pratiques*". C'est le cas d'une installation nucléaire ;
- d'autres activités humaines peuvent diminuer l'exposition totale, soit au niveau des individus soit au niveau du nombre d'individus exposés. Ces activités sont appelées "*interventions*". C'est le cas d'une décontamination d'un site pollué.

Les dispositions seront différentes selon qu'elles doivent être appliquées à une pratique conduisant à des expositions ou à une intervention visant à réduire les expositions. Dans le cas d'une nouvelle pratique on peut l'accepter telle quelle, l'accepter après avoir apporté des modifications, ou la rejeter catégoriquement. Les pratiques existantes peuvent être réexaminées à tout moment. On associera donc une pratique à la notion de *réglementation*. Si des accidents se produisent, ils donnent lieu à des situations pour lesquelles la seule action possible est l'intervention. La notion de réglementation ne s'applique plus, il appartient aux acteurs ayant à gérer la crise d'agir dans un concept d'optimisation adapté à la situation. Il en va de même pour l'irradiation naturelle où la décision de réduire ses éventuels effets (taux de radon dans les habitations par exemple) ne peut découler éventuellement, que d'une décision politique optimisée en termes de Santé publique.

Pour l'*irradiation médicale*, il faut distinguer clairement l'irradiation du patient qui attend un bénéfice de cette irradiation, et pour lequel il n'y aura donc pas de limites réglementaires, de celle des travailleurs auxquels la réglementation doit s'appliquer. Ce principe énoncé ne doit toutefois pas entraver l'objectif de diminution de doses aux patients tout particulièrement pour les examens de dépistage. Néanmoins il apparaît aujourd'hui nécessaire d'introduire un concept nouveau pour estimer les irradiations des patients si l'on veut comparer l'irradiation médicale des populations. En effet le bon sens nous conduit à préférer une irradiation médicale paraissant "élevée", associée à une espérance de vie longue (pays occidentaux), à une irradiation médicale faible associée à un système médical peu performant (pays en voie de développement). Ceci montre bien que le risque lié aux effets des rayonnements peut être toléré lorsqu'il est limité et justifié.

3.2.2. Le système de protection radiologique

Le système de protection radiologique pour les pratiques existantes ou envisagées est basé sous les trois principes suivants.

1) La justification.

Aucune pratique ne doit être adoptée à moins qu'elle n'apporte un avantage suffisant aux individus exposés ou à la société. À partir des quelques exemples suivants, il est possible de voir que la réponse peut différer d'un groupe à un autre, d'un pays à un autre, compte tenu du contexte socioculturel.

- Électronucléaire : la France a choisi cette source d'énergie, elle y trouve un bénéfice, cette activité lui semble justifiée.
- Irradiation médicale : personne ne nie les bénéfices apportés par la radiologie non seulement à l'individu, mais aussi à la collectivité qui voit l'état de santé de sa population s'améliorer.
- Détecteurs d'incendie : il faut se poser la question du risque de cancers associés à la fabrication et à la dissémination accidentelle potentielle des sources d'américium qui sont utilisées dans ces appareils au bénéfice immédiat de la détection précoce d'un incendie, notamment dans les locaux où la population est dense (lieux publics, salles de spectacles, etc.). Ces détecteurs, compte tenu de la comparaison des risques, sont justifiés.
- Jouets lumineux : on ne voit aucun bénéfice à procurer aux enfants des jouets radioactifs (luminescents), cette pratique est totalement injustifiée. Elle n'est pas tolérée en France.

2) L'optimisation.

Le principe d'optimisation découle directement de l'impossibilité actuelle de fonder sur des bases scientifiques incontestables l'existence ou la non-existence d'un seuil pour les effets stochastiques. Dans le doute la CIPR a opté pour une politique de prudence qui s'est traduite par l'adoption d'une relation dose-effet linéaire sans seuil. Partant de cette relation sans seuil, il faudra que pour toute source associée à une pratique, le niveau des doses individuelles, le nombre de personnes exposées, ainsi que la probabilité de subir des expositions quand ces dernières ne sont pas certaines d'être reçues, soient maintenus aussi bas qu'il est raisonnablement possible. Ceci a un coût, c'est pourquoi on estime que cette réduction doit tenir compte des facteurs économiques et sociaux. C'est le principe *ALARA* : *As Low As Reasonably Achievable*.

Ce principe, pour être mis en œuvre, nécessite d'introduire un coût à la dose évitée et par là même un coût à la vie. Il est évident aujourd'hui que ce coût n'est pas identique d'une industrie à une autre, les sommes investies pour limiter les risques dans l'industrie nucléaire sont largement au-dessus de celles investies dans d'autres activités et il y a lieu de s'interroger sur cette disparité qui induit des iniquités entre différents travailleurs ou individus.

Notons qu'au principe *ALARA* certains voudraient substituer le principe *ALATA* (*As Low As Technically Achievable*), mais on voit rapidement les

limites d'un tel système s'il n'y a pas de réflexion économique. Il ne peut qu'augmenter l'iniquité entre travailleurs ou populations.

3) La limitation.

Si une pratique est bénéfique pour un groupe ou un État (justification), si ces groupes ou États ont réduit le risque en limitant l'exposition (optimisation), ceci ne doit toutefois pas se faire en sacrifiant l'individu. C'est pourquoi l'exposition des individus qui résulte de la combinaison des pratiques doit être soumise à des limites de dose afin qu'aucun individu ne soit exposé à des risques radiologiques jugés inacceptables dans le cadre de ces pratiques et dans des circonstances normales.

L'application simultanée des trois principes est nécessaire. Une activité peut par exemple se justifier selon des critères socio-économiques propres à une nation dans un moment donné, mais si elle est justifiable pour la collectivité (principe de justification) elle doit respecter l'individu (principe de limitation) et tendre vers un système le plus efficace possible, compte tenu des différents coûts de la protection (principe d'optimisation).

À ces principes, la nouvelle *Publication 60* ajoute, ce qui paraît évident, qu'une bonne protection n'est pas une protection où seules les limites sont basses mais où elles sont respectées. C'est pourquoi il appartiendra aux décideurs d'édicter des règles qui soient applicables et ne pas satisfaire uniquement à des groupes de pression. Ainsi pour revenir à la position des États-Unis évoquée plus avant, les statistiques de l'OCDE montrent bien que, malgré des limites réglementaires plus élevées, les travailleurs des centrales nucléaires ne reçoivent pas des doses supérieures à leurs collègues européens tant le principe d'optimisation est entré dans les mœurs américaines. À l'inverse l'histoire récente nous a appris que des normes sévères n'étaient pas le gage d'irradiations faibles dans les pays de l'ex-URSS.

Il est donc important que les principes fondamentaux soient traités comme un système cohérent. Aucune partie ne doit être prise isolément. Une simple conformité aux limites de dose n'est pas une démonstration pertinente de la performance du système.

4. Définitions des quantités utilisées en protection

Cette section définit les principales grandeurs permettant la mesure de l'effet du rayonnement sur la matière vivante et les individus. Nous vivons la transition entre un système que nous appellerons *Publication 26* et qui régissait encore la législation communautaire, donc française en 1995 et le système proposé par les nouvelles recommandations de la CIPR, que nous qualifierons maintenant "*Publication 60*" et qui sera repris pour l'essentiel dans la future réglementation. Compte tenu du fait que dans de nombreux pays, les nouvelles définitions des

unités sont adoptées bien que parfois non encore réglementaires, ce sont donc celles de la *Publication 60* qui seront décrites ci-dessous. Il sera donc rappelé, lorsqu'il nous le semblera utile, la définition ou les valeurs numériques se rapportant au système précédent (*Publication 26*).

4.1. Dose absorbée

La dose absorbée D est l'énergie cédée à la matière (aux tissus) par unité de masse. Elle s'exprime dans le système international d'unités en *gray* (Gy), qui vaut 1 joule par kilogramme. L'unité ancienne encore utilisée est le *rad* qui vaut 10^{-2} Gy. La dose absorbée est définie par les physiciens en un point de la matière. Par souci de simplification on la considère en radioprotection comme une moyenne dans un tissu ou un organe. Pour éviter la confusion entre les deux définitions, a été introduit récemment le terme de *dose absorbée à l'organe*.

Cette simplification s'accompagne d'une réserve pour les effets déterministes, liés aux doses élevées, où cette notion de moyenne peut se révéler inexacte. C'est le cas par exemple de l'irradiation superficielle de la peau par des rayonnement β . Dans ce cas une définition différente de la dose pourra être employée, ceci devra être spécifié.

4.2. Dose équivalente

La probabilité d'apparition d'un effet stochastique ne dépend pas seulement de la dose absorbée mais aussi du type de rayonnement et de son énergie. Ceci est pris en compte en pondérant la dose par un facteur lié à la nocivité du rayonnement que l'on appellera désormais *facteur de pondération du rayonnement* W_R . La dose pondérée s'appellera dès lors la *dose équivalente* H_T , équivalente à la dose délivrée par les rayonnements γ ou X ($W_R = 1$), qui servent de référence, pour produire le même effet biologique stochastique. Ainsi dans un tissu T , la dose équivalente sera :

$$H_T = \sum_R W_R D_{T,R}$$

où $D_{T,R}$ est la dose absorbée moyenne dans le tissu ou organe T , due au rayonnement R . L'unité de la dose équivalente est le joule par kilogramme et son nom le *sievert* (Sv).

Les facteurs de pondération du rayonnement sont portés dans le tableau I.

Pour les neutrons, la CIPR autorise, si besoin est, l'emploi de la loi suivante à la place des valeurs discrètes du tableau I :

Tableau I : Facteurs de pondération du rayonnement.

Photons de toutes énergies	1
Électrons et muons de toutes énergies	1
Neutrons d'énergie :	
< 10 keV	5
10-100 keV	10
100 keV-2 MeV	20
2 MeV-20 MeV	10
> 20 MeV	5
Protons autres que protons de recul, énergie > 2 MeV	5
Rayonnement α , Fragments de fission, Noyaux lourds	20

$$W_R = 5 + \frac{17}{(2E)^3}$$

où E est l'énergie des neutrons exprimée en MeV. La modification principale par rapport à la *Publication 26* est le quasi-doublement des facteurs de pondération pour les neutrons.

Il ne faut pas confondre le facteur de pondération du rayonnement W_R et l'Éfficacité biologique relative, l'EBR, bien que le principe soit le même. L'EBR est le rapport de la quantité d'énergie de rayonnement X de 200 keV nécessaire pour produire un effet biologique quelconque sur la quantité d'énergie nécessaire pour un tout autre rayonnement afin de produire le même effet biologique. L'EBR est caractéristique de l'effet étudié et des conditions expérimentales ; il ne peut être utilisé qu'en radiobiologie. Le facteur de pondération W_R , quant à lui, ne se rapporte qu'aux effets stochastiques, il y aura donc une différence entre les EBR et les W_R .

4.3. Dose efficace

La relation entre la probabilité d'apparition d'effets stochastiques et la dose équivalente n'est pas la même d'un organe ou tissu irradié à un autre. Ainsi si un groupe d'individus est irradié de manière homogène par un rayonnement γ (cas de la population de Hiroshima et de Nagasaki) certains cancers seront plus fréquents que d'autres. Il est donc approprié de définir une autre grandeur qui prend en compte la sensibilité de chaque tissu ou organe à l'irradiation. Le facteur par lequel la dose équivalente dans le tissu ou l'organe T est pondéré est appelé *facteur de pondération tissulaire* W_T . Ce facteur représente la contribution relative de l'organe ou du tissu au détriment total dû aux effets d'une irradiation homogène. Il dépend de la radiosensibilité de chaque organe, mais aussi de la gravité, donc de la mortalité de ces cancers radio-induits. Ceci explique la faible importance de la

thyroïde. Ces facteurs sont donnés pour une population de tout âge et de tout sexe. Ces facteurs s'appliquent donc aussi bien pour les travailleurs que pour la population.

La dose ainsi obtenue est donc une grandeur doublement pondérée, par le facteur de pondération du rayonnement d'une part et par le facteur de pondération tissulaire d'autre part, elle est appelée *dose efficace*, notée E . Elle s'exprime ainsi :

$$E = \sum_T W_T H_T$$

ou si nous la décomposons :

$$E = \sum_R W_R \sum_T W_T D_{TR}$$

Elle s'exprime également en sievert.

Les nouveaux facteurs de pondération pour les tissus sont donnés dans le tableau II.

Tableau II : Facteur de pondération pour les tissus.

Tissus	W_T	(Publication 26)
Gonades	0,20	(0,25)
Mœlle osseuse	0,12	(0,12)
Colon	0,12	
Poumon	0,12	(0,12)
Estomac	0,12	
Vessie	0,05	
Seins	0,05	(0,15)
Foie		0,05
Œsophage	0,05	
Thyroïde	0,05	(0,03)
Peau	0,01	
Surfaces osseuses	0,01	(0,03)
Reste de l'organisme	0,05	(0,30)

La principale modification par rapport à l'ancien système réside dans l'apparition de nouvelles valeurs pour les coefficients de pondération tissulaires et de nouveaux tissus ou organes. Cette différence est principalement liée à l'observation, depuis la précédente recommandation (*Publication 26*), de cancers nouveaux, ceux dont le temps de latence est long, parmi la population des survivants des bombardements de Hiroshima et de Nagasaki.

Alors que les facteurs de pondération pour le rayonnement dépendent du type de rayonnement et de son énergie et non du tissu ou de l'organe, les facteurs de pondération pour les tissus sont indépendants du type de rayonnement et de son énergie. Il est évident que ces concepts ne sont que des approximations

simplificatrices et que des situations particulières peuvent être observées, tout particulièrement dans le cas des rayonnement à fort transfert d'énergie linéique, rayonnement α par exemple. Dans l'état actuel des connaissances, cette simplification est souhaitée pour que le système de protection soit simple d'application.

Les conséquences résultant d'une dose absorbée ne dépendent pas seulement de la dose, du type de rayonnement et de son énergie, et de la sensibilité intrinsèque des tissus. Elles dépendent également de la distribution de dose dans le temps (débit de dose). Dans la formulation de la *Publication 26*, un facteur appelé N était prévu pour prendre en compte ce phénomène. Il n'a jamais été utilisé et a toujours été égal à 1. C'est pourquoi la CIPR a préféré l'abandonner et prendre en compte cet effet de débit de dose dans l'établissement du facteur de risque lié à l'irradiation (voir plus loin).

La dose équivalente et la dose efficace sont destinées à être utilisées en protection radiologique, ce qui inclut l'estimation de risques en termes généraux. Elles fournissent une base pour l'estimation de la probabilité d'apparition des effets stochastiques uniquement pour les doses absorbées se trouvant bien en dessous des seuils pour les effets déterministes. Elles ne sont donc applicables que pour les faibles doses. Les radiothérapeutes, par exemple, devront parler de dose absorbée uniquement exprimée en Gy.

4.4. Grandeurs dosimétriques complémentaires

4.4.1. Doses engagées

Après incorporation de radionucléides dans l'organisme, par inhalation ou ingestion, l'irradiation ne cesse pas après l'arrêt de l'exposition. Il faudra pour exprimer la dose reçue en tenir compte. Pour des radionucléides dont le séjour dans l'organisme est bref (tritium par exemple) il est facile de déterminer la dose totale délivrée et de l'imputer dans l'année de la contamination. À l'inverse, pour des éléments tel le plutonium, l'irradiation continuera toute la vie du contaminé puisque le plutonium déposé dans l'os ne s'élimine qu'avec une période de 50 ans. Deux méthodes sont possibles pour attribuer la dose à la personne contaminée. La première consisterait à calculer chaque année la dose délivrée par la contamination antérieure. On peut alors redouter que l'information s'oublie avec le temps, d'autant plus si le travailleur change d'employeur ou de profession. C'est pourquoi il est proposé de calculer l'intégrale dans le temps du débit de dose équivalente $H_e(\tau)$ où τ est le temps d'intégration (en années) et l'imputer l'année de la contamination. La valeur calculée est appelée "dose équivalente engagée". Le temps d'intégration sera implicitement de 50 ans pour les adultes à partir de l'incorporation quel que soit l'âge lors de la contamination. Cette valeur pourra se calculer sur 70 ans pour les nourrissons.

Par extension la *dose efficace engagée* est définie de la même façon pour l'irradiation consécutive à une incorporation de radionucléides.

Il est évident que l'année où cette dose est calculée (année de l'incorporation), la dose qui en résulte peut être supérieure, pour le plutonium par exemple, à la dose réelle délivrée. Il n'en demeure pas moins que cette méthode a le mérite de la simplicité et responsabilise l'année de la contamination, le responsable de celle-ci pour les années à venir. Elle évite tout oubli ultérieur.

4.4.2. Doses collectives

Toutes les grandeurs dosimétriques décrites ci-dessus sont des doses individuelles et ne concernent qu'un individu. Il est parfois pratique d'avoir d'autres indicateurs pour juger de la qualité d'une pratique. Ainsi pour des groupes ou populations, il est proposé de prendre en compte le nombre de personnes exposées en multipliant la dose moyenne du groupe par le nombre d'individus. Nous obtiendrons alors la *dose équivalente collective*, notée S_T , qui se rapporte à un tissu ou à un organe précis et la *dose efficace collective*, notée S , qui se rapporte à l'individu. L'unité de ces grandeurs collectives est *l'homme-sievert*, notée hSv.

Leur application est différente. Ainsi si une pratique conduit à une exposition individuelle moyenne de 10 mSv, on pourrait, pour répondre aux objectifs de baisse de l'irradiation, doubler le nombre des travailleurs. Mais si, pour effectuer la tâche en question, une partie de l'irradiation est liée au trajet vers la source, il est facile d'imaginer que la diminution du temps de travail d'un facteur 2 ne diminuera pas la dose d'autant. Finalement les travailleurs exposés recevront par exemple, chacun 6 mSv, mais en terme de dose collective on sera passé de $10 \times 100 = 1000$ hSv dans le premier cas (avec 100 travailleurs) à $6 \times 200 = 1200$ hSv dans le second cas. La dose collective s'est élevée. La probabilité d'apparition d'un cancer dans le groupe augmentera aussi, si l'on s'en tient à l'hypothèse d'une relation linéaire sans seuil. Il faudra donc réfléchir à une autre technique si l'on veut concilier les deux objectifs.

Si l'on veut maintenant, non plus se limiter dans le temps au risque pour les individus (on dit alors que la dose collective est tronquée) mais pour l'ensemble des générations (cas d'un stockage de déchets) une nouvelle grandeur sera utile pour comparer les options proposées. C'est *l'engagement de dose* (H_{CT} ou E_c). Il est défini comme l'intégrale sur un temps infini du *débit de dose par tête* (H_T ou E).

Ces doses collectives n'ont aucun intérêt pour le suivi individuel des travailleurs ou pour estimer les doses reçues par les membres du public. Elles sont essentiellement un outil de comparaisons de pratiques ; combien d'hommes-sievert seront délivrés par tel ou telle option dans le choix d'une stratégie de gestion de déchets par exemple ? Elles sont les seules valeurs permettant de juger la mise en œuvre du principe d'optimisation ALARA.

4.5. Limites secondaires

Une fois les limites de doses fixées, il est défini pour la contamination interne, des *limites secondaires* : les limites annuelles d'incorporation par ingestion et par inhalation, les LAI, et les limites dérivées de concentration des radionucléides dans l'air pour l'exposition professionnelle, les LDCA.

La limite annuelle d'incorporation est la quantité de radionucléides qui, si elle est incorporée, délivre dans l'organisme les doses limites fondamentales définies ci-dessus.

La LDCA est la concentration dans l'air qui conduirait, pour un travailleur travaillant 2000 heures par an dans cette atmosphère, à la LAI inhalation, et par conséquent à recevoir la limite de dose.

Ces limites sont calculées à partir de modèles dosimétriques qui prennent en compte : la fraction que retient l'individu lorsqu'il inhale ou ingère un radioélément, le cheminement de ce radionucléide (du site de dépôt vers le sang puis du sang vers les organes), les vitesses de ces migrations, puis enfin le taux d'élimination de ces radionucléides par les voies urinaires et fécales. Ces modèles prennent en compte également les caractéristiques physiques des radionucléides que sont leurs périodes radioactives, et l'énergie qu'ils libèrent dans un organisme vivant. Les calculs sont fait pour un engagement de dose sur 50 ans, ils s'appliquent aux travailleurs adultes.

Les LAI ne sont plus données dans les nouvelles recommandations des organismes internationaux. Il est fournit uniquement des facteurs de doses par unité d'incorporation (DPUI) qui correspondent à la dose efficace délivrée par l'incorporation de 1 Bq d'un radionucléide. Pour faire ces calculs, on se base sur l'état le plus récent des connaissances publiées dans la littérature scientifique. Il appartient ensuite aux autorités compétentes d'effectuer la transcription en LAI en divisant tout simplement la valeur de la limite de dose (qui est fixée à 20 mSv/an dans le cas de la contamination interne) par la dose par unité d'incorporation.

Si un opérateur connaît exactement la biocinétique des matériaux qu'il utilise, il pourra calculer des DPUI correspondant réellement à ces matériaux et proposer aux autorités de sûreté des LAI spécifiques aux ateliers où sont manipulés ces matériaux. Il appartiendra à ces autorités de vérifier le bien fondé de ces calculs avant d'autoriser l'utilisation de ces LAI spécifiques.

En matière de sûreté, l'avantage de cette démarche spécifique est de constituer un dossier d'expertise précis. Elle apporte un plus à la qualité de la radioprotection, l'expérience montre qu'elle est en général mieux perçue par les partenaires sociaux.

5. Les nouvelles recommandations

Pour établir la corrélation entre le risque et la dose, la Commission s'est surtout appuyée sur les connaissances actuelles des causes de mortalité des survivants de Hiroshima et de Nagasaki.

5.1. Les nouvelles bases scientifiques

Depuis les recommandations de la *Publication 26*, le réexamen dosimétrique des populations a conduit en 1986 à diminuer les doses reçues d'un facteur 2,5. Sont apparus également des cancers de l'appareil digestif (estomac et côlon) qui n'étaient pas encore recensés lors des recommandations de 1977. À l'inverse, il n'a toujours pas été mis en évidence d'effets héréditaires, la probabilité d'induction de tels effets a donc été révisée à la baisse. Enfin pour extrapoler les résultats des observations sur ces populations qui ont reçu leur dose (forte) en un temps très court (fort débit de dose) au cas des travailleurs et des populations qui ne reçoivent que des faibles doses à des débits faibles, la CIPR a choisi par prudence un facteur de réduction⁽³⁾ à l'intérieur d'une fourchette allant de 2 à 10 proposée dans les rapports UNSCEAR. La relation linéaire sans seuil a été maintenue, l'hypothèse d'un risque relatif⁽⁴⁾ également.

Sur ces bases, la CIPR évalue les nouveaux coefficients de probabilité nominaux pour les effets stochastiques tels que les cancers et les effets héréditaires (voir tableau III).

Tableau III : Coefficients de probabilité nominaux pour les effets stochastiques.

	Détriment ($10^{-2}/\text{Sv}$)			Total
	Cancer mortel	Cancer non mortel	Effets héréditaires	
Population exposée				
Travailleurs adultes	4,0	0,8	0,8	5,6
Population entière	5,0	1,0	1,3	7,3

(3) Ce facteur s'appelle le DDREF, *Dose and Dose Rate Effectiveness Factor*.

(4) On définit le risque relatif comme une augmentation des effets, proportionnelle au taux de la population de référence. À l'inverse, le risque absolu (ou additif) est une addition limitée dans le temps d'effets observés dans la population de référence.

5.2. Les nouvelles normes

Les valeurs proposées dans les précédentes recommandations étaient de 50 mSv/an pour les travailleurs et de 5 mSv/an pour les membres du public. Basées sur les coefficients de probabilité énoncés ci-dessus, les nouvelles recommandations sont les suivantes :

- la commission recommande pour les travailleurs une limite de 20 mSv par an moyennée sur 5 ans (100 mSv en 5 ans) pour la dose effective à la condition que la dose effective n'excède pas 50 mSv par an pour une année donnée au cours de cette période ;
- pour les membres du public la limite de 1 mSv par an est recommandé. La Commission accepte que ce niveau soit dépassé dans des circonstances spéciales si la moyenne de 1 mSv sur 5 ans est respectée.

La limite pour les travailleurs correspond à un objectif de dose sur la vie de 1 Sv pour une durée de vie professionnelle de 50 ans.

La diminution des limites pour la dose effective est, selon la Commission, suffisante pour éviter un quelconque effet déterministe dans tous les tissus ou organes de l'organisme à l'exception du cristallin, qui contribue faiblement au calcul de la dose effective, et pour lequel la Commission recommande une limite de dose équivalente de 150 mSv par an. La peau pouvant faire l'objet d'irradiations localisées sera soumise également à une limite de dose équivalente de 500 mSv/cm² par an. Pour les populations les valeurs seront divisées par 10 : 15 mSv pour le cristallin, 50 mSv pour la peau.

6. Conclusion

Dans ses nouvelles recommandations la CIPR a réaffirmé les principes à la base du système de radioprotection, l'optimisation et la justification. Elle a clarifié la terminologie et la définition des normes, revenant à des définitions plus naturelles telles la dose équivalente et la dose efficace. Elle a actualisée les facteurs de pondération des rayonnements aggravant d'environ un facteur 2 la nocivité des neutrons. Les facteurs de pondération tissulaires ont été modifiés, prenant en compte l'apparition de nouveaux cancers parmi la population des survivants des bombardements de Hiroshima et de Nagasaki, et la diminution de la probabilité d'apparition d'effets héréditaires. Se basant notamment sur les travaux de l'UNSCEAR ou du comité américain BEIR, la commission a proposée d'abaisser les limites de doses, aussi bien pour les travailleurs que pour le public.

Depuis la publication en 1990 de ces recommandations, le comité 2 a considérablement remanié les limites secondaires. Les modèles dosimétriques ont été pour la plupart entièrement repensés. La notion de LAI a été modernisée et devient plus pragmatique, elle devient un instrument d'incitation à l'amélioration

de la radioprotection dans les ateliers où l'exposition découle de l'incorporation par inhalation de radionucléides. Les doses aux populations sont calculées pour différentes tranches d'âge, du nourrisson à l'adulte.

En conclusion on peut affirmer que, modernisé, le nouveau système de protection est à la fois plus rigoureux et plus souple.

7. Grandeurs et unités utilisées en radioprotection

Grandeurs et unités utilisées en radioprotection Selon les *Publications 60* de la CIPR et *51* de l'ICRU

Quantités Physiques

Activité

L'activité est le nombre de désintégrations par unité de temps.

Le becquerel (Bq) est le nom spécial de l'unité de désintégration : $1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1}$.

Fluence

La fluence de particules, Φ , est le quotient du nombre de particules dN pénétrant dans une sphère par l'aire du plan diamétral de cette sphère, da .

$$\Phi = dN/da$$

La fluence s'exprime en m^{-2} .

Kerma

Le kerma (acronyme de *Kinetic Energy Released in Matter*) est le quotient dE_{cin}/dm où E_{cin} représente la somme des énergies cinétiques initiales de toutes les particules chargées mises en mouvement dans le volume de référence de masse dm . Il traduit le premier acte du transfert d'énergie : la mise en mouvement par collision des particules secondaires.

Le kerma s'exprime en J.kg^{-1} . Son unité est le gray (Gy).

Dose absorbée

La dose absorbée est la quantité d'énergie délivrée par les radiations ionisantes à la matière de masse dm , ainsi :

$$D = de/dm$$

Le nom spécial pour l'unité de dose absorbée est le gray (Gy).

Quantités de Radioprotection

Dose absorbée à l'organe

La dose absorbée étant définie en un point, la CIPR a introduit (*Publication 71*) la notion de la dose absorbée à l'organe qui est la moyenne de la dose absorbée en chaque point de l'organe. Cette définition s'avère utile pour mieux définir la dose moyenne à l'organe lorsque l'irradiation est hétérogène (irradiation neutronique ou α).

Dose équivalente à l'organe

La dose équivalente à l'organe $H_{T,R}$ dans un tissu T liée à l'irradiation par le rayonnement R

est donnée par l'équation $H_{T,R} = W_R D_{T,R}$ où $D_{T,R}$ est la dose absorbée à l'organe T par l'irradiation R et W_R le facteur de pondération lié à la nature du rayonnement R .

La dose équivalente totale, H_T , est la somme de $H_{T,R}$ pour tous les types de rayonnement.

Il faut noter que l'ICRU définit la *dose équivalente* comme le produit $H = Q D$ où Q est le facteur de qualité du rayonnement en un point et D la dose absorbée en un point.

Le facteur de qualité étant sans dimension, l'unité est la même que pour la dose absorbée : $J.kg^{-1}$ et son nom spécial est le sievert (Sv).

Dose efficace

La dose efficace est la somme des doses équivalentes pour chaque organe ou tissu de l'organisme pondérées par un facteur dépendant de la sensibilité aux effets stochastiques du tissu irradié $W_T^{(a)}$. Ces facteurs de pondération étant normalisés leur somme est égale à 1.

La dose efficace s'exprime donc par l'expression : $E = \sum_T W_T H_T$.

Le facteur de pondération tissulaire étant sans dimension, l'unité est la même que pour la dose absorbée et la dose équivalente à l'organe : $J.kg^{-1}$ et son nom spécial est comme pour la dose équivalente à l'organe le sievert (Sv).

Quantités de radioprotection spécialement liées à la contamination interne

Dose équivalente engagée

La dose équivalente engagée $H_T(\tau)$ est l'intégrale dans le temps du débit de dose équivalente dans un tissu ou organe particulier, où τ est le temps d'intégration en années, de 50 ans pour les adultes et de l'incorporation à l'âge de 70 ans pour les enfants.

L'unité de mesure est le sievert.

Dose efficace engagée

La dose efficace engagée est la somme des doses équivalentes engagées où τ est le temps d'intégration en années, de 50 ans pour les adultes et de l'incorporation à l'âge de 70 ans pour les enfants.

L'unité de mesure est le sievert.

Limite annuelle d'incorporation (LAI)

Pour un radionucléide donné, c'est l'activité incorporée en un an conduisant à la dose efficace engagée de 20 mSv.

L'unité de mesure est le becquerel. La LAI n'est plus donnée dans les publications de la CIPR les plus récentes (67, 68, 69 et 74). Sont données les doses par unité d'incorporation

- (a) Les facteurs de pondération tissulaires sont donnés dans les textes. Pour des raisons de calcul, les "autres tissus ou organes" comprennent la glande surrénale, le cerveau, l'intestin grêle, les reins, les muscles, le pancréas, la rate, le thymus et l'utérus.

Si dans un cas exceptionnel où un seul des tissus ou organes de la rubrique "Autres organes" reçoit une dose équivalente supérieure à la dose la plus élevée dans n'importe lequel des douze organes pour lesquels un facteur de pondération est précisé, un facteur de pondération de 0,025 est appliqué à ce tissu ou à cet organe et un facteur de pondération de 0,025 est appliqué à la dose moyenne dans le reste des "autres tissus ou organes".

Le caractère exceptionnel de cette déclaration est actuellement remis en cause, c'est pourquoi la CIPR a autorisé que, pour les calculs suivant une irradiation externe, cette règle ne soit pas appliquée (*Publication 71* de la CIPR). Son application demeure pour la contamination interne.

(DPUI) que le législateur peut transformer en LAI en faisant le rapport avec la limite de 20 mSv. Cette modification dans l'expression des facteurs de doses est faite pour rappeler qu'une LAI peut être spécifique à une pratique si le calcul des DPUI a conduit pour ces pratiques spécifiques à des valeurs différentes de celles données par défaut par la CIPR. Il appartient aux autorités nationales de valider le mode d'établissement de ces LAI spécifiques.

Limite dérivée de concentration d'un radionucléide dans l'air (LDCA)

C'est la concentration moyenne annuelle dans l'air inhalé qui pour 2 000 heures de travail par an, entraîne une incorporation égale à la LAI.

Elle s'exprime en Bq/m³.

Bibliographie

International Commission on Radiological Protection

- [1] ICRP, Recommendations of the ICRP (publication 26) *Ann. ICRP* 1 n° 3 (Pergamon Press, Oxford, 1977).
- [2] ICRP, Age-dependent Doses to members of the Public from Intakes of radionuclides: Part 1 (publication 56) *Ann. ICRP* 20 n° 2 (Pergamon Press, Oxford, 1989).
- [3] ICRP, Recommendations of the ICRP (publication 60) *Ann. ICRP* 21 n° 1-3 (Pergamon Press, Oxford, 1991). Édition française : Recommandations 1990 de la CIPR - publication 60 (Pergamon Press, Oxford, 1993).
- [4] ICRP, Human respiratory tract Model (publication 1966) *Ann. ICRP* 24 (Elsevier Science Ltd, Oxford, 1994).
- [5] ICRP, Age-dependent Doses to members of the Public from Intakes of radionuclides: Part 2 Ingestion Dose Coefficients (publication 67) *Ann. ICRP* 23 n° 3-4 (Elsevier Science Ltd, Oxford, 1994).
- [6] ICRP, Dose Coefficients for Intake of Radionuclides by Workers - Replacement of ICRP Publication 61 (publication 68) *Ann. ICRP* 24 n° 4 (Elsevier Science Ltd, Oxford, 1995).
- [7] ICRP, Age-dependent Doses to members of the Public from Intakes of radionuclides: Part 3 Ingestion Dose Coefficients (publication 69) *Ann. ICRP* 25 n° 1 (Elsevier Science Ltd, Oxford, 1995).
- [8] ICRP, Conversion Coefficients for use in Radiological Protection against External Radiation (publication 71), à paraître.

United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR)

- [9] UNSCEAR, Genetic and somatic effects of ionizing radiation, 1986 report to the General Assembly, with Annexes., *United Nations sales publication E.86.IX.9* (United Nations, New York, 1986).
- [10] UNSCEAR, Influence of dose and dose rate on stochastic effects of radiation, 1993 report to the General Assembly, with Annexes., *United Nations sales publication E.94.IX.2* (United Nations, New York, 1993).
- [11] UNSCEAR, Epidemiological studies of radiation carcinogenesis, 1984 report to the General Assembly, with Annexes., *United Nations sales publication E.94.IX.11* (United Nations, New York, 1994).

Committee of the Biological Effects of Ionizing Radiation (BEIR)

- [12] BEIR, Health Risks of Radon and other internally deposited alpha-emitters, *BEIR IV* (National Academy Press, Washington, 1988).
- [13] BEIR, Health Effects of Exposure to Low levels of Ionizing Radiation, *BEIR V* (National academy press, Washington, 1990).

Autres sources

- [14] International basic safety Standards for Protection against ionizing radiation and for safety of radiation sources, Interim Edition, Safety Series n° 115-I (International Atomic Energy Agency, Vienna, 1994).
- [15] Quantities and Units in Radiation Protection Dosimetry, International Commission on Radiation Units and Measurements, *ICRU Report 51* (ICRU Publications, Bethesda, 1993).
- [16] Stokell P.J., Croft J.R., Lochard J. and Lombard J., ALARA, From theory towards practice, *EUR 13796 EN* (Commission of the European Communities, Luxembourg, 1991).
- [17] La radioprotection au seuil du XXI^e siècle, *Compte rendu d'une réunion de travail de l'AEN* (Agence pour l'Énergie Nucléaire, OCDE, Paris 1993).
- [18] *La radioprotection aujourd'hui et demain*, Opinion collective du Comité de protection radiologique et de santé publique de l'Agence pour l'énergie nucléaire de l'OCDE (OCDE, Paris, 1994).
- [19] M. Bertin, *Les effets biologiques des rayonnements ionisants* (Électricité de France, Paris, 1994).

Réglementation française

La transposition en droit français des directives du Conseil des Communautés européennes (n° 80-836 du 15 juillet 1980 et n° 84-467 du 3 septembre 1984 explicitées par la commission n° 85-C 345-03 du 31 décembre 1985), qui prennent elles-mêmes en compte les recommandations de la commission internationale de protection radiologique (CIPR), a été menée à son terme essentiellement par l'adaptation de trois décrets:

- 1) le décret n° 66-450 du 20 juin 1966 relatif aux principes généraux de protection contre les rayonnements ionisants qui a été modifié par le décret n° 88-251 du 18 avril 1988 ;
- 2) le décret n° 67-228 du 15 mars 1967 relatif à la protection des travailleurs contre les rayonnements ionisants hors des installations nucléaires de base qui a été abrogé et remplacé par le décret n° 86-1103 du 2 octobre 1986 ;
- 3) le décret n° 75-306 du 28 avril 1975 relatif à la protection des travailleurs contre les rayonnements ionisants dans les installations nucléaires de base qui a été modifié par le décret n° 88-362 du 6 mai 1988.

12 Effets cancérogènes des faibles doses de rayonnements ionisants

Maurice Tubiana^(★)

1. Introduction

Depuis 1989, la réévaluation du coefficient de risque de cancer induit par les radiations et les nouvelles normes de radioprotection proposées par la Commission internationale de protection radiologique, la CIPR, ont suscité des débats autour des risques des faibles doses de rayonnements ionisants. Ces controverses avaient amené le ministre de la Recherche à demander à l'Académie des sciences son avis sur cette question. La conclusion du rapport, en novembre 1989 avait été : *"Au total considérant que les normes actuelles paraissent déjà prudentes, qu'il n'existe aucune raison scientifique de les remettre en cause, que l'on pourrait en quelques années compléter les données sur les effets des faibles doses ; il apparaît qu'un effort prioritaire devrait être effectué pour développer les recherches épidémiologiques sur les effets des faibles doses et qu'il serait préférable d'attendre le résultat de ces études pour procéder à une révision des normes"*.

(★) Directeur honoraire de l'Institut Gustave Roussy – Membre de l'Académie des sciences et de l'Académie de médecine – Centre Antoine Béclère – Faculté de médecine – 45, rue des Saints-Pères 75006 Paris

À l'automne 1994, le ministre de la Santé saisit à nouveau l'Académie des sciences afin de savoir si après la dernière publication de la CIPR et des plus récents travaux, son point de vue avait changé. Le rapport publié en 1995 [1] souligne l'importance des travaux accomplis depuis 1989 et indique qu'il n'existe pas de faits scientifiques récents apportant un argument en faveur d'une augmentation du coefficient du risque. Début 1997, à l'occasion de la traduction en anglais du rapport, un addendum a examiné les articles publiés depuis l'été 1995.

2. Position du problème : l'évolution du coefficient de risque cancérigène

Le rapport 60 de la CIPR [12] a réévalué le risque cancérigène à faible dose. Le tableau I indique l'évolution du coefficient de risque ; comme on le voit, l'accroissement est dû à deux facteurs : l'augmentation importante du risque à dose élevée et le choix pour le facteur de réduction pour faible dose-faible débit de la valeur la plus péjorative de la fourchette précédemment proposée par le Comité national américain (NCRP) et le Comité scientifique des Nations Unies (UNSCEAR 1988).

Tableau I : Évolution du coefficient de risque cancérigène.

	Coefficient de risque de cancer pour un adulte (dose élevée-fort débit)	Facteur de réduction de risque (faible dose-faible débit)	Risque cancérigène (faible dose-faible débit)	Limites pour les travailleurs (CIPR)
CIPR 1977	$1,2 \times 10^{-2} \text{ Sv}^{-1}$	1	$1,2 \times 10^{-2} \text{ Sv}^{-1}$	50 mSv/an
UNSCEAR 1978	$2,5 \text{ Sv}^{-1}$	2,5	$1,2 \times 10^{-2} \text{ Sv}^{-1}$	
UNSCEAR 1988	5 Sv^{-1}	2-10	$0,5-3 \times 10^{-2} \text{ Sv}^{-1}$	
CIPR 1990	8 Sv^{-1}	2	$4 \times 10^{-2} \text{ Sv}^{-1}$	100 mSv en 5 ans

2.1. Risque à fortes doses (supérieure à 500 mSv)

Ce risque est, pour l'essentiel, calculé à partir des observations faites sur les survivants de Hiroshima et de Nagasaki [12, 21, 28]. Cette prééminence accordée aux survivants de Hiroshima et de Nagasaki dans l'estimation de l'effet cancérigène introduit une surestimation de ce coefficient, sur laquelle nous

reviendrons. L'augmentation du coefficient de risque est liée à trois facteurs.

- La persistance d'un excès de cancers supérieur à celui qui était attendu. Sur les 250 000 survivants de Hiroshima et de Nagasaki, l'excès des cancers observé depuis 1950 est d'environ 600. Sur la cohorte de 86 000 survivants dont la dosimétrie a été évaluée et qui comprend la plupart de ceux ayant reçu des doses notables, on a observé 6 687 décès par cancer, alors que dans un groupe témoin de japonais non irradiés, de même âge et sexe, le nombre de décès par cancer est de 6 582 ; l'excès attribuable à l'irradiation dans ce sous-groupe est donc de 305. Dans les dernières analyses statistiques, le nombre des cancers reste légèrement supérieur à celui qui était prévu. De plus l'irradiation *in utero* et dans la prime enfance a entraîné un excès de fréquence des cancers chez les sujets devenus adultes. Ces faits justifient une augmentation du coefficient de risque cancérogène mais celle qui en résulte est relativement modeste de l'ordre de 20 à 30 %.
- La révision des doses reçues par les survivants des bombes atomiques. L'estimation du risque cancérogène était avant 1986 fondée sur la dosimétrie effectuée en 1965 soit T65D. Ces doses ont été réévaluées en 1986 dans une nouvelle dosimétrie dite DS86. D'après celle-ci les doses de rayonnement γ auraient été plus faibles que celles évaluées dans la T65D et la dose de rayonnement neutronique pratiquement négligeable, même à Hiroshima. Cette diminution des doses entraîne *ipso facto* une augmentation du coefficient de risque cancérogène. Or si de nouvelles études ont confirmé la dose γ estimée en 1986 ; il n'en est pas de même pour la dose neutron qui semble avoir été notablement sous-estimée ; la dose réelle se situant vraisemblablement entre les estimations T65 et DS86 [1]. Ce facteur d'augmentation du risque cancérogène est donc remis en question d'autant qu'il subsiste des incohérences entre les doses reçues d'après la DS86 et les réactions biologiques telles que les anomalies chromosomiques et l'épilation post-irradiation. Or la corrélation entre la survenue de leucémies et la chute des cheveux après l'explosion conforte la valeur de ce symptôme et accentue le sentiment d'une fiabilité insuffisante des estimations dosimétriques [20].
- Le choix d'un modèle multiplicatif à coefficient constant pour estimer le risque sur toute la durée de la vie. Environ la moitié des personnes irradiées à Hiroshima et Nagasaki sont encore vivantes. Pour estimer le nombre global de cancers induits par l'irradiation, il est donc nécessaire d'utiliser des modèles mathématiques permettant une estimation des cancers à venir. Mais, beaucoup d'incertitudes subsistent quant au meilleur type de modèle (voir figures 1 et 2). Remarquons que l'introduction depuis 1986 des modèles de projection pour l'estimation des risques constitue la principale cause de l'augmentation du coefficient de risque à dose élevée puisqu'elle entraîne sa multiplication par 2 ou 3. Deux types de modèles de projection ont été proposés, les deux postulent qu'après une période de latence pendant laquelle la fréquence des cancers n'a pas augmenté, un excès de fréquence des cancers persiste jusqu'à la mort. Dans le modèle dit de "risque absolu" (modèle additif) l'excès des cancers (appelons-

le A) reste constant jusqu'à la fin de la vie. Après la période de latence la fréquence des cancers dans la population exposée est donc égale à $T + A$ où T est la fréquence des cancers dans la population témoin.

Dans le modèle dit de "risque relatif" (modèle multiplicatif), ce qui est constant n'est pas le nombre, mais la proportion de cancers en excès. Si l'on appelle RR ce facteur de risque relatif, la fréquence de cancers dans la population exposée est égale à la fréquence des cancers de la population témoin T multipliée par RR . Comme la fréquence des cancers croît rapidement avec l'âge à partir de 40 ans, le modèle multiplicatif prédit donc, du fait du vieillissement de la population, une augmentation régulière et rapide du nombre de cancers en excès avec le temps (voir figure 1).

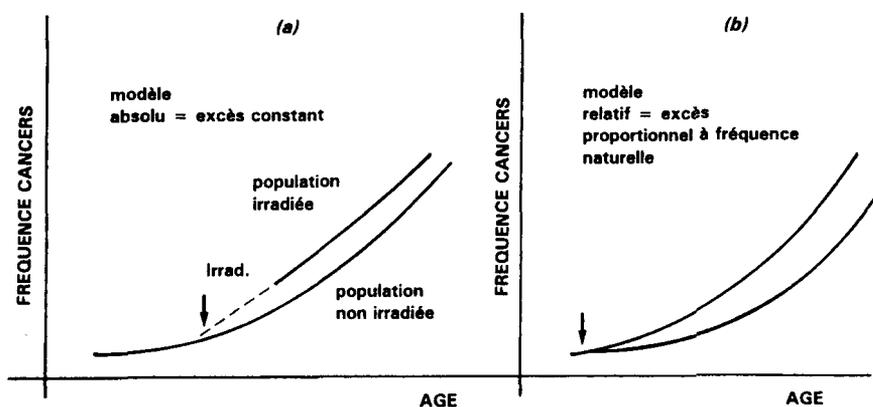


Figure 1 : Modèle de projection du risque cancérogène. La fréquence naturelle des cancers, très basse au-dessous de 40 ans, augmente ensuite rapidement avec l'âge. Dans le modèle additif à risque constant après l'irradiation il s'ajoute aux cancers spontanés un nombre supplémentaire constant de cancers jusqu'au décès. Dans le modèle multiplicatif la fréquence est multipliée par un facteur constant. De ce fait le nombre de cancers en excès augmente rapidement avec l'âge en même temps que la fréquence naturelle croît.

La CIPR a choisi en 1990 le modèle du risque relatif à coefficient RR constant parce qu'il lui paraissait le mieux correspondre à la plupart des observations faites à Hiroshima et Nagasaki mais aussi parce qu'il était le plus prudent. Remarquons que non seulement pour les leucémies, mais aussi pour d'autres types de tumeurs, comme les ostéosarcomes, le risque, après être passé par un maximum revient après une dizaine d'années à une valeur proche de la normale (voir figure 2). Il en est de même dans certaines études effectuées sur des malades irradiés où la fréquence des cancers est redevenue normale environ 25 ans après l'irradiation. Pour les autres types de cancers, c'est tantôt le modèle absolu, tantôt le modèle relatif qui donne le moins mauvais ajustement ; l'utilisation d'un seul modèle pour tous les cancers est une simplification abusive [1, 26].

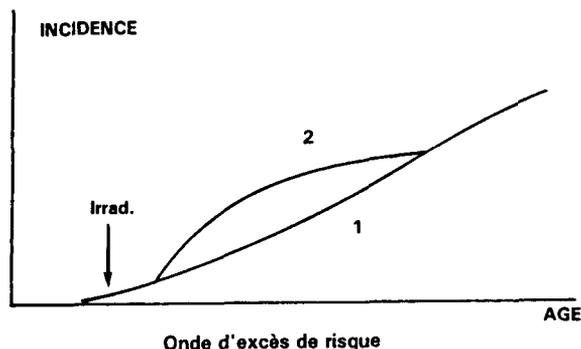


Figure 2 : Dans un troisième modèle qui est celui dont la validité a été prouvée pour les leucémies et les ostéosarcomes, il s'ajoute à la fréquence de base une onde d'excès de cancers pendant une quinzaine d'années. Il est possible que ce dernier modèle soit aussi valable pour d'autres cancers. 1) population non irradiée ; 2) population irradiée.

De plus certaines données sont en contradiction avec l'hypothèse d'un modèle multiplicatif. Ainsi le nombre de cancers du sein en excès (à dose égale) est voisin chez les Japonaises irradiées à Hiroshima et à Nagasaki et les Canadiennes ou les Américaines irradiées pendant les radiosopies effectuées pour surveiller un pneumothorax thérapeutique, alors que la fréquence des cancers du sein est environ cinq fois plus grande en Amérique du Nord qu'au Japon. Cette observation s'accorde bien avec un modèle absolu mais est difficilement compatible avec un modèle de risque relatif [26].

Mais le fait nouveau est que depuis 1991 il a été montré que le modèle de risque relatif à coefficient constant est en contradiction avec les observations effectuées sur les survivants de Hiroshima et de Nagasaki notamment chez les sujets irradiés pendant l'enfance chez qui une diminution significative est observée [15]. Cette diminution se retrouve chez des enfants irradiés pour des raisons médicales et existe également, quoique moins importante, chez les sujets irradiés à l'âge adulte soit à Hiroshima et à Nagasaki, soit pour des raisons médicales [9] (voir figure 3). Chez les mineurs exposés professionnellement au radon, le risque de cancers du poumon décroît aussi avec l'âge, ce qui est incompatible avec le modèle multiplicatif à coefficient RR constant. La validité du modèle choisi par la CIPR est donc remise en cause, or celui-ci est, de loin, le principal facteur ayant provoqué l'augmentation du coefficient de risque cancérigène [1, 26].

Le choix du modèle de projection est d'autant plus crucial que dans le modèle multiplicatif, les dernières années de vie sont les plus pénalisantes. Avec le modèle de la CIPR la moitié des cancers prévus surviendraient après 75 ans (donc à un âge supérieur à l'espérance de vie des hommes européens) [12].

Ces divers arguments expliquent que l'on ait discuté l'importance de l'accroissement du risque cancérigène à forte dose, d'autant que l'écart entre les estimations fondées sur les survivants de Hiroshima et de Nagasaki et celles

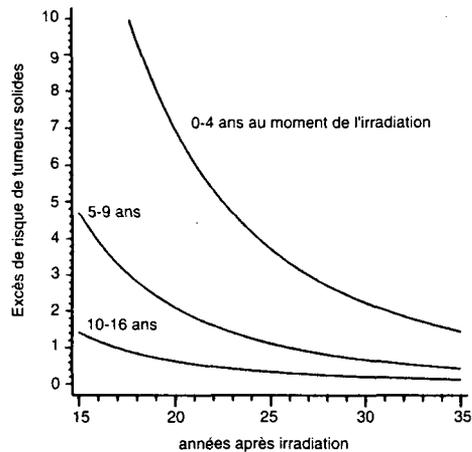


Figure 3 : Excès de risque relatif d'apparition de cancers solides chez les enfants irradiés à des âges entre 0 et 16 ans. Pour ces groupes d'enfants on observe une diminution statistiquement significative du risque après un délai supérieur à 15 ans, cependant l'excès ne devient pas nul même 35 ans après l'irradiation (d'après De Vathaire *et al.* [9]). Une même diminution du risque a été observée chez les adultes.

provenant d'autres enquêtes, notamment sur les malades irradiés, loin de s'atténuer se sont accentuées depuis cinq ans et que, dans la quasi-totalité des enquêtes, les cancers observés sont moins nombreux que ne le prédit le coefficient de risque de la CIPR [28]. Ainsi pour les leucémies leur fréquence chez une série de 85 000 femmes traitées pour cancer du col utérin était nettement inférieure à celle calculée, même en utilisant le précédent facteur de risque leucémogène inférieur à l'actuel. Dans la série des 110 000 femmes traitées pour cancer du corps utérin [7], la différence entre le nombre de leucémies prédit et celui observé est hautement significative : chez les malades irradiés par curiethérapie, à faible débit de dose (0,4 mSv/minute), le risque cancérogène est environ 4 fois plus faible que celui calculé à partir de la cohorte Hiroshima et Nagasaki. Il est vraisemblable que ses écarts sont dus à l'influence du débit de dose.

Le rapport de l'UNSCEAR 1994 [28] confirme que pour presque toutes les localisations l'effet cancérogène est, à dose égale, plus grand chez les sujets irradiés à Hiroshima et à Nagasaki que dans les autres groupes. L'explication la plus plausible de ces différences est le débit de dose, beaucoup plus élevé à Hiroshima et à Nagasaki que chez les malades irradiés.

2.2. Extrapolation vers les faibles doses (inférieure à 200 mSv)

Considérons maintenant le deuxième facteur ayant entraîné l'augmentation du

coefficient de risque à faible dose : le choix de la valeur 2 pour le coefficient de réduction du risque à faible dose- faible débit.

Un rapport du NCRP, en 1980 et un autre de l'UNSCEAR en 1988 avaient conclu, au terme d'une analyse des données expérimentales et humaines disponibles, que la valeur de ce coefficient variait significativement selon le phénomène étudié et se situait dans une fourchette allant de 2 à 10. Il était de plus reconnu que pour certains effets cancérogènes à faible dose-faible débit, ce coefficient pouvait être supérieur à 10. En 1989, la CIPR a choisi la valeur 2, la plus péjorative. Ce choix s'explique par un souci de prudence. Rappelons que la plupart des données expérimentales concernant les irradiations délivrées avec un très faible débit sont proches de 4 ou 5. Ainsi dans l'étude de Thomson et Grahn [25] comparant une exposition unique à une exposition chronique à très faible débit de dose, la valeur est de 5. Dans l'étude de Morin *et al.* le coefficient est également de 5 pour la plupart des cancers quand le débit de dose passe de 80 mSv/h à 1,3 mSv/h. De plus, on trouve, parmi les données retenues pour justifier un coefficient de réduction égal à 2, des valeurs non mesurées expérimentalement mais calculées en utilisant la méthode proposée par Pierce et Vaeth qui postule que la relation entre la dose et l'effet cancérogène est linéaire-quadratique. Cette méthode détermine la pente initiale de la courbe, dans la zone des doses pour lesquelles aucun effet n'est observé, en calculant la valeur des paramètres de la fonction linéaire quadratique qui ajuste les données épidémiologiques obtenues pour des doses supérieures à 0,5 Sv. Cette méthode de calcul n'aurait de sens que si la validité du modèle linéaire-quadratique (L-Q) avait été prouvée, or il n'en est rien [26].

De façon générale depuis 20 ans la discussion sur les effets à faible dose-faible débit est rendue confuse par l'utilisation du modèle linéaire-quadratique. Celui-ci mérite donc discussion. Il a été proposé à partir de considérations microdosimétriques. L'énergie des électrons mis en mouvement est délivrée au milieu irradié par paquets de dimensions variables (entre 15 et 100 eV). Comme la molécule cible est l'ADN on a pensé que, comme la rupture d'un seul brin est rapidement réparée, l'effet biologique était déterminé principalement par la rupture des deux brins de la molécule. Celle-ci peut-être causée soit par la rupture successive des deux brins survenant à courte distance et dans un court intervalle de temps (coupure des deux brins de la molécule d'ADN par la sommation des effets indépendants de deux petits paquets d'énergie), soit par la rupture non réparée des deux brins causée par un gros paquet d'énergie. À faible dose, la composante quadratique devient négligeable et le modèle L-Q devient un modèle linéaire sans seuil, ce qui signifie que tous les dommages résiduels sont dus à des lésions irréparables causées par ce gros paquet d'énergie, donc que l'effet devient indépendant de la dose et du débit de dose. Ce modèle rend bien compte des mutations induites par l'irradiation d'une plante, la *Tradescantia*, pour laquelle il est possible de mesurer l'effet mutagène à partir de doses très faibles, de 1 mSv, jusqu'à des doses très élevées. Il parut être conforté par la relation dose-effet pour l'induction de chromosomes dicentriques et les courbes de survie des cellules

irradiées. Le modèle parut donc satisfaisant, il eut un immense succès bien que :

- 1) aucun argument expérimental ou épidémiologique n'ait démontré sa validité pour l'induction de cancers ; au contraire la quasi-totalité des données expérimentales ne peuvent pas être ajustées avec ce modèle ;
- 2) d'autres modèles peuvent rendre compte aussi bien ou mieux de la courbe de survie des cellules ;
- 3) pour la plupart des aberrations chromosomiques, les relations dose-effet ne s'ajustent pas avec ce modèle.

Au cours de ces dernières années, ce modèle a été contesté par de nombreux auteurs, notamment en 1996, par la respectée *Health Physics Society*⁽¹⁾.

Le modèle L-Q implique, en particulier, l'usage d'un facteur unique de réduction pour la dose et le débit de dose. Si l'on remet en question ce modèle, il n'est plus justifié d'utiliser un seul facteur de réduction pour les deux. On peut d'ailleurs se demander s'il est raisonnable d'utiliser le même facteur de réduction entre 0 et 500 mSv et s'il ne serait pas opportun au minimum de distinguer les faibles doses (< 200 mSv) et les très faibles doses (< 50 mSv).

Examinons les critiques qui ont été faites au modèle L-Q avec un facteur de réduction égal à 2 (utilisé par la CIPR) pour l'évaluation des effets cancérogènes des faibles doses.

3. Le coefficient de risque de la CIPR et les données épidémiologiques

Au cours des années récentes, des enquêtes épidémiologiques ont apporté des données importantes qui méritent considération.

3.1. Étude du CIRC⁽²⁾ sur les travailleurs professionnels

Cette étude portent sur 95 000 travailleurs de l'industrie nucléaire des États-Unis, de Grande-Bretagne et du Canada [4]. Elle ne décèle aucune augmentation de la fréquence des cancers solides bien que parmi les travailleurs environ 2 000 aient reçu une dose supérieure à 400 mSv étalée sur leur existence professionnelle. La fréquence des tumeurs solides est même légèrement inférieure à la normale alors que le coefficient de risque prévoyait 21 cancers en excès avec le suivi actuel qui est supérieur à 40 ans. Cependant, faute de puissance statistique, cette observation

(1) Voir la traduction de cette déclaration en annexe.

(2) Centre international de recherche sur le cancer

ne permet pas de rejeter le coefficient de risque cancérogène du CIRP. En revanche un excès de leucémies a été noté, dans cette étude, notamment à l'usine de Sellafield où ont été observées 4 des 6 leucémies survenues chez les travailleurs ayant reçu des doses supérieures à 400 mSv ; ce risque leucémogène est compatible avec la prédiction du coefficient de la CIPR-60 qui est de 9. Rappelons par ailleurs que l'établissement de Sellafield est particulier, puisque dans ce village on a observé une élévation de la fréquence des leucémies chez les enfants, mais que l'on a ensuite montré que celle-ci n'était pas liée à une pollution radioactive [10]. Les coefficients de risque de la CIPR, l'ancien et *a fortiori* le nouveau, apparaissent donc excessifs pour les cancers solides alors que celui de la CIPR-26 pourrait être limite pour les leucémies, notamment au-dessus de 200 mSv.

L'étude du CIRC sera complétée dans les années à venir notamment grâce à l'inclusion des travailleurs français dont les données devraient bientôt être disponibles. Cette augmentation de puissance devrait permettre de déterminer, de façon statistiquement significative, si le coefficient de risque estimé par la CIPR-60 à faible dose-faible débit doit, ou non, être rejeté. Alors qu'il y a quelques années encore on croyait impossible de pouvoir obtenir par des études épidémiologiques des données valables sur l'effet des faibles doses, ce résultat semble maintenant à portée de main.

Il faut en rapprocher une autre étude ayant porté sur plus de 100 000 travailleurs des *arsenaux américains* dont 28 000 étaient exposés à des doses supérieures à 5 mSv. Aucune augmentation de la fréquence des cancers ou des leucémies n'a été observée malgré un recul de 45 ans et un grand nombre de cas de cancers [28]. Cette absence d'effet malgré une dose collective d'environ 1 500 hSv⁽³⁾ suggère que l'efficacité des faibles doses est très petite. On a observé, chez ces ouvriers, une augmentation de la fréquence des mésothéliomes vraisemblablement due à l'amiante, alors que pour les autres cancers le risque est inférieur à celui des ouvriers non exposés aux radiations.

Rappelons enfin que chez les *radiologistes* qui exerçaient entre 1920 et 1939, la fréquence des leucémies était dix fois plus grande que chez les autres médecins, et qu'elle est devenue semblable à celle des autres médecins à partir de 1950, grâce aux précautions prises, sur la base de normes de protection bien moins sévères que celles en vigueur aujourd'hui (la dose limite est de 150 mSv/an) [18].

3.2. Les survivants de Hiroshima et de Nagasaki

La dernière mise à jour trouve un excès significatif de tumeurs solides pour une dose de 50 mSv [21]. Toutefois, ce résultat a fait l'objet de controverses en raison

(3) hSv ou homme-sievert est une unité de dose collective égale à la somme des doses reçus par l'ensemble des membres de la population considérée : ainsi 1 hSv peut résulter de l'exposition de 10 hommes à 0,1 Sv ou de 1 000 à 0,001 Sv. Cette unité ne permet de calculer un risque que si la relation dose-effet est linéaire.

des incertitudes dosimétriques et il est prudent d'attendre confirmation. Pour les leucémies, un travail de Little *et al.* [16] a conclu que la relation dose-effet ne pouvait être ni linéaire-quadratique ni linéaire.

Il existe donc une discordance entre les données de Hiroshima et de Nagasaki et celles provenant des travailleurs irradiés. Pour les tumeurs solides, il n'y a pas d'effet aux faibles doses chez les travailleurs et l'effet est compatible avec une relation linéaire chez les irradiés atomiques. Pour les leucémies, au contraire, la relation dose-effet n'est pas compatible avec une relation linéaire chez les irradiés atomiques, alors que chez les travailleurs atomiques, les observations seraient compatibles avec une relation linéaire sans seuil.

Certes les fluctuations statistiques (malgré le nombre considérable de sujets exposés, mais à cause du faible nombre de cancers) et les incertitudes dosimétriques [1, 20, 23] peuvent expliquer ces discordances. Néanmoins, celles-ci, notamment en ce qui concerne les tumeurs solides, pourraient aussi être dues à la différence de débit de dose (très élevé pour les explosions atomiques, très faible pour les travailleurs) qui ainsi, même dans le domaine des faibles doses, exercerait une influence, contrairement aux prévisions du modèle linéaire ou linéaire quadratique.

3.3. Autres irradiations

Ces incertitudes expliquent pourquoi, il est important de continuer à rassembler les données épidémiologiques.

Quelques résultats récents méritent mention notamment sur les *malades irradiés*. D'abord l'absence d'augmentation de la fréquence des cancers de la thyroïde et des leucémies chez les 47 000 sujets examinés ou traités avec l'iode radioactif ^{131}I (la dose thyroïdienne moyenne est d'environ 1,5 Sv) alors que chez les sujets ayant reçu plus de 400 mCi d'iode pour traitement d'un cancer thyroïdien la fréquence des leucémies a augmenté notamment chez les sujet ayant reçu en plus une irradiation externe [26, 28]. Ce risque est d'ailleurs inférieur à celui prédit par le coefficient de leucémogénèse de la CIPR.

Deux autres études effectuées chez des enfants traités pour angiome de la région cervicale pendant les premiers mois de la vie confirment l'extrême radiosensibilité de la thyroïde du jeune enfant et montrent une augmentation de la fréquence des cancers thyroïdiens (jusqu'à des doses aussi faibles que 0,1 Sv). Le coefficient de risque reste cependant inférieur à celui de Hiroshima et de Nagasaki [26]. La comparaison chez 400 enfants entre irradiation à débit élevé et à faible débit montre l'impact considérable du débit.

Le nombre élevé des cancers du corps thyroïdien (environ 600) observé dans les environs de Tchernobyl à la suite de l'accident montre toutefois que des doses de l'ordre de quelques centaines de mSv délivrées par l'iode radioactif, (iode 131 de période 8 jours et iodes radioactifs à période plus courte) peuvent avoir un effet cancérigène important chez les jeunes enfants. L'interprétation de ces données

doit tenir compte de la carence iodée qui a augmenté la fixation d'iode radioactif par la thyroïde. Il faut noter qu'à ce jour, aucune augmentation de la fréquence des leucémies n'a été décelée autour de Tchernobyl, alors qu'avec le recul actuel et les doses délivrées, on en aurait attendu plusieurs centaines.

Chez les 65 000 femmes canadiennes surveillées par radioscopies itératives pour pneumothorax thérapeutique on a observé une augmentation de la fréquence des cancers du sein, mais aucune augmentation de la fréquence des cancers du poumon ou des leucémies malgré des doses de 1 Sv au poumon.

Inversement chez les mineurs des mines d'uranium on n'observe aucun excès de leucémies malgré une augmentation de la fréquence des cancers du poumon mais dans ce cas il faut tenir compte de l'existence dans les mines de co-cancérogènes agissant sur le poumon (poussières, arsenic) [1, 28].

Des études ont été effectuées en Russie sur des *travailleurs de Mayak*, la première usine nucléaire russe [28] ; malgré des conditions méthodologiques difficiles, elles méritent considération. Au début de l'activité de cette usine, de nombreux travailleurs ont reçu des doses de rayonnement externe très importantes, supérieures à 1 Sv par an pour certains ; seule la mortalité par leucémies et lymphomes apparaît supérieure à celle de la population russe non irradiée alors que la mortalité par tumeur solide n'est pas augmentée. Une augmentation de la mortalité par cancer du poumon n'est observée que chez les travailleurs ayant manipulé du plutonium. Pour les populations de la Vallée de la Técha (environs de Mayak) où des contaminations très importantes avaient été causées par les déchets, aucune augmentation de la fréquence des tumeurs solides n'a été notée et celle de la fréquence des leucémies n'est observée qu'à partir de doses supérieures à 500 mSv.

Une autre source importante d'information sur les faibles doses provient de l'étude des populations soumises à différents niveaux *d'irradiation naturelle*. Celle-ci varie de la surface de la terre, entre 1,5 et 6 mSv/an, exceptionnellement elle peut dépasser 15 mSv/an. Aucune augmentation de la fréquence des cancers n'a été décelée malgré de très nombreuses enquêtes [8, 28]. Plusieurs études ont comparé la fréquence des leucémies dans des régions à haute et basse radioactivité naturelle. Il n'existe en Grande-Bretagne ou en France aucune élévation de la fréquence des leucémies dans les régions à forte irradiation naturelle. Les enquêtes les plus importantes ont été effectuées en Chine [8, 29, 30], où des populations voisines, de mode de vie comparable, sont soumises à des niveaux d'irradiation différents en fonction de la richesse du sol en thorium ; comme ces populations voyagent peu, cette stabilité donne de la fiabilité aux études épidémiologiques. Une comparaison entre deux régions de la Chine où les doses annuelles d'irradiation à la moelle osseuse sont respectivement de 1,9 mSv et 0,72 mSv a montré que la fréquence des leucémies était environ 30 % plus faible dans la région où la dose était la plus forte. Or le calcul théorique prévoyait que pour une telle différence de dose (60 mSv en 50 ans) le risque aurait dû être augmenté d'environ 20 %. Une autre étude effectuée en Chine a analysé l'influence de l'irradiation naturelle sur la fréquence des nodules et cancers thyroïdiens : pour une

différence de dose de 100 mSv en 50 ans, aucune différence n'a été constatée. Cependant la puissance statistique de ces enquêtes est trop faible pour permettre d'exclure le coefficient de risque proposé par la CIPR.

L'irradiation naturelle la plus importante et la plus variable selon les régions est celle due au *radon*. Malgré une vingtaine d'enquêtes épidémiologiques, aucun excès significatif de la fréquence des cancers du poumon n'a été décelé dans les régions à forte concentration en radon, bien que l'irradiation pulmonaire supplémentaire ait pu atteindre plusieurs centaines de mSv [28]. Les enquêtes géographiques sont cependant critiquables dans la mesure où les doses individuelles ne sont pas connues et une association entre exposition moyenne et incidence du cancer du poumon pourrait être masquée par d'autres facteurs notamment le tabac. Des études cas-témoin, ont été effectuées, dans lesquelles les doses reçues par chaque individu ont été estimées ; on a pu ainsi comparer la dose pulmonaire des sujets atteints de cancer du poumon et des témoins. Les résultats discordants de ces études ne permettent ni de confirmer ni d'exclure un effet cancérigène du radon [28]. Une étude récente a eu le mérite d'éliminer le facteur tabac en s'adressant uniquement à des femmes n'ayant jamais fumé ; elle n'a décelé aucune influence de la concentration en radon dans les habitations sur l'incidence du cancer du poumon [2]. Ainsi ces enquêtes n'apportent aucun argument en faveur du rôle du radon dans la genèse des cancers du poumon mais, en l'absence d'une puissance statistique suffisante, elles ne permettent pas de l'exclure. Il est donc souhaitable que ces études soient poursuivies et regroupées. Il apparaît en tout cas qu'il n'est pas justifié d'estimer le risque du radon dans les habitations par une extrapolation linéaire effectuée à partir des observations faites dans les mines d'uranium dans lesquelles d'autres facteurs cancérigènes sont présents (arsenic, poussière). D'ailleurs le peu de crédibilité du rôle du radon domestique dans la genèse des cancers du poumon est soulignée par le fait qu'aucun gouvernement (pas même le britannique) n'a agi en ce domaine.

Enfin des enquêtes effectuées sur des sujets vivant au voisinage des établissements nucléaires aux États-Unis [14] et en France [11] n'ont révélé aucune augmentation de la fréquence des leucémies ou des cancers, mais les doses reçues étaient minimales et ce résultat négatif n'est pas surprenant. L'excès de leucémies observé au Royaume-Uni au voisinage des établissements de Sellafield et de Dounreay ne semble pas en relation avec une irradiation ou une pollution radioactive, les conclusions des récents articles [10] et ceux de l'enquête effectuée à l'occasion du procès rejettent l'hypothèse d'un rôle causal de l'irradiation des enfants ou des pères. Périodiquement, on voit apparaître des articles signalant une augmentation de la fréquence des leucémies autour d'un établissement : centrale nucléaire ou usine de retraitement, en particulier La Hague. Les insuffisances méthodologiques de ces publications en rendent ces résultats extrêmement peu fiables et il s'agit là de phénomènes médiatiques comparables à celui de Sellafield.

Ainsi l'ensemble des études épidémiologiques ne révèle aucune donnée probante sur l'effet cancérigène au-dessous de 100 mSv et certainement aucune donnée en faveur d'une relation linéaire entre 0 et 200 mSv (voir déclaration de la

Health Physic Society). Le fait le plus encourageant est la précision grandissante des informations fournies par les enquêtes. La réduction progressive de l'intervalle de confiance grâce à des études épidémiologiques de plus en plus puissantes et de mieux en mieux conduites permet d'escompter, dans un avenir proche (de l'ordre de cinq ans), des données plus précises sur l'effet des rayonnements à faible dose-faible débit. Nous n'envisageons pas ici les effets provoqués par une irradiation *in utero* car il s'agit d'un autre phénomène [28].

4. La relation dose-effet pour les radio-éléments émetteurs α (radium et thorium)

De toutes les études épidémiologiques concernant l'effet des rayonnements ionisants sur l'organisme humain, la plus ancienne et sans doute celle qui reste l'une des plus précises et informatives est celle qui a été initiée en 1932 par R. D. Evans au MIT. (Boston) à la suite des premières constatations en 1931 sur les conséquences d'une contamination par le radium. Depuis 60 ans, elle a permis d'établir une relation dose-effet précise pour l'induction de cancer chez l'homme qui montre, sans ambiguïté, l'existence d'un seuil pratique [6].

La figure 4 montre la relation dose-effet chez les peintres en cadrans lumineux contaminés par le radium 228. D'autres travaux ont été effectués sur des sujets ayant reçu, par voie intraveineuse, du thorotrast, produit à base de thorium qui a été utilisé comme agent de contraste en radiodiagnostic pendant une trentaine d'année car il permettait d'obtenir d'excellentes images des vaisseaux. Le thorotrast a provoqué des cancers du foie et dans ce cas également, il existe indubitablement un seuil pratique [28] (voir figures 5 et 6). Dans les deux cas on n'observe un excès de cancers que pour des doses supérieures à quelques sievert. Comme l'a conclu le rapport BEIR IV de la *National Academy of Science* [6] consacré aux irradiations particulières, l'existence d'un seuil pratique est extrêmement vraisemblable dans ces cas. Comme le délai de latence est d'autant plus long que la dose est plus faible, le seuil pourrait être du à ce que le délai devient supérieur à l'espérance de vie [6].

Cette conclusion est corroborée par l'expérimentation animale très poussée effectuée chez les chiens et les animaux de laboratoire. Ces résultats ne sont pas compatibles avec le modèle de la CIPR puisque c'est pour ce type de rayonnement que la relation linéaire sans seuil, à partir des doses les plus basses, serait la plus plausible. En effet le principal argument contre l'existence d'un seuil est qu'une irradiation même faible peut causer des lésions irréversibles de l'ADN et que celles-ci peuvent contribuer à un processus de cancérisation en ajoutant une lésion supplémentaire à celles dues à d'autres causes. Ce raisonnement postule que les lésions de l'ADN provoquées par les rayonnements ionisants pourraient être moins réparables que celles dues aux agents d'oxydation normalement présents dans les cellules car les transferts d'énergie élevés déterminés par les radiations ont une

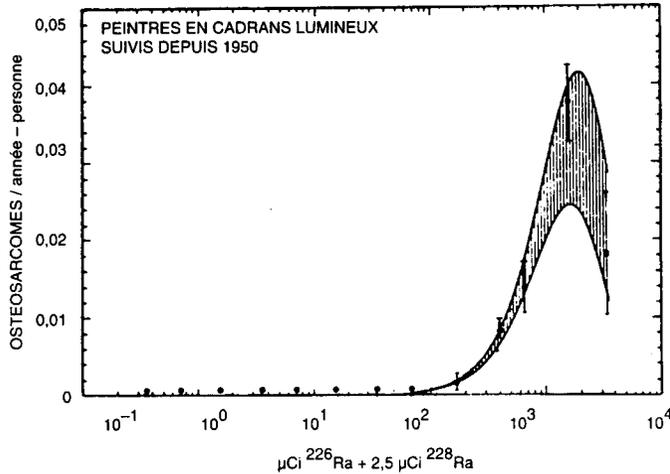


Figure 4 : Relation dose-effet pour les ostéosarcomes provoqués par une irradiation interne par le radium 226 et le radium 228 (émetteur α de 1600 ans de période) chez les peintres en cadrans lumineux. Aucune augmentation de la fréquence des cancers n'est observée pour des activités faibles. À partir d'une activité correspondant à une irradiation totale de quelques grays, la fréquence (exprimée en nombre de cas par an par personne exposée au risque) croît d'abord très lentement puis rapidement, passe par un maximum pour quelques dizaines de grays, puis décroît. La fonction qui décrit le mieux cette relation dose-effet est : $I = (c + \beta D^2) e^{-\gamma D}$ où D est la quantité de radium fixée. La dose grisée indique la bande couverte par la fonction. Les barres d'erreur correspondent à l'erreur standard. D'après Rowland R.E., Stehney A.F. and Lucas H.F., Dose-response relationship for radium-induced bone sarcomas, *Health Physics* 44 Suppl. 1 (1983) 15-31.

forte probabilité de causer des lésions irréparables. D'après cette thèse les rayonnements ionisants provoqueraient des lésions différentes de celles de celles causées par le métabolisme normal dans la cellule ou par les cancérogènes chimiques. Cependant cette assertion n'a pas été étayée par des données expérimentales ou microdosimétriques. Or, parmi les rayonnements ionisants les transferts d'énergie linéaire les plus élevés sont ceux causés par particules α et c'est donc pour celles-ci que la proportion de lésions irréparables de l'ADN, et donc de cancers, aurait du être proportionnelle à la dose dès les irradiations les plus faibles.

5. La fiabilité des prédictions fondée sur le modèle L-Q

Pour tester la validité d'une théorie ou d'un modèle, l'usage en science est de rechercher si ses prédictions sont en accord avec les faits. La plus importante

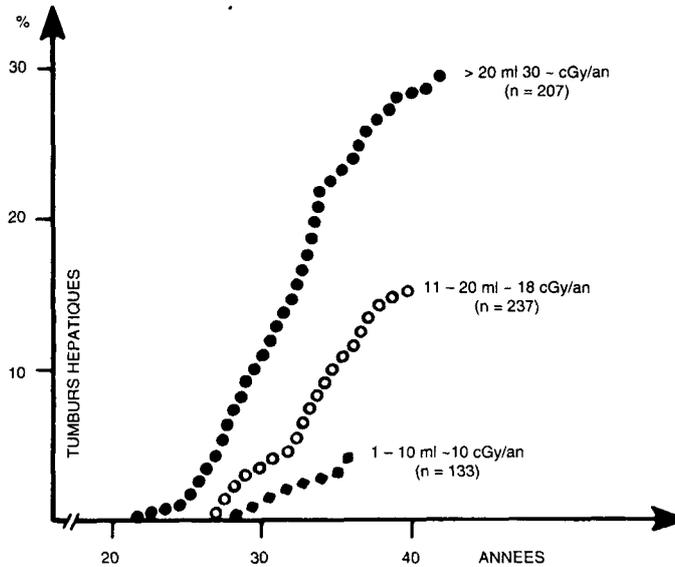


Figure 5 : Hépatomes provoqués chez l'homme par injection de dioxyde de thorium, ou thorotrast, produit de contraste autrefois utilisé en radiologie vasculaire. Le débit de dose pour cet émetteur α est très hétérogène en raison du caractère de sa fixation par les cellules du parenchyme hépatique. Parmi 2 135 sujets et sur 1 689 décès, 256 cas de cancers hépatiques ont été observés de 16 à 40 ans après injection. Plus la dose est grande, plus la fréquence des hépatomes est élevée et plus le délai d'apparition est court. On observe également un délai d'autant plus long que la dose est plus faible après contamination par un cancérogène chimique. Ces données suggèrent l'existence de vie du sujet irradié (d'après G. von Kaick *et al.*, *Radiation carcinogenesis* (Raven Press, 1984).

prédiction du modèle est que comme l'effet cancérogène dans le domaine des faibles doses est la conséquence d'un seul événement physique dans une seule cellule, il en résulte que :

- 1) toute dose, si faible soit-elle, comporte un risque cancérogène et la relation est linéaire ;
- 2) dans ce domaine de dose, l'effet n'est pas influencé par le débit.

La première prévision n'a jamais pu être prouvée, et comme nous venons de le voir, de nombreux arguments donnent à penser qu'il en est autrement, notamment pour les rayons α [1, 26]. Quant à la deuxième, elle est contredite par les faits puisque même aux doses les plus faibles pour lesquelles un effet cancérogène ait été observé, cet effet paraît influencé par le débit et considérablement réduit quand celui-ci est très faible. Il en est ainsi même pour les irradiations effectuées avec des particules α [19], bien que dans ce cas le transfert d'énergie se fasse par des paquets importants qui sont ceux déterminants les lésions ayant la plus grande probabilité d'être irréparables et donc pour lesquels, d'après le modèle L-Q, l'effet devrait être indépendant du débit.

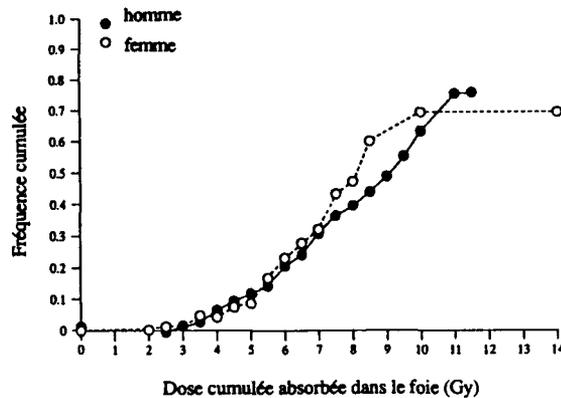


Figure 6 : Incidence cumulative des cancers du foie après injection du thorostrast (étude danoise). Aucune augmentation dans la fréquence de ces cancers n'est observée pour des doses inférieures à 3 grays (d'après le rapport UNSCEAR 1994).

Sur le plan quantitatif, les prédictions fondées sur le coefficient du risque actuel ont été toujours (comme nous venons de le voir) supérieures aux nombres de cancers constatés. Or malheureusement, on présente souvent les prédictions faites sur ces bases comme des faits scientifiques : ainsi on a annoncé que Tchernobyl causeraient l'apparition plus de 6 000 cancers et plusieurs centaines de leucémies. Le public est convaincu de la validité de ces prédictions et quelquefois même les trouve optimistes. Or on n'a décelé, dix ans après l'accident, aucune augmentation de la fréquence des leucémies ni en Europe Orientale, ni dans l'Ex-URSS, bien que l'on ait observé une augmentation de la fréquence des cancers du corps thyroïdien, ce qui montre qu'une augmentation de fréquence est détectable. La seule prédiction que l'on puisse faire en l'état actuel des connaissances serait d'annoncer entre 0 et 6 000 cancers en excès (en dehors des cancers thyroïdiens) ; avancer des chiffres précis est une imposture scientifique (voir déclaration de la Health Society, donnée en annexe).

6. Validité des postulats du modèle L-Q

Ce modèle est fondé sur quelques hypothèses devenues au fil du temps des postulats mais dont la validité a été remise en cause depuis quelques années par l'observation des faits [1, 3, 17, 22, 24, 31].

- Les lésions de l'ADN, à haut débit de dose et à faible débit de dose sont identiques, leur nombre est uniquement fonction de la dose, quel que soit le débit ; de plus ces lésions sont différentes de celles survenues au cours du métabolisme normal de la cellule et sont moins réparables. Il n'y a aucune donnée expérimentale en faveur de cette thèse. Certes, il est concevable que les

transferts élevés d'énergie survenant au cours de certaines interactions provoquent des lésions irréparables, mais rien ne prouve que leur fréquence est aussi élevée que celle prévue par le modèle linéaire quadratique. De plus, la plupart d'entre elles devraient être éliminées par la mort programmée des cellules lésées (apoptose) tant que ce système est fonctionnel.

- La probabilité de réparation des lésions soit par le système enzymatique constitutionnel (constamment présent dans les cellules) soit par le système inductif (apparu sous l'influence des lésions initiales) n'est pas influencée par la dose et le débit de dose : cette hypothèse, qui a été discutée dans le rapport de l'Académie des sciences [1], apparaît hautement conjecturale puisque les systèmes inductifs de type SOS qui sont mis en œuvre à forte dose ou fort débit de dose ont une probabilité de réparation fautive beaucoup plus grande ;
- La probabilité pour que la lésion d'une molécule d'ADN conduise à un cancer est identique, indépendamment :
 - de l'existence ou non d'autres troubles génétiques ou épigénétiques causés dans la même cellule par l'irradiation ;
 - de l'environnement dans lequel se trouve la cellule lésée, notamment de l'existence ou non de lésions dans les cellules environnantes. Cette hypothèse est manifestement contredite par les faits, puisque si la cellule lésée est entourée de cellules endommagées ou tuées par l'irradiation, ce déficit cellulaire met en branle des mécanismes de compensation qui stimulent la prolifération des cellules ; or la division cellulaire interfère alors avec la réparation de l'ADN et diminue son efficacité [1, 26] ;
- Malgré la très grande complexité de la cancérogenèse qui nécessite l'accumulation d'un grand nombre de lésions dans le génome d'une seule cellule, le modèle admet que la probabilité d'émergence d'un cancer est proportionnelle au nombre de cellules dans lesquelles une lésion non réparable de l'ADN a été causée par l'irradiation. Le nombre des cellules "initiales" détermine donc la probabilité de cancer 20 à 30 ans plus tard. Cette hypothèse est contestable et n'a jamais été confirmée par des données expérimentales ou biologiques. La transformation d'une cellule normale en cellule cancéreuse nécessite l'accumulation, dans cette cellule, d'un grand nombre de lésions et les facteurs qui influencent le plus la probabilité de cancer sont ceux liés non pas à l'irradiation (lésions initiales de l'ADN) mais à la promotion, c'est-à-dire aux événements survenus entre l'initiation et la naissance de la première cellule cancéreuse. Or il est vraisemblable que l'état du tissu, c'est-à-dire des cellules qui environnent la cellule "initiale", joue un grand rôle dans cette promotion. Le cancer survient rarement dans un tissu sain, il est favorisé par un dysfonctionnement du tissu dans lequel interviennent les dommages infligés à l'ensemble des cellules. Considérer les cellules indépendamment du tissu est un réductionnisme qui semble excessif [5, 13].

D'ailleurs si la lésion d'une seule cellule était à l'origine du cancer, la gravité de celui-ci devrait être indépendante de la dose, or ce n'est pas le cas. Plusieurs observations suggèrent une plus grande gravité des cancers apparus après des doses

Tableau II : Valeurs moyennes annuelles d'exposition (en mSv)

Exposition externe d'origine naturelle	0,77	} 2,3 (entre 1,5 et 6 selon les régions)
Exposition interne d'origine naturelle	1,56	
Exposition d'origine médicale	1	
Industrie nucléaire (de l'extraction de l'uranium aux déchets)	0,02	
Essais nucléaires atmosphériques	0,1	

élevées ou des irradiations répétées ; ceci peut s'expliquer aisément si l'on admet le rôle de la prolifération cellulaire dans l'accumulation des lésions.

De plus le modèle prédit que l'on peut calculer le nombre de cancers induits à partir de la dose collective (en homme-Sievert) ce qui n'a jamais été observé et est très peu plausible.

Plusieurs auteurs ont proposé d'autres modèles échappant à ces critiques dans lesquels on tient compte, notamment, de la possibilité d'apoptose, et de réparation des dommages de l'ADN. Ces modèles prédisent l'existence d'un seuil. Mais ils restent hypothétiques et il faudrait les valider, ce qui requiert un approfondissement de la recherche fondamentale.

7. Commentaires sur les nouvelles normes de radioprotection

En terminant, il peut être utile de faire quelques remarques à propos des nouvelles normes. Les valeurs moyennes annuelles d'exposition pour l'homme en France [1] sont indiquées dans le tableau II.

Pour le public la nouvelle dose limite est de 1 mSv/an. Or l'écart des doses entre les régions à faible ou à forte dose de rayonnement naturel est supérieur à 2 mSv. Aucune variation dans la fréquence des maladies [8, 28] n'a été constatée pour de telles différences. Certes il faut poursuivre et affiner ces études, mais il n'est pas légitime d'ici là d'inquiéter les populations vivant dans le Massif central ou en Bretagne en fonction d'hypothèses incertaines. Dire que cette limite est indiquée pour les rayonnements d'origine humaine alors qu'il s'agit dans ces cas d'irradiation d'origine naturelle est un contresens scientifique. Un mSv est un mSv quelle que soit son origine et dans les deux cas, il entraîne les mêmes conséquences biologiques (ou la même absence de conséquence).

En France, environ 200 000 travailleurs (dont plus de la moitié dans les hôpitaux) sont exposés aux rayonnements ionisants et sont surveillés par dosimétrie. L'analyse des résultats dosimétriques de l'Office de protection contre

les rayonnements ionisants (OPRI) de 1990 à 1993 montre que moins de 3 % des travailleurs ont reçu une dose supérieure à 10 mSv/an et environ 1 % plus de 15 mSv/an [1]. En ce qui concerne la dose cumulée pendant une existence professionnelle, les données du Centre international de recherche sur le cancer (CIRC) sur les 100 000 travailleurs de l'industrie nucléaire des États-Unis, Royaume-Uni, Canada ayant régulièrement été suivis par dosimétrie indiquent que la dose-vie cumulée a été supérieure à 500 mSv chez moins de 1 % des travailleurs et supérieure à 1 000 mSv chez moins de 1 pour mille des travailleurs [4]. Ces chiffres incluent les travailleurs ayant travaillé pendant les années 1950, période où la radioprotection était balbutiante. Depuis 1960, dans tous les pays les doses ont été notablement réduites et, si l'on se limitait aux travailleurs ayant commencé leur activité après 1960, les doses seraient nettement plus faibles. Un abaissement des normes ne réduirait que de façon minimale les doses reçues par les travailleurs et le public.

En 1993, en France, la dose collective due à l'exposition de l'ensemble des travailleurs a été de 200 hSv à comparer aux 50 000 hSv dus à l'irradiation médicale et aux 130 000 hSv liés à l'irradiation naturelle [27] (voir tableau III). Rappelons que les examens radiologiques délivrent des doses variant entre 0,1 mSv et 200 mSv selon le type d'examen. Or, des progrès réalisés dans les générateurs de rayons X ou dans les détecteurs permettraient d'entraîner une réduction notable de l'irradiation au cours de ces examens. Logiquement, priorité devrait donc être donnée à cette question sur le plan de la radioprotection. Pour le reste, l'attitude dite de prévention prudente (*prudent avoidance*), chère à nos collègues anglo-saxons ou suédois, paraîtrait logique : réduire les doses quand cela est possible sans bouleverser les procédures, sans remettre en cause la stratégie de la radioprotection ou sans inquiéter la population. Il faut, par contre, profiter du délai prévu par les traités pour pousser au maximum les recherches, car celles-ci détiennent les clés de l'avenir, en ce domaine comme dans bien d'autres.

Tableau III : Irradiation de la population française (d'après [27])

Origine	Dose (hSv)	Réduction possible (hSv)
Irradiation naturelle	130 000	1 000 (radon maison)
Irradiation médicale	50 000 à 90 000	5000 à 10 000
Centrales nucléaires	1400	15
Irradiation professionnelle (électronucléaire + hôpitaux)	160	(nouvelles normes)

Ainsi quelle que soit la direction vers laquelle on se tourne, la recherche apparaît comme une nécessité. Recherches pratiques et instrumentales en radiodiagnostic, recherches épidémiologiques, recherches fondamentales sur les systèmes de réparation de l'ADN et sur les mécanismes de cancérogenèse.

D'immenses progrès ont été faits depuis dix ans ; ils en laissent espérer de nouveaux. D'ici là, les valeurs des coefficients de risque doivent être considérées comme des hypothèses volontairement prudentes, intéressantes pour fixer les normes d'exposition pour le travailleur, peut-être trop prudentes pour la fixation des normes concernant le public car susceptibles d'inquiéter inutilement puisque la norme recommandée (1 mSv/an) est très inférieure aux variations dans la dose naturelle d'une région à l'autre de la France. Il faut à la fois montrer les limites des prédictions faites sur la base des coefficients de risque actuels et rassurer le public et les travailleurs, qui pourraient être indûment inquiétés par ces prédictions et les nouvelles normes. Il faut surtout promouvoir celles des recherches susceptibles d'apporter les réponses aux interrogations que pose, aujourd'hui, la radio-cancérogénèse à faible dose.

Annexe : le risque des rayonnements ionisants mis en perspective ⁽⁴⁾

En accord avec les connaissances actuelles sur les effets sanitaires des radiations ionisantes, la *Health Physics Society* déconseille une estimation quantitative du risque pour les doses individuelles inférieures à 5 rem/an (50 mSv/an) ou une dose-vie inférieure à 10 rem (100 mSv) venant s'ajouter à l'irradiation naturelle. L'estimation du risque dans cette gamme de doses doit rester strictement qualitative en raison de la variabilité des conséquences sanitaires envisageables parmi lesquelles notamment l'absence de tout effet nocif qui est une éventualité probable. La philosophie de la radioprotection est actuellement fondée sur l'hypothèse que toute dose de radiation, si faible fut-elle, peut entraîner des effets tel l'induction du cancer et d'effets génétiques héréditaires. Pour les fortes doses, il existe des données convaincantes démontrant l'existence d'effets nocifs. Au-dessous de 10 rem (100 mSv) (dose incluant l'exposition professionnelle et environnementale) les effets sanitaires sont trop petits pour être observés ou sont inexistantes.

Les normes de radioprotection et leur mise en œuvre sont fondées sur le postulat que toute dose même très faible peut entraîner des effets nocifs tel que des cancers et des effets génétiques. De plus, on a supposé que la grandeur de ces effets est proportionnelle à la dose absorbée, autrement dit qu'un doublement dans les doses de radiation entraîne un doublement de l'effet. Ces deux hypothèses conduisent à une relation dose-effet souvent désignée comme celle d'un modèle linéaire sans seuil pour évaluer les effets sur la santé causés par une dose quelconque. Il existe, cependant, des données scientifiques permettant de penser

(4) Traduction de la déclaration de la *Health Physics Society*, Position statement: radiation risk in perspective, K. Mossman, M. Goldman, F. Masse, W. A. Mills, K. Schiager et R. J. Vetter, *Health Phys. Soc. News Letter* **24** (1996) 3.

que ce modèle constitue une simplification abusive de la relation dose-effet et entraîne une surestimation des effets sur la santé dans le domaine des faibles doses. Des mécanismes biologiques, incluant la réparation des lésions cellulaires, qui ne sont pas pris en compte par le modèle linéaire sans seuil, réduisent la probabilité d'effet cancérogène et génétique.

Aucun effet des rayonnements sur la santé n'a été observé pour des doses inférieures à 10 rem (100 mSv).

Les effets des radiations sur la santé (principalement l'induction de cancer) sont observés chez l'homme seulement pour des doses supérieures à 10 rem délivrées à fort débit de dose. Pour des doses inférieures, toute estimation des effets est pure spéculation. L'évaluation des risques qui est utilisé pour prédire des effets sanitaires chez les sujets irradiés ou des populations sont fondées sur des études épidémiologiques effectuées sur des populations bien définies (par exemple les Japonais ayant survécu aux explosions atomiques en 1945 et les malades irradiés) ayant reçu des doses délivrées avec un fort débit de dose. Les études épidémiologiques n'ont pas démontré d'effet nocif chez les sujets exposés à de faibles doses (moins de 10 rem) délivrées sur une période de plusieurs années.

Limite de validité de toute estimation quantitative du risque à des doses égales ou supérieures à 5 rem par an ou 10 rem pendant la vie

En vertu de ce qui vient d'être dit, la *Health Physics Society* a conclu que toute estimation de risque devrait être faite uniquement pour des sujets ayant reçu au moins 5 rem en un an ou une dose-vie d'au moins 10 rem s'ajoutant à l'irradiation naturelle. Au-dessous de ces doses, aucune estimation de risque ne peut être faite : l'estimation du risque doit être uniquement qualitative et doit souligner l'incapacité de détecter un effet nocif (l'absence d'effet est l'éventualité la plus probable).

Conséquence pour la radioprotection

Limiter l'estimation quantitative du risque, comme décrit ci-dessus, a les implications suivantes en radioprotection :

- l'éventualité d'un effet sur la santé des faibles doses ne peut pas être entièrement rejetée, l'estimation du risque doit indiquer une gamme d'éventualités incluant l'absence d'effet ;
- la dose collective (la somme des doses individuelles reçue de la population exprimée en homme-rem ou homme-sievert) reste un indice utile pour quantifier les doses reçues par des populations importantes et comparer la grandeur d'irradiations d'origine diverse. Cependant pour une population dans laquelle tous les individus reçoivent une dose vie inférieure à 10 rem s'ajoutant à l'irradiation naturelle, la dose collective est un paramètre du risque de caractère

spéculatif et très incertain et ne doit pas être utilisé pour estimer le risque auquel est exposé la population.

Bibliographie

Cette bibliographie est limitée à quelques revues générales et articles récents. Pour une bibliographie plus complète se reporter au rapport de l'Académie des sciences [1] et à M. Tubiana [26].

- [1] Académie des sciences, Problèmes liés aux faibles doses des rayonnements ionisants, rapport n° 34 (1995).
- [2] Alavanja M.C.R., Brownson R.C., Lubin J.H., Berger E., Chang J. and Boice J.D., Residential radon exposure and lung cancer among nonsmoking women, *J. Nat. Cancer Inst.* **86** (1994) 1829-1837.
- [3] Bond V.P., Wielopolski L., Shanir G., Current misinterpretation of the linear no threshold hypothesis, *Health Phys.* **70** (1996) 877.
- [4] Cardis E., Gilbert E.S., Carpenter L. *et al.*, Effects of low doses and low dose rates of external ionizing radiation : cancer mortality among nuclear industry workers in three countries, *Rad. Research* **142** (1995) 117-132.
- [5] Clark W.H., The nature of cancer: morphogenesis and progressive self-disorganization in neoplastic development and progression, *Acta Oncologica.* **34** (1995) 3-21.
- [6] Committee of the Biological Effects of Ionizing Radiation (BEIR), Health risks of radon and other internally deposited α -emitters, *BEIR IV* (National academic press, Washington, 1988).
- [7] Curtis E., Boice J.D., Stovall M. *et al.*, Relationship of leukemia risk to radiation dose following cancer of uterine corpus, *J. Nat. Cancer Inst.* **86** (1994) 1315-1324.
- [8] Conference on high levels of natural radiation, Beijing (China) 21-25 october 1996.
- [9] De Vathaire F., Shamsalfin A., Grimaus E. *et al.*, Solid malignant neoplasms after childhood irradiation : Decrease of the relative risk with time after irradiation, *C. R. Académie des Sciences Paris* **318** (1995) 483-490.
- [10] Doll R., Evans H.J., Darby S.C., Paternal exposure not to blame, *Nature* **367** (1994) 678-680.
- [11] Hill C. and Laplanche A., Overall mortality and cancer mortality around French nuclear sites, *Nature* **347** (1990) 755-757.

- [12] International Commission on Radiological Protection (ICRP), Recommendations of the commission (publication 60) *Ann. ICRP* **21** n° 1-3 (Pergamon press, Oxford, 1991).
- [13] Ito N., Hagawa R., Imoida K *et al.*, Concepts in multistage carcinogenesis, *Critical review in oncology-hematology* **21** (1995) 105-133.
- [14] Jablon S., Hrubec Z., Boice J.D. and Stone B.J., Cancer in populations living near nuclear facilities, *NIH publication* n° 90874 (1990).
- [15] Little M.P., Hawkins M.M., Shore R.E., Charles M.W. and Hildreth N.G., Time variations in the risk of cancer following irradiation in childhood, *Rad. Research* **136** (1991) 304-316.
- [16] Little M.P. and Muirhead C.R., Evidence for curvilinearity in the cancer incidence dose response in the japonese atomic bomb survivor, *Int. J. Rad. Biol.* **70** (1996) 83-94.
- [17] Masse R., Point de vue sur les nouvelles normes, *Revue Générale Nucléaire* **6** (1996) 12-14.
- [18] Matanoski G.M., Startwell P., Elliott E. *et al.*, Cancer risks in radiobiologists and radiation workers, *Radiation carcinogenesis: epidemiology and biological significance* (J. Boice and J. Fraumeni Eds., Raven Press, New-York, 1994).
- [19] Morlier J.P., Morin M., Chameaud J., Masse R., Bottard S. and Lafuma J., Importance du rôle du débit de dose sur l'apparition des cancers pulmonaires chez le rat après inhalation de Radon, *C. R. Académie des Sciences PARIS* **315** (série III, 1992) 463-466.
- [20] Neriishi K., Wong F. L., Nakashima E. *et al.*, Relationship between cataracts and epilation in atomic bomb survivors, *Rad. Research* **144** (1995) 107-113.
- [21] Pierce D.A., Shimizu Y., Preston D.L. *et al.*, Studies of the mortality of atomic bomb survivors, *Radiat. Research* **146** (1996) 1-27.
- [22] Pollycove M., The issue of the decade : hormesis, *Europ. J. Nucl. Med* **22** (1995) 399-401.
- [23] Straume T., Egbert S.D., Woolson W.A., Finkel R.C., Kubic P.W., Gove H.E., Sharma P. and Hosni M., Neutron discrepancies in the DS 86 Hiroshima Dosimetry System, *Health Physics* **63** (1992) 421-426.
- [24] Sugahara T. and Watanabe M., Epigenetic nature of radiation carcinogenesis at low doses, *Int. J. Occupat. Med. Toxicol.* **3** (1994) 129.
- [25] Thomson J.F. and Grahn D., Life shortening in mice exposed to fission neutrons and γ rays. Exposures to continuous γ radiation, *Radiation Research* **118** (1989) 151-160.
- [26] Tubiana M., Effets cancérogènes des faibles doses de rayonnements ionisants, *Radioprotection* **31** (1996) 155-191.

-
- [27] Tubiana M., Les avancées de la radiologie médicale et ses contraintes, *Concours médical - Suppl. n°35* (1996) 63-65.
- [28] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Sources and Effects of Ionizing Radiations (United Nations, New York, 1994).
- [29] Wang J., Statistical analysis of cancer mortality data of high background radiation areas in Yiangjiang, *Chin. J. Rad. Med. Prot.* **13** (1993) 291-294.
- [30] Wang Z., Boice J.D. and Wei L., Thyroid nodularity and chromosome aberrations among women in areas of high background radiation in China, *Journal of the National Cancer Institute* **82** (1990) 4778-4785.
- [31] Wyngaarden K.L. van, Pauwels F.K.J., Hormesis : are low doses of ionizing radiation harmful or beneficial ? *Europ. J. Nucl. Med.* **22** (1995) 481-486.

Table des matières

<i>Remerciements</i>	II
<i>Préface</i>	III
<i>Avant-propos</i>	V
<i>Sommaire</i>	IX

INTRODUCTION AU PROBLÈME DES DÉCHETS NUCLÉAIRES

Chapitre 1

Le dossier des déchets nucléaires

par **Jean-Paul SCHAPIRA**

1. Introduction.....	3
2. Production et gestion des matières nucléaires et des déchets dans le cycle du combustible.....	6
2.1. Généralités et risques liés aux déchets	6
2.2. Déchets au niveau de l'extraction de l'uranium.....	7
2.3. Matières nucléaires et déchets au niveau de l'enrichissement isotopique de l'uranium	9
2.4. Déchets et matières nucléaires produits par les réacteurs.....	10
2.5. Options de gestion des combustibles usés	12
2.6. Déchets produits par le retraitement des combustibles usés.....	14
2.7. Recyclage du plutonium	15
2.8. Stockage géologique en profondeur des déchets B et C.....	16
2.9. La loi sur les déchets du 30 décembre 1991	18
3. Perspectives de production de déchets et de matières nucléaires, et politiques de gestion.....	19
3.1. Le cas de la France	19
3.2. La situation à l'étranger.....	22

Chapitre 2

Notions élémentaires sur les réacteurs nucléaires

par **Massimo SALVATORE**

1. Notions de base.....	25
1.1. Réactions avec les neutrons	25
1.2. Section efficace	26

1.3. Libre parcours moyen	27
1.4. Flux neutronique.....	27
1.5. Énergie dégagée dans le combustible.....	28
1.6. Facteur de multiplication	28
2. Principe des réacteurs.....	29
2.1. Réacteurs thermiques.....	30
2.2. Réacteurs à neutrons rapides.....	32
Bibliographie.....	35

Chapitre 3

Éléments de physique nucléaire pour réacteurs

par **Hervé NIFENECKER**

1. Introduction.....	37
2. Les unités usuelles.....	38
2.1. Unité d'énergie.....	38
2.2. Unité de longueur.....	38
2.3. Unité de surface.....	38
3. Le noyau.....	39
3.1. Énergie de liaison des neutrons.....	41
3.2. Valeurs numériques.....	43
4. La radioactivité.....	43
4.1. Radioactivité β	43
4.2. Radioactivité α	46
5. Interaction neutrons-noyaux.....	49
6. Morphologie des sections efficaces.....	51
6.1. Section efficace microscopique.....	51
6.2. Les états résonants.....	51
6.3. Comportement au seuil d'émission de neutrons.....	52
6.4. La région du continuum.....	54
7. Ralentissement des neutrons.....	54
8. Le processus de fission.....	55
8.1. La barrière de fission.....	55
8.2. Distribution des masses des fragments de fission.....	56
8.3. Énergie cinétique des fragments.....	57
8.4. Émission de neutrons par les fragments de fission.....	60
8.5. Compétition entre fission et capture.....	60
9. Données nucléaires pour réacteurs.....	62
10. Milieux multiplicateurs.....	62

10.1. Section efficace macroscopique	62
10.2. Sections efficaces importantes	63
10.3. Criticité et surrégénération.....	63
Bibliographie	65

SÉPARATION ET TRANSMUTATION

Chapitre 4

Retraitement et séparation des radionucléides à vie longue

par **Bernard BOULLIS**

1. Introduction.....	69
2. Les combustibles nucléaires usés.....	71
3. Le procédé PUREX de retraitement.....	73
3.1. Principes généraux.....	73
3.2. Revue des principales opérations élémentaires.....	75
3.3. « Bilan » du procédé.....	78
4. Séparations complémentaires	80
4.1. Objectifs poursuivis	80
4.2. Stratégie générale des recherches.....	84
4.3. Adaptation du procédé PUREX.....	85
4.4. Recherche de procédés complémentaires de séparation.....	87
5. Conclusion	90
Éléments de bibliographie.....	91

Chapitre 5

Transmutation : physique et stratégies

par **Massimo SALVATOIRES** et **Alain ZAETTA**

1. Les données du problème	93
1.1. Notions de radiotoxicité.....	93
1.2. Combustible irradié et radiotoxicité associée	94
1.3. Rôle de la transmutation dans le contexte d'utilisation du plutonium	98

2.	Physique de la transmutation par neutrons	99
2.1.	La consommation de neutrons.....	101
2.2.	Potentiel des systèmes hybrides	104
3.	Études d'incinération dans les réacteurs nucléaires de technologie actuelle.....	108
3.1.	Transmutation des actinides mineurs	108
4.	Application à un parc de réacteurs.....	112
4.1.	Résultats.....	113
4.2.	De l'influence du non recyclage du curium	115
5.	Les données nucléaires et les incertitudes.....	116
5.1.	La validation des données nucléaires	116
5.2.	Effet des incertitudes des données nucléaires sur les paramètres d'intérêt pour la transmutation.....	118
6.	Conclusions.....	120
	Bibliographie.....	121

Chapitre 6

Les systèmes hybrides de production d'énergie

par **Hervé NIFENECKER**

1.	Introduction.....	123
2.	Surrégénération et transmutation	125
2.1.	Surrégénération.....	125
2.2.	Transmutation et incinération	126
2.3.	Doctrine française officielle.....	127
2.4.	Alternatives	128
2.5.	Cycle thorium-uranium	129
3.	Principe des systèmes hybrides.....	129
3.1.	Accélérateurs et réaction de spallation	129
3.2.	Milieux multiplicateurs de neutrons	130
3.3.	Bilan neutronique	132
3.4.	Évolution du combustible	134
3.5.	Éléments de choix pour les systèmes hybrides	138
4.	Le projet de C.D. Bowman.....	140
5.	Le projet de C. Rubbia	142
5.1.	Éléments de sûreté.....	145
5.2.	Caractéristiques neutroniques	148
5.3.	Incinération des transuraniens.....	148
5.4.	Estimation des coûts	150
6.	Conclusion	152
	Bibliographie.....	152

*Chapitre 7***Le rôle potentiel du cycle du combustible
à base de thorium**par **Jean-Paul SCHAPIRA**

1. Introduction.....	155
2. Caractéristiques principales d'un cycle au thorium	156
2.1. Abondance du thorium.....	156
2.2. Propriétés neutroniques de l'uranium 233.....	157
2.3. Spectre des noyaux formés en réacteurs	159
3. Impact radiologique à long terme de la mise en œuvre du cycle au thorium.....	160
3.1. Radiotoxicité des résidus miniers.....	160
3.2. Radiotoxicité des combustibles irradiés	160
4. Impact radiologique à court terme lié à la mise en œuvre du cycle au thorium.....	164
5. Les aspects techniques liés à la prolifération	165
6. Conclusion	167

ASPECTS POLITIQUE ET TECHNIQUE DU STOCKAGE

*Chapitre 8***La gestion des déchets radioactifs**par **Maurice ALLÈGRE**

1. Information du public.....	171
2. Mission de l'ANDRA	172
3. Recours au stockage souterrain.....	173
4. Pérennité des formations géologiques.....	175
Annexe : rapport de l'ANDRA	176

*Chapitre 9***Conditionnement des déchets nucléaires**

par Denis ALEXANDRE

1. Que sont les déchets radioactifs ?	181
2. Objectifs d'un stockage de déchets radioactifs	184
3. Traitement des déchets	185
4. Conditionnement des déchets	185
4.1. Ciment	188
4.2. Bitume	190
4.3. Résines thermodurcissables	191
4.4. Verres	191
5. Caractérisation des déchets	194
6. Contrôle des colis	196
7. Études de comportement à long terme	196
8. Stockage des déchets	198
8.1. Des stockages de surface	198
8.2. D'éventuels stockages profonds	199
9. Conclusion	202

*Chapitre 10***Enfouissement des déchets nucléaires
en formation géologique**

par Ghislain de MARSILY

1. Introduction	203
2. Fonctions principales d'une barrière géologique	204
3. Formations susceptibles de recevoir des déchets	205
3.1. Le sel	206
3.2. L'argile	207
3.3. Le granite	207
3.4. Les roches volcaniques	208
3.5. Les déserts	208
3.6. Les glaciers	208
3.7. Les fonds sous-marins	209
3.8. Les Iles désertes	210
3.9. Les environnements géologiques	210
4. Structure interne et géodynamique de la Terre	210
4.1. La géodynamique interne	213
4.2. La géodynamique externe	216

4.3. Les roches de la croûte terrestre.....	217
4.4. Évolution des roches à la surface de la Terre	223
4.5. Écoulement des eaux souterraines.....	226
5. Bref aperçu de l'histoire géologique de la France	227
6. Sites géologiques français retenus pour y examiner la faisabilité éventuelle d'un stockage	232
7. Analyse de sûreté d'un stockage géologique.....	234
7.1. Aléas naturels	234
7.2. Aléas d'origine anthropique.....	236
7.3. Les aléas dus à l'imperfection des connaissances.....	237
7.4. Le concept multibarrière.....	238
7.5. Le risque.....	239
7.6. Les scénarios	241
8. La réversibilité du stockage.....	242
9. Conclusion	243
Bibliographie	245

NORMES DE RADIOPROTECTION ET EFFETS BIOLOGIQUES

Chapitre 11

Principes et normes de radioprotection

par **Henri MÉTIVIER**

1. Introduction.....	249
2. Origine des règles de la radioprotection.....	250
2.1. Radioactivité et exposition, quelques définitions.....	250
2.2. La Commission internationale de protection radiologique.....	251
3. Énoncés des principes	254
3.1. Nature des effets	254
3.2. Le cadre conceptuel de la protection radiologique	255
4. Définitions des quantités utilisées en protection	258
4.1. Dose absorbée.....	259
4.2. Dose équivalente	259
4.3. Dose efficace.....	260

4.4. Grandeurs dosimétriques complémentaires	262
4.5. Limites secondaires	264
5. Les nouvelles recommandations	265
5.1. Les nouvelles bases scientifiques	265
5.2. Les nouvelles normes.....	266
6. Conclusion	266
7. Grandeurs et unités utilisées en radioprotection.....	267
Bibliographie.....	269

Chapitre 12

Effets cancérigènes des faibles doses de rayonnements ionisants

par Maurice TUBIANA

1. Introduction.....	273
2. Position du problème : l'évolution du coefficient de risque cancérigène	274
2.1. Risque à fortes doses (supérieure à 500 mSv).....	274
2.2. Extrapolation vers les faibles doses (inférieure à 200 mSv).....	278
3. Le coefficient de risque de la CIPR et les données épidémiologiques	280
3.1. Étude du CIRC sur les travailleurs professionnels	280
3.2. Les survivants de Hiroshima et de Nagasaki	281
3.3. Autres irradiations	282
4. La relation dose-effet pour les radio-éléments émetteurs α (radium et thorium)	285
5. La fiabilité des prédictions fondée sur le modèle L-Q.....	286
6. Validité des postulats du modèle L-Q.....	288
7. Commentaires sur les nouvelles normes de radioprotection	290
Annexe : le risque des rayonnements ionisants mis en perspective	292
Bibliographie	294

Annexe

<i>Tableau périodique des éléments simples</i>	306
--	-----

Tableau périodique des éléments simples

1 H Hydrogène								
3 Li Lithium	4 Be Béryllium							
11 Na Sodium	12 Mg Magnésium							
19 K Potassium	20 Ca Calcium	21 Sc Scandium	22 Ti Titane	23 V Vanadium	24 Cr Chrome	25 Mn Manganèse	26 Fe Fer	27 Co Cobalt
37 Rb Rubidium	38 Sr Strontium	39 Y Yttrium	40 Zr Zirconium	41 Nb Nobium	42 Mo Molybdène	43 Tc Technétium	44 Ru Ruthénium	45 Rh Rhodium
55 Cs Césium	56 Ba Barium	57 La Lanthane	72 Hf Hafnium	73 Ta Tantale	74 W Tungstène	75 Re Rhénium	76 Os Osmium	77 Ir Iridium
87 Fr Francium	88 Ra Radium	89 Ac Actinium	104	105	106	107	108	109

58 Ce Cerium	59 Pr Praséodyme	60 Nd Néodyme	61 Pm Prométhium	62 Sm Samarium	63 Eu Europium
90 Th Thorium	91 Pa Protactinium	92 U Uranium	93 Np Neptunium	94 Pu Plutonium	95 Am Américium

								2 He Hélium
			5 B Bore	6 C Carbone	7 N Azote	8 O Oxygène	9 F Fluor	10 Ne Néon
			13 Al Aluminium	14 Si Silicium	15 P Phosphore	16 S Soufre	17 Cl Chlore	19 Ar Argon
28 Ni Nickel	29 Cu Cuivre	30 Zn Zinc	31 Ga Gallium	32 Ge Germanium	33 As Arsenic	34 Se Sélénium	35 Br Brome	36 Kr Krypton
46 Pd Palladium	47 Ag Argent	48 Cd Cadmium	49 In Indium	50 Sn Étain	51 Sb Antimoine	52 Te Tellure	53 I Iode	54 Xe Xénon
78 Pt Platine	79 Au Or	80 Hg Mercure	81 Tl Thallium	82 Pb Plomb	83 Bi Bismuth	84 Po Polonium	85 At Astate	86 Rn Radon
110	111	112						

64 Gd Gadolinium	65 Tb Terbium	66 Dy Dysprosium	67 Ho Holmium	68 Er Erbium	69 Tm Thulium	70 Yb Ytterbium	71 Lu Lutétium
96 Cm Curium	97 Bk Berkélium	98 Cf Californium	99 Es Einsteinium	100 Fm Fermium	101 Md Mendélévium	102 No Nobélium	103 Lr Lawrencium

Imprimé en France. - JOUVE, 18, rue Saint-Denis, 75001 PARIS
N° 246800P. - Dépôt légal : Mai 1997

