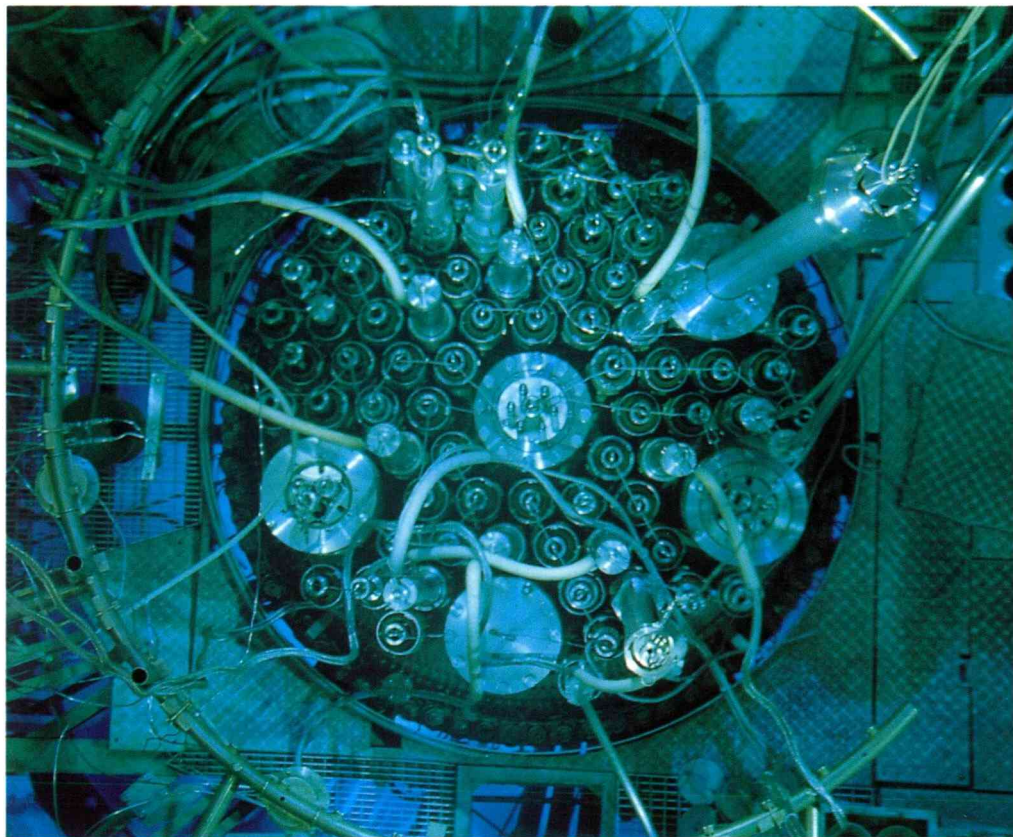




*Questions actuelles d'énergie nucléaire*  
*Volume 3, avril 1995*

CENTRE D'ÉTUDE DE L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE  
MOL BELGIQUE

# Projets CAPRA et SPIN



#### **Photo de couverture**

Les projets CAPRA et SPIN exigent le développement et la qualification de barreaux combustibles adaptés. Le réacteur d'essai de matériaux BR2 du CEN-SCK offre pour ce faire des possibilités d'irradiation très flexibles, déjà exploitées pour l'étude et la qualification de barreaux combustibles pour les réacteurs actuels.

*Questions actuelles d'énergie nucléaire, volume 3*

Centre d'Etude de l'Energie Nucléaire, CEN•SCK

## **Projets CAPRA et SPIN**

**Bernard NEERDAEL**

**Guy COLLARD**

**Charles DE RAEDT**

**Léon BAETSLÉ**

**Paul DEJONGHE**

**Jan MARIVOET**

**Résumé** i

**Samenvatting** vii

---

**Introduction** 1

**1 Les projets CAPRA et SPIN** 3

**2 Le projet CAPRA** 5

**3 Le projet SPIN** 9

**4 Conclusions et  
recommandations** 13

---

**Annexes**



# Résumé

---

**Avant-propos** La poursuite des programmes nucléaires est de plus en plus étroitement liée aux solutions retenues pour l'aval du cycle du combustible. En Belgique, l'option retenue à ce jour est de retraiter le combustible et d'enfouir les déchets de retraitement vitrifiés en formation géologique. Toutefois, depuis le débat parlementaire sur le MOX (1993), l'option d'évacuation directe (sans retraitement) du combustible irradié en formation géologique a été mise en avant pour des raisons économiques et politiques. Dans ce cadre, un stockage souterrain à moyen terme, mais de façon réversible, rallie de nombreux suffrages, puisqu'il laisse entrevoir la possibilité d'un retraitement différé.

Dans ce cadre général de l'aval du cycle combustible, plusieurs projets nouveaux ont été lancés de par le monde : le projet OMEGA au Japon et les projets CAPRA et SPIN en France ; ils ont tous comme objectif la réduction de la quantité d'actinides (en particulier la transmutation du plutonium) présents actuellement dans les déchets de retraitement et dans les combustibles usés.

En réponse à une lettre au CEN•SCK du Ministre fédéral des Affaires économiques, M. Wathelet, nous avons préparé un dossier technique détaillant les projets CAPRA et SPIN et proposant quelques recommandations quant à la participation de la Belgique, et particulièrement du CEN•SCK, aux programmes en cours. Les éléments principaux en sont résumés ici.

**Conclusions** L'intérêt que présentent ces projets pour la Belgique, et le CEN•SCK en particulier, justifie une participation active. Le CEN•SCK, en sa qualité de centre de recherche, peut contribuer de façon sensible au développement de nouveaux types de combustible et, de manière plus générale, aux aspects de physique nucléaire et aux technologies d'irradiation.

Le projet CAPRA, qui étudie l'incinération du plutonium, doit recevoir la priorité. Du point de vue radiologique, le plutonium est en effet le radioélément principal, en ce qui concerne tant sa radiotoxicité globale que la période nécessaire à sa décroissance radioactive.

Même s'il doit être considéré à l'échelle européenne ou internationale plutôt que belge, un réacteur de type CAPRA est une alternative intéressante pour la transmutation. La transmutation actuelle des actinides en réacteurs à eau

pressurisée conduit à une augmentation sensible de l'activité totale alpha et est limitée à un ou deux recyclages par la diminution des isotopes fissiles. La transmutation (incinération) en réacteurs rapides de type CAPRA, par contre, conduit à une diminution du potentiel radiologique de *l'ensemble* des actinides et peut être répétée autant de fois que nécessaire, pour atteindre un facteur de réduction prédéterminé.

Le projet SPIN, qui étudie la séparation des actinides mineurs, peut être suivi de manière plus passive. En effet, les actinides mineurs (américium, neptunium, curium) représentent la source principale de radiotoxicité dans la matrice de verre provenant du retraitement et la Belgique ne dispose plus d'installations de retraitement. Toutefois, dans le cas où le processus actuel de retraitement peut être complété par ces opérations de séparation, le verre hautement actif issu de ces opérations ne contiendrait plus que des produits de fission. Cette caractéristique s'avère importante à court et moyen terme et influencerait toute prise de décision en matière d'évacuation géologique.

Les avantages potentiels qui découlent de ces projets sont essentiellement

- la diminution de l'héritage nucléaire et du stock de plutonium,
- la valorisation des acquis relatifs aux réacteurs rapides,
- l'utilisation optimale des ressources énergétiques.

Les inconvénients qui y sont liés concernent plus particulièrement

- les investissements importants requis,
- l'augmentation de l'impact radiologique à court terme.

Il est évident que les études en cours devront notamment mettre en balance l'avantage à long terme par rapport aux désavantages attendus à court terme. Restent aussi à préciser les échelles de temps (estimées à plus d'un siècle) que réclame la mise en application de tels programmes.

## 1 Point de départ et projets

La présence de plutonium et d'autres actinides à longue demi-vie dans les combustibles usés et les déchets de retraitement de ces combustibles usés est un problème majeur posé par l'aval du cycle combustible — un problème auquel les réacteurs actuels à eau légère utilisant le combustible MOX n'apportent malheureusement pas de solution. D'une part, y brûler le plutonium ne permet que de postposer la décision finale, car la quantité de plutonium produit compense celle de plutonium détruit. D'autre part, la transmutation dans de tels réacteurs n'est pas adéquate pour les actinides mineurs (l'américium, le neptunium et le curium). Plusieurs projets tentent de réduire la concentration de plutonium et des actinides mineurs par d'autres moyens.

- Le projet OMEGA (*Options Making Extra Gain from Actinides*) lancé en 1989 au Japon a constitué de par sa taille et ses objectifs particulièrement ambitieux la force motrice de l'option de Séparation et Incinération (P&T, pour *Partitioning and Transmutation*) des déchets dans le monde.
- Le projet SPIN (Séparation et INcinération) lancé en 1990 en France s'intéresse plus particulièrement aux techniques de séparation *chimique* des *actinides*, suivie de leur destruction par irradiation.
- Le projet CAPRA (Consommation Accrue de Plutonium dans les réacteurs RAPides) lancé en 1993 en France s'intéresse surtout au problème du *plutonium* excédentaire produit par les usines de retraitement. Ce plutonium va, dans une première phase, être soumis à un ou deux recyclages liés à son utilisation en tant que combustible MOX dans les réacteurs à eau légère. Cette façon de faire n'est pas une solution satisfaisante pour éliminer à long terme les stocks de plutonium. Le combustible MOX résiduel peut néanmoins, après retraitement approprié, être reconverti en un nouveau combustible MOX ou en un combustible purement plutonifère qui peut être « brûlé » dans des réacteurs de type CAPRA. L'utilisation de ce type de réacteur permet encore l'adjonction au combustible plutonifère d'actinides mineurs (neptunium et américium), également fissiles et donc producteurs d'énergie lors de leur transmutation dans un spectre de neutrons rapides. Ce projet vise d'abord à convertir le réacteur français *Superphénix* en un brûleur industriel de plutonium, comme démonstration du concept CAPRA.

## 2 Avancement des travaux

**SPIN** Le projet SPIN examine les problèmes chimiques associés à la séparation des actinides et de certains produits de fission à longue demi-vie. Des méthodes de laboratoire ont été mises au point, mais la faisabilité industrielle de ces techniques n'est pas encore établie.

**CAPRA** Les aspects techniques du projet CAPRA ont trait à la conception des cœurs de réacteur et aux types de combustible à utiliser (nature, configuration, matrice, ...). A ce jour, la faisabilité conceptuelle d'un certain nombre de configurations de cœur est établie.

Plusieurs points n'ont pas encore été abordés et mériteraient des développements futurs. Citons : le coût de production d'électricité d'un réacteur de type CAPRA, le passif nucléaire supplémentaire ainsi créé, les déchets secondaires produits et les doses supplémentaires auxquelles le personnel serait exposé au cours des opérations de recyclage des combustibles plutonifères.

L'examen d'un recyclage répété du combustible CAPRA montre la nécessité d'une évacuation géologique, non seulement pour les produits de fission, mais également pour la charge résiduelle en actinides. Le processus d'incinération peut durer un à deux siècles avant d'atteindre un facteur de réduction significatif (de 7 à 10).



### 3 Bénéfices pour la Belgique

Les bénéfices potentiels des projets SPIN et CAPRA pour la Belgique dépendent de l'échelle de temps considérée. Une analyse comparative des trois options — « évacuation directe », « retraitement conventionnel » et « retraitement plus P&T » — indique, à long terme, un avantage très marqué (facteur 10 à 100) pour la troisième option (retraitement plus P&T) au niveau des quantités d'actinides résiduels à enfouir ; l'avantage radiologique à court terme (200 à 300 ans) reste par contre à démontrer.

**SPIN** La solution des problèmes traités au sein du projet SPIN pour les actinides mineurs prend plus d'importance lorsqu'on envisage l'incinération du plutonium en réacteurs rapides plutôt que l'utilisation de combustible MOX en réacteurs à eau pressurisée, ces derniers réacteurs transformant le plutonium de façon significative en actinides mineurs (américium, curium).

**CAPRA** L'augmentation inévitable du coût de production d'électricité associée à l'exploitation de réacteurs de type CAPRA est à mettre en balance avec une stabilisation de la production de plutonium (objectif à court terme) et une incinération de la production totale d'actinides avec diminution correspondante de la radiotoxicité résiduelle des déchets à enfouir (objectif à long terme).

Un réacteur à neutrons rapides de type CAPRA permet d'utiliser de façon très flexible du plutonium de qualité variable et de l'uranium appauvri, et peut en outre transmuter le neptunium et l'américium. Ces actinides mineurs sont introduits dans le cœur, soit de façon homogène en enrichissant le combustible de quelques pourcents en ces actinides, soit de façon hétérogène sous forme de cibles à haute concentration d'actinides (par exemple 45 % de neptunium ou d'américium) à des endroits spécifiques du cœur.

Dans le contexte belge, recycler le plutonium et l'uranium permettrait d'économiser quelque 25 % en uranium naturel. L'utilisation de réacteurs de type CAPRA avec une teneur en plutonium de l'ordre de 45 % est un objectif réaliste, qui pourrait conduire à la consommation de 70 à 80 kg de plutonium par TW·h, soit environ 650 kg de plutonium par GWe·an.

## 4 Participations : rôles de la Belgique et du CEN•SCK

Le projet CAPRA fait aujourd'hui l'objet de multiples collaborations internationales, avec notamment la participation de PNC (Japon), AEA (Royaume-Uni), KfK (Allemagne), Obninsk (Russie) et PSI (Suisse). Récemment le CEN•SCK a donné son accord de principe à une participation limitée au projet.

Les études de performance pour l'évacuation géologique de *déchets vitrifiés* hautement actifs dans l'argile de Boom à Mol ont montré que la séparation des actinides mineurs (neptunium, américium, curium) ne devrait pas être considérée, dans le cas d'un scénario d'évolution naturelle, comme une exigence absolue d'un point de vue radiologique visant à garantir la sûreté à long terme. Dans ces conditions, une séparation des actinides mineurs des déchets liquides hautement actifs telle qu'étudiée dans le cadre du projet SPIN n'apporte qu'une amélioration minimale de l'impact sur l'environnement. En fait, seul le neptunium, caractérisé par une très longue demi-vie, pourrait traverser la barrière géologique et conduire à un accroissement faible de la dose pour la population après plusieurs millions d'années.

Pour l'évacuation du *plutonium* et du *combustible non retraité*, par contre, des études approfondies doivent encore être réalisées. La présence éventuelle de 30 à 40 tonnes de plutonium, sous forme de combustible UO<sub>2</sub> non retraité, de combustible MOX non retraité, ou encore de plutonium excédentaire, représente un danger radiologique potentiel. Il est urgent que de telles études de performance soient développées sur le modèle des études PAGIS/PACOMA, afin de définir le facteur de réduction minimum à atteindre pour diminuer de manière significative le risque résiduel.

Quel que soit le résultat de ces études, la Belgique a cependant toutes les raisons de participer activement au projet CAPRA et de suivre plus passivement le projet SPIN par le biais des organisations internationales qui y jouent un rôle de coordination et d'information.

Un impact favorable est attendu à court terme pour trois activités importantes de l'industrie nucléaire belge :

- le développement de l'industrie de fabrication du combustible, en particulier la production de MOX et de combustibles plutonifères (Belgo-nucléaire, Franco-Belge de Fabrication de Combustibles);
- la présence du CEN•SCK dans un nouveau secteur d'activité nucléaire, permettant de mieux défendre le rôle de son réacteur d'essai BR2 parmi les futures installations d'irradiation;
- l'aval du cycle du combustible (retraitement, évacuation), où Synatom et ONDRAF/NIRAS ont la mission de définir la stratégie belge, tenant compte de considérations d'ordres politique, économique et écologique.

Dans chacun de ces trois domaines, les projets CAPRA et SPIN représentent des postes d'observation avancés d'où l'on doit pouvoir développer une meilleure vision concernant les options stratégiques à prendre en matière d'énergie nucléaire et de cycle du combustible pour le XXI<sup>e</sup> siècle.



# Samenvatting

---

**Voorwoord** De toekomstige uitvoering van de nucleaire programma's is meer en meer verbonden met de oplossingen weerhouden voor het einde van de splijtstofcyclus. In België werd in dit kader tot nog toe gekozen voor opwerking van de gebruikte splijtstof en berging van het verglaasde afval in een geologische formatie. Sinds het parlementaire MOX-debat (1993) is de directe berging van de gebruikte splijtstof in een geologische formatie om politieke en economische redenen naar voor geschoven. De ondergrondse opslag op middellange termijn, op een reversibele manier, laat daarenboven nog verschillende wegen open vermits ze nog een latere opwerking mogelijk maakt.

In het algemene kader van het einde van de splijtstofcyclus zijn wereldwijd verschillende projecten opgestart: het OMEGA project in Japan en de CAPRA en SPIN projecten in Frankrijk. Al deze projecten hebben de vermindering van de huidige hoeveelheid actiniden (voornamelijk de transmutatie van plutonium) aanwezig in het opwerkingsafval en de gebruikte splijtstof tot doel.

Als antwoord op een schrijven van de federale minister van Economische Zaken, M. Wathelet, hebben we een technisch document samengesteld dat de CAPRA en SPIN projecten beschrijft en enkele aanbevelingen geeft wat betreft de deelname van België, en het SCK•CEN in het bijzonder, aan de lopende programma's. De belangrijkste elementen ervan worden hier samengevat.

**Besluiten** België, en het SCK•CEN in het bijzonder, moeten zich actief interesseren voor deze projecten. Het SCK•CEN kan als onderzoekscentrum een aanzienlijke bijdrage leveren in het kader van de ontwikkeling van nieuwe splijtstoftypes en meer in het algemeen in de kernfysische aspecten en de bestralingstechnologie.

Het CAPRA project, dat de incineratie van plutonium bestudeert, moet prioriteit krijgen. Vanuit radiologisch standpunt is plutonium het voornaamste radioelement zowel wat betreft de globale radiotoxiciteit als wat betreft de periode waarover het radioactieve verval verloopt.

Zelfs wanneer men dit eerder moet bekijken op Europese of internationale schaal dan op Belgische, is een reactor van het CAPRA type een interessant alternatief voor de transmutatie. Transmutatie van actiniden in PWR's leidt tot een aanzienlijke vermeerdering van de totale alfa activiteit en is beperkt

tot één of twee recyclagen door de vermindering van de splijtbare isotopen. Transmutatie (incineratie) in snelle reactoren (type CAPRA) leidt tot een vermindering van het radiologische potentieel van *alle* actiniden en kan zo dikwijls herhaald worden als nodig is om een voorafbepaalde reductiefactor te bereiken.

Het SPIN project, dat de afscheiding van de mineure actiniden bestudeert, mag op een meer passieve manier opgevolgd worden. Immers, de mineure actiniden (americium, neptunium, curium) vertegenwoordigen de voornaamste bron van radiotoxiciteit in het hoogactieve afvalglas van het opwerkingsproces terwijl België niet meer beschikt over opwerkingsinstallaties. Indien het huidige opwerkingsproces aangevuld wordt met afscheidingsmodules voor deze radioelementen zal het hoogactieve afvalglas slechts splijtingsprodukten bevatten, wat op korte en middellange termijn belangrijk kan zijn voor de besluitname inzake geologische berging.

De potentiële voordelen die kunnen voortvloeien uit deze projecten zijn vooral

- de vermindering van de nucleaire erfenis en de plutonium voorraden;
- de valorisatie van de ervaring met betrekking tot de snelle reactoren;
- het optimale gebruik van energiebronnen.

De nadelen verbonden aan deze projecten zijn meer bepaald

- de belangrijke investeringen die vereist zijn;
- de verhoging van de radiologische impact op korte termijn.

Het is evident dat de aan de gang zijnde studies deze aspecten, die op korte termijn eerder nadelig zijn, zullen moeten afwegen tegen het voordeel op lange termijn. De benodigde tijd om zulke programma's ten uitvoer te brengen (een 100-tal jaar) moet nog worden gepreciseerd.

## 1 Uitgangspunt en doelstelling

De aanwezigheid van plutonium en andere actiniden, met een lange halveringstijd, in ontladen splijtstof en in de door opwerking ervan ontstane afval is een belangrijk probleem dat zich stelt naar het einde van de splijtstofcyclus — een probleem waarvoor de huidige reactoren die MOX-brandstof gebruiken geen oplossing verschaffen. Enerzijds zal het opbranden van plutonium enkel toelaten de finale beslissing uit te stellen gezien de hoeveelheid gevormd plutonium het verbrande plutonium compenseert. Anderzijds is de transmutatie van mineure actiniden (americium, neptunium en curium) niet doeltreffend in lichtwaterreactoren. Meerdere projecten trachten de concentratie van plutonium en mineure actiniden te verminderen door andere middelen.

- Het OMEGA project (*Options Making Extra Gain from Actinides*), opgestart in 1989 in Japan, fungeert door zijn omvang en zijn bijzonder ambitieuze doelstellingen als drijfveer voor de optie van scheiding en verbranding (P&T, voor *Partitioning and Transmutation*) van afval in de wereld.
- Het SPIN project (*Séparation et Incinération*), opgestart in Frankrijk in 1990, behandelt in het bijzonder *scheikundige* scheidingstechnieken voor de *actiniden*, gevolgd door hun vernietiging door bestraling.
- Het CAPRA project (*Consommation Accrue de Plutonium dans les réacteurs RAPIDES*) is in Frankrijk opgestart in 1993, en behandelt voornamelijk het probleem van het *plutonium* overschot afkomstig van de opwerkingsinstallaties. In een eerste fase zal dit plutonium één of twee recyclages ondergaan als MOX-splijtstof in lichtwaterreactoren. Het opbranden van plutonium in LWR's is echter geen afdoende oplossing om de plutonium-stocks te elimineren. De residuele MOX-splijtstof kan na opwerking en refabricage echter wel worden omgezet in een nieuw type MOX-splijtstof of een zuiver plutonium splijtstof die kan 'verbrand' worden in reactoren van het CAPRA type. Daarenboven kunnen in CAPRA reactoren ook mineure actiniden zoals neptunium en americium worden ingebracht daar deze radioelementen ook splijtbaar zijn en dus energie produceren tijdens de transmutatie in een snelle neutronen spectrum. In eerste instantie is het de bedoeling *Superphénix* om te vormen tot een industriële plutonium verbrander, als demonstratie van het CAPRA concept.

## 2 Vordering der werken

**SPIN** Het SPIN project onderzoekt de scheikundige problemen die aan bod komen bij de afzondering van actiniden en splijtingsprodukten met een lange halveringstijd. Laboratoriumtechnieken zijn op punt gesteld, doch de industriële haalbaarheid van deze technieken is nog niet aangetoond.

**CAPRA** De technische aspecten van de CAPRA studie hebben geleid tot één of meerdere reactorhart-concepten met nieuwe splijtstoftypes (aard, configuratie, matrix, ...). Momenteel is de conceptuele haalbaarheid van een aantal configuraties voor het reactorlichaam reeds aangetoond.

Meerdere aspecten zijn nog niet bekeken en zouden zeker nader ontwikkelingswerk verdienen, met name: de produktiekost voor elektriciteit in een reactor van het CAPRA type, het bijkomende nucleaire passief dat wordt voortgebracht, de productie van secundair afval en de dosis waaraan het personeel bijkomend zou worden blootgesteld tijdens de recyclage van plutonium-houdende splijtstof.

Het onderzoek inzake multirecyclage van CAPRA splijtstof (plutonium met mineure actiniden) toont aan dat geologische berging noodzakelijk blijft, niet enkel voor de splijtingsprodukten, maar ook voor de overblijvende actiniden. Het opbrand-proces kan één à twee eeuwen duren alvorens een betekenisvolle vermindering (met een factor 7 à 10) is bereikt.

### 3 Voordelen voor België

De potentiële voordelen van de projecten SPIN en CAPRA voor België hangen af van de beschouwde tijdsschaal. Een vergelijkende studie van de drie opties — 'directe berging', 'klassieke opwerking' en 'opwerking met P&T' — toont het potentiële voordeel (factor 10 tot 100) voor de derde optie (opwerking met P&T) wat betreft de hoeveelheid actiniden die moet geborgen worden. Het radiologische voordeel op korte termijn (200 à 300 jaar) moet nog worden aangetoond.

**SPIN** De oplossing van de problemen behandeld binnen het SPIN project voor mineure actiniden krijgt meer belang in het vooruitzicht van de verbranding van plutonium in snelle reactoren dan dit het geval is bij gebruik van MOX-splijstof in LWR's omdat deze reactoren het plutonium in aanzienlijke mate omzetten in mineure actiniden (americium, curium).

**CAPRA** De uitbating van reactoren van het CAPRA type zal onvermijdelijk een verhoging van de produktiekost voor elektriciteit als gevolg hebben. Dit moet worden afgewogen tegen een stabilisatie van de plutonium-produktie (doelstelling op korte termijn) of een betekenisvolle vermindering van de totale actiniden-produktie met een overeenkomstige vermindering van de overblijvende radiotoxiciteit van het te bergen afval (doelstelling op lange termijn).

Een snelle neutronenreactor van het CAPRA type is zeer flexibel met betrekking tot het gebruik van plutonium van wisselende kwaliteit en van verarmd uranium. Zulk een reactor laat ook de transmutatie van neptunium en americium toe. Deze actiniden worden in het reactorhart ingebracht, ofwel op een homogene manier, door de splijstof met enkele procenten aan te rijken met deze actiniden, ofwel op een heterogene manier, door splijstofnaalden met een hoge concentratie aan actiniden (bv. 45% neptunium of americium) op specifieke plaatsen in het reactorhart in te brengen.

In de Belgische context zou het hergebruik van het plutonium en uranium een besparing kunnen opleveren van circa 25% van het natuurlijke uranium. Het gebruik van CAPRA reactoren met een plutonium gehalte van 45% is een realistische doelstelling en zou leiden tot een verbruik van 70 à 80 kg plutonium per TW·uur, of ongeveer 650 kg plutonium per GWe·jaar.

## 4 Participaties: rol van België en het SCK•CEN

In het kader van het CAPRA project zijn momenteel verschillende internationale samenwerkingsakkoorden lopende, meer bepaald met PNC (Japan), AEA (Verenigd Koninkrijk), KfK (Duitsland), Obninsk (Rusland) en PSI (Zwitserland). Onlangs heeft het SCK•CEN een principiële goedkeuring gegeven omtrent een beperkte deelname aan dit project.

Performantiestudies inzake geologische berging in de Boomse kleilaag te Mol van hoogactief *afvalglas* hebben aangetoond dat de afscheiding van mineure actiniden (neptunium, americium, curium) geen absolute noodzaak is om de radiologische veiligheid tijdens het verloop van een natuurlijk-evolutie scenario op lange termijn te waarborgen. Een afscheiding van de mineure actiniden uit hoogactief vloeibaar afval zoals bestudeerd in het SPIN programma geeft slechts aanleiding tot een geringe verbetering van de potentiële radiologische impact op de omgeving. Immers alleen neptunium met zijn zeer lange halveringstijd, kan doorheen de geologische barriere dringen en na miljoenen jaren een kleine supplementaire dosis voor de bevolking teweegbrengen.

Voor de berging van *plutonium* en *niet opgewerkte splijtstof* werden nog geen grondige studies uitgevoerd. De potentiële aanwezigheid van 30 tot 40 ton plutonium, hetzij onder vorm van onopgewerkte UO<sub>2</sub>-splijtstof, hetzij als onopgewerkte MOX-splijtstof, hetzij als overtollig afgescheiden plutonium, vertegenwoordigt echter een potentieel radiologisch gevaar. Het is dringend nodig dat een performantie studie voor de berging van onopgewerkte splijtstof in klei aangevat wordt om na te gaan welke reductie factor moet gehaald worden om een betekenisvolle vermindering van het residuële risico te bereiken. Deze performantiestudie moet op hetzelfde niveau liggen als de PAGIS/PACOMA studies.

Welke de uitkomst van de performantiestudies ook moge wezen, België heeft er alle belang bij actief deel te nemen aan het CAPRA project en passief het SPIN project op te volgen langs de internationale organisaties die hierin een coördinerende en informatieve rol spelen.

De impact op korte termijn zal gunstig zijn voor drie belangrijke activiteiten van de Belgische nucleaire gemeenschap:

- de ontwikkeling van de splijtstofindustrie, voornamelijk de productie van MOX en plutonium-houdende splijtstoftypes (Belgonucléaire, Franco-Belge de Fabrication de Combustibles);
- de aanwezigheid van het SCK•CEN in een nieuwe nucleaire activiteit waardoor de rol van BR2 in een toekomstige pool van bestralingsfaciliteiten beter zal kunnen verdedigd worden;
- het sluitstuk van de splijtstofcyclus (opwerking, berging) waarin Synatom en NIRAS/ONDRAF de opdracht hebben de Belgische strategie uit te stippelen rekening houdend met economische, politieke en ecologische overwegingen.



In elk van deze drie domeinen zijn CAPRA en SPIN vooruitgeschoven waarnemingsposten vanwaar een betere visie kan worden ontwikkeld op de te nemen strategische opties inzake splijtstofcyclus en kernergie tijdens de 21ste eeuw.



# Matières

---

## Résumé i

- 1 Point de départ et projets iii
- 2 Avancement des travaux iv
- 3 Bénéfices pour la Belgique v
- 4 Participations : rôles de la Belgique et du CEN•SCK vi

## Samenvatting vii

- 1 Uitgangspunt en doelstelling ix
- 2 Vordering der werken x
- 3 Voordelen voor België xi
- 4 Participaties : rol van België en het SCK•CEN xii

## Matières xv

## Introduction 1

### Chapitre 1 Les projets CAPRA et SPIN 3

### Chapitre 2 Le projet CAPRA 5

- 2.1 Réduction de l'inventaire de plutonium par recyclage dans les REP et RNR 5
- 2.2 Développement des réacteurs du type CAPRA 6

### Chapitre 3 Le projet SPIN 9

- 3.1 Historique 9
- 3.2 Objectifs techniques du projet SPIN 10
- 3.3 Impact du programme SPIN sur la gestion des déchets belges 11
- 3.4 Synthèse de l'impact d'un programme de transmutation (CAPRA + SPIN) sur l'inventaire des radionucléides critiques 12

### Chapitre 4 Conclusions et recommandations 13

### Annexe A Comparaison entre trois options 15

### Annexe B Evolution de l'inventaire de matières fissiles 17

<b>Annexe C</b>	<b>Impact radiologique à long terme</b>	<b>21</b>
	C.1 Déchets de retraitement	21
	C.2 Evacuation directe de combustible irradié	22
	C.3 Déchets de retraitement avec P&T	23
<b>Annexe D</b>	<b>Consommation de plutonium dans les réacteurs CAPRA</b>	<b>25</b>
<b>Annexe E</b>	<b>Sections efficaces</b>	<b>27</b>
<b>Annexe F</b>	<b>Multirecyclage dans les réacteurs CAPRA</b>	<b>29</b>
<b>Annexe G</b>	<b>Design du cœur des réacteurs CAPRA</b>	<b>33</b>
<b>Annexe H</b>	<b>Références</b>	<b>35</b>
<b>Annexe I</b>	<b>Acronymes</b>	<b>37</b>



# Introduction

---

L'aval du cycle du combustible est aujourd'hui devenu une préoccupation majeure pour la poursuite des programmes nucléaires. Les options de l'évacuation directe en dépôt souterrain et du retraitement avec récupération du plutonium sont représentées de façon équivalente en importance à l'échelle mondiale. Plusieurs projets nouveaux ayant pour objectif la diminution des actinides produits dans les réacteurs de puissance ont été lancés de par le monde ces cinq dernières années.

Dans le cadre d'une demande d'information adressée au CEN•SCK par le Ministre fédéral des Affaires économiques et relative à différents aspects de l'énergie nucléaire, le présent document a pour objet les projets CAPRA et SPIN développés par le CEA. Le lien entre ces deux projets ainsi que le contexte général dans lequel ils sont développés est détaillé dans le chapitre suivant. Chaque projet est ensuite décrit (chapitres 2 et 3). Cette analyse aboutit alors à quelques conclusions et recommandations (chapitre 4). Compte tenu de l'avancement des travaux, l'accent est mis dans ce rapport davantage sur le projet CAPRA.



## CHAPITRE 1

# Les projets CAPRA et SPIN

---

**D**ans les années septante, un effort majeur a été entrepris en Europe (CCE) et aux Etats-Unis pour définir une stratégie de remplacement de l'évacuation géologique par une série d'opérations dites de Partition et de Transmutation (P&T) en vue d'éliminer la radiotoxicité résiduelle des déchets de haute activité. Par transmutation, on entend la transformation d'actinides et de produits de fission de longue demi-vie ( $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ) en noyaux stables, soit directement, soit par l'intermédiaire d'un noyau à vie courte.

Au début des années quatre-vingt, les autorités françaises ont publié le rapport de la commission Castaing, qui préconisait la séparation et l'incinération des actinides se trouvant dans les résidus de très haute activité provenant du retraitement comme méthode alternative au stockage géologique. En 1991, le parlement français votait la loi Bataille, qui imposait une recherche parallèle entre d'une part le stockage géologique et d'autre part la Séparation et l'INcinération des actinides (SPIN).

En 1993, le CEA lançait le projet CAPRA (Consommation Accrue en Plutonium dans des réacteurs RAPides) en vue de diminuer le stock de plutonium séparé et produit par l'usine de retraitement de La Hague plus rapidement que par l'utilisation de MOX dans des réacteurs de puissance.

La fin de la guerre froide a comme conséquence qu'une partie de l'arsenal militaire nucléaire sera démantelée et que des quantités d'environ 100 tonnes de plutonium militaire seront probablement mises à disposition pour la production d'énergie électrique.

Ces différents éléments ont conduit à mettre davantage l'accent sur le plutonium que sur les actinides mineurs, bien que tous deux soient indissociablement liés par leur parenté radiochimique.

Le programme CAPRA et le programme SPIN sont donc deux volets complémentaires d'une même problématique, à savoir la diminution de l'héritage nucléaire des actinides produits lors de la production d'énergie électrique dans les réacteurs de puissance. Ils sont d'une manière ou d'une autre liés à l'évacuation géologique, qui constitue l'ultime étape du cycle du combustible.

Le retraitement conventionnel récupère 99,7 % de plutonium et d'uranium des combustibles irradiés. Les produits de fission et les actinides mineurs

(neptunium, amerícium, curium) se trouvent dans les déchets de vitrification. Le programme SPIN envisage le développement de méthodes chimiques pour la séparation des actinides mineurs. Un retraitement « avancé » produirait ainsi des déchets de haute activité, essentiellement des produits de fission exempts d'actinides. Dans ce cas, seuls quelques produits de fission à très longue demi-vie et de moindre radiotoxicité constitueraient à très long terme la source radiotoxique de l'évacuation géologique.

L'avantage de l'option « retraitement + P&T » est illustré en annexe A en termes de quantités d'actinides résiduels à enfouir, par comparaison aux deux autres possibilités (dépôt direct et retraitement).

L'évolution globale de l'inventaire des matières fissiles dans le contexte belge est donnée en annexe B ; les conséquences des différents scénarios relatifs respectivement au retraitement du plutonium, à l'utilisation de MOX et au recyclage du MOX y sont analysées de façon quantitative.

L'utilisation du plutonium récupéré dans le combustible MOX donne lieu à des éléments épuisés, qui constituent une source majeure d'actinides et qui contiennent environ 40 kg de plutonium et 4 kg d'actinides mineurs par tonne de combustible irradié. Le retraitement de ces éléments épuisés n'est pas économiquement envisageable dans un contexte de recyclage dans les réacteurs de puissance, à cause de la dégradation de la qualité du plutonium résiduel. Si on arrête le développement nucléaire à ce stade, la majeure partie de ce plutonium et les actinides mineurs qui l'accompagnent finiront par être enfouis dans un dépôt souterrain.

L'impact radiologique à long terme est discuté en annexe C pour les déchets vitrifiés de très haute activité, le combustible usé et les déchets iodés. Ces différentes études de performance ont montré que l'évacuation géologique en formation argileuse est une solution acceptable, sauf en cas d'intrusion humaine et pour autant que certaines valeurs de paramètres et/ou hypothèses de travail soient confirmées par des données de terrain (pour le combustible non retraité notamment).

Le projet CAPRA apparaît comme une solution élégante, visant à diminuer l'inventaire en plutonium, neptunium et amerícium. La question sera dès lors de quantifier l'importance du gain à réaliser pour influencer de façon notable la production des déchets et la sûreté à long terme.

Le projet SPIN visant à éliminer l'ensemble des éléments radiotoxiques de longue demi-vie (actinides et produits de fission) ne semble pas très convaincant dans son optique initiale. Par contre, le développement de méthodes de partition (amerícium, neptunium, technétium), qui est actuellement l'essentiel du travail accompli dans SPIN, peut contribuer au développement d'une meilleure stratégie de conditionnement et d'enfouissement, au cas où la transmutation s'avérerait trop onéreuse ou trop longue à réaliser.

## CHAPITRE 2

# Le projet CAPRA

---

**L**e projet CAPRA a été mis sur pied par le CEA pour trouver une réponse adéquate à la formation de plutonium excédentaire résultant du traitement des combustibles  $\text{UO}_2$  et pour réduire l'inventaire en plutonium et autres actinides mineurs (américium, neptunium) présents dans des combustibles MOX irradiés dans des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP).

Les autorités françaises cherchent en outre à trouver une nouvelle vocation pour le réacteur Superphénix. Ce prototype industriel de Réacteur à Neutrons Rapides (RNR) a été conçu pour produire plus de plutonium qu'il n'en consomme. Il faudra donc revoir entièrement la conception du combustible lui-même et du cœur dans son ensemble, c'est-à-dire diminuer sensiblement la concentration d'uranium (générateur de plutonium) et le remplacer par une matrice transparente pour les neutrons et compatible métallurgiquement avec l'oxyde de plutonium. Un nouveau type de réacteur (appelé réacteur de type CAPRA) devrait donc être conçu afin de permettre l'incinération massive de plutonium et des actinides mineurs.

### 2.1 Réduction de l'inventaire de plutonium par recyclage dans les REP et RNR

Lors de la fission thermique de  $^{235}\text{U}$  dans des REP, il y a également formation de plutonium par capture neutronique de  $^{238}\text{U}$ . Au fur et à mesure que le taux de combustion augmente, il se forme toute une gamme d'isotopes du plutonium couvrant les masses de 236 à 242. Seuls les isotopes 239 et 241 sont fissiles. Les isotopes à nombre de masse paire (238, 240, 242) sont des absorbeurs de neutrons et décroissent la réactivité du réacteur.

Lorsque le plutonium récupéré lors du retraitement est recyclé sous forme de combustible MOX dans les REP, il y correspond principalement une élimination des isotopes fissiles et une accumulation graduelle d'isotopes de masse paire, dont plus particulièrement le  $^{242}\text{Pu}$ . C'est à cause de ce phénomène qu'il n'est pas possible de recycler plusieurs fois le plutonium issu du retraitement dans des REP sans ajouter du plutonium frais à haute teneur en  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ .

Dans des RNR, tous les isotopes d'actinides sont fissiles. Les sections efficaces sont plus faibles que dans un REP, mais le flux neutronique est beaucoup plus élevé. Un RNR « conventionnel » contient du combustible mixte ( $\text{UPuO}_2$ ) enrichi en plutonium à raison de 15 à 25 % et produit plus de plutonium qu'il n'en consomme à cause des « couvertures » d'uranium qui entourent le cœur. Au fur et à mesure que la concentration en plutonium dans le combustible MOX augmente, la consommation de plutonium devient plus importante, au détriment de la formation de plutonium à partir d'uranium. Dans le cas extrême d'un combustible  $\text{PuO}_2$  pur, la consommation de plutonium pourrait atteindre théoriquement  $100 \text{ kg} \cdot \text{TW}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$  ou  $870 \text{ kg} \cdot \text{GWe}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$  (annexes D et E).

Les études effectuées par le projet CAPRA ont démontré que des concentrations en plutonium de 30 à 45 % sont réalisables et que, dans ces cas, la consommation en plutonium varie entre  $50$  et  $70 \text{ kg} \cdot \text{TW}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$  ( $350$  à  $500 \text{ kg} \cdot \text{GWe}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ ). Des calculs de confirmation ont été faits au CEN·SCK à l'aide des codes de calcul adéquats (ORIGEN 2). Ils ont en outre démontré que la distribution isotopique initiale reste à peu de choses près constante, ce qui est une indication de la possibilité de recyclage multiple dans les RNR (annexe F).

En irradiant le combustible hautement enrichi en plutonium (et contenant un certain pourcentage d'actinides mineurs), il est possible d'envisager une réduction significative de l'inventaire du plutonium (p. ex., un facteur 7 à 10), à condition que les opérations de retraitement permettent de recycler les matières fissiles.

En irradiant le combustible plutonifère à haut taux de combustion (soit de l'ordre de 25 %) — ce qui veut dire que 25 % des noyaux fissiles présents dans le combustible ont été fissionnés après un séjour de quelques années dans le RNR — le combustible déchargé dissipe une chaleur résiduelle très importante due aux produits de fission. Avant de pouvoir entamer le retraitement chimique, il faut attendre plusieurs années (près de 10 ans). Le recyclage est un procédé de très longue durée, dû au temps de séjour dans le réacteur suivi du temps de « refroidissement » et enfin du temps nécessaire au retraitement et à la refabrication de combustible.

Il faut, toujours pour un taux de combustion de 25 %, considérer une période de 15 à 18 ans par cycle; 120 à 140 ans sont alors nécessaires pour réaliser une élimination de 90 %, correspondant à un facteur de réduction du plutonium de 10. Pour un taux de combustion de 20 %, le même facteur de réduction conduit à considérer une période de 150 à 180 ans (annexe F).

## 2.2 Développement des réacteurs du type CAPRA

Ce qui différencie fondamentalement les réacteurs du type CAPRA des réacteurs rapides surgénérateurs est l'absence de couvertures axiale et radiale en uranium appauvri et la composition métallurgique ainsi que la structure du cœur et des assemblages.



Pour obtenir une consommation élevée en plutonium, il faut augmenter le rapport  $Pu/(U + Pu)$  jusqu'à 0,45 dans les aiguilles combustibles et diluer les aiguilles dans leur assemblage en le truffant d'aiguilles remplies de matériaux inertes ( $MgAl_2O_4$  ou acier inox, par exemple) et même de matériaux modérateurs (ZrH) ou absorbeurs ( $B_4C$ ). L'ensemble du réacteur est contrôlé par des barres de contrôle (annexe G).

Des questions relatives à la stabilité du cœur, au coefficient Doppler et au coefficient de vide sodium sont toujours à l'étude pour améliorer la sûreté du réacteur et forment la partie essentielle de la recherche dans le cadre du projet CAPRA. Le coefficient Doppler est une mesure de la variation de la réactivité en fonction de la température dans le combustible; pour des raisons de sécurité, il doit être négatif et aussi grand que possible en valeur absolue. Le coefficient de vide sodium est une mesure de la variation de réactivité en fonction du pourcentage de vide dans le réfrigérant (sodium liquide); même s'il doit être négatif, des valeurs légèrement positives sont tolérées.

L'addition éventuelle d'actinides mineurs au plutonium augmente le coefficient de vide sodium, diminue la réactivité Doppler et réduit la plage de réactivité en fonction du taux de combustion. En première phase, le projet CAPRA n'envisage pas de mélanger les actinides mineurs au plutonium, mais des études de faisabilité sont en cours pour évaluer l'effet d'additions de faibles pourcentages en neptunium et américium.

Dans une phase ultérieure, on envisage d'éliminer complètement l'uranium du combustible MOX et de fabriquer des aiguilles combustibles avec des diluants inertes comme  $BeO$ , ZrH, ZrC,  $Al_2O_3$ ,  $MgO$  et  $CeO_2$ . Ceci permettrait en principe d'augmenter le contenu en plutonium au-delà de 45%, limite due à l'insolubilité thermodynamique du MOX avec plus de 50% de  $PuO_2$ . Au-delà de 45% de plutonium existe également l'alternative des combustibles de type nitrure. Il faut donc encore envisager toute une série d'études exploratoires concernant notamment

- le meilleur diluant de  $PuO_2$ ,
- le meilleur composé de plutonium en dehors des oxydes,
- la stabilité métallurgique du combustible,
- l'aptitude au retraitement du combustible (concentration maximale en plutonium),
- la production de déchets.

Ces études sont coordonnées par le CEA-Cadarache, avec la coopération de nombreux instituts de recherche nucléaire de différents pays (Allemagne, Royaume-Uni, Suisse, Japon, Pays-Bas, Russie).

Il serait indiqué qu'une équipe spécialisée en physique des réacteurs suive ces évolutions et en examine les résultats importants. Belgonucléaire et le CEN-SCK ont des équipes spécialisées dans ces domaines et pourraient contribuer conjointement au suivi et à l'examen des études en cours. Un des premiers résultats concrets aura trait à la fabrication d'aiguilles de combustible plutonifère avancé, domaine dans lequel BelgoNucléaire (BN) et la Franco-Belge de Fabrication de Combustibles (FBFC) excellent.



## CHAPITRE 3

# Le projet SPIN

---

### 3.1 Historique

Le projet SPIN, pour « SéParation et INcinération », est un gallicisme du sigle P&T : Partition(ing) & Transmutation.

Depuis deux décennies, le monde scientifique s'est intéressé à l'option P&T pour des raisons évidentes : intérêt scientifique, réduction du temps de vie et de la radiotoxicité des déchets, amélioration potentielle de la gestion des déchets de haute activité. Au cours des années septante et jusqu'au début des années quatre-vingt, d'importantes études de faisabilité et d'essais expérimentaux ont été effectuées sous l'égide de la Commission des Communautés Européennes.

Le Centre d'Ispra et divers centres du CEA ainsi que le centre américain d'Oak Ridge ont étudié la possibilité d'éliminer les déchets radioactifs afin d'éviter l'aménagement d'un dépôt de type géologique et/ou de très long terme. Ces travaux ont mené à la conclusion que l'option P&T ne pouvait en aucun cas se substituer à l'évacuation géologique comme phase ultime du cycle du combustible.

La commission Castaing a de son côté, après avoir examiné le problème, encouragé la poursuite de l'option d'enlèvement d'actinides mineurs des déchets de haute activité résultant du retraitement.

En 1988, le gouvernement japonais lançait le programme OMEGA (*Options Making Extra Gain from Actinides*). Ce programme grandiose (en budget et en objectifs) a fait l'objet d'une campagne diplomatique orchestrée et a fait revivre le programme P&T qui était délaissé depuis 1984. L'OCDE-AEN a accepté de gérer une collaboration internationale qui s'est mise en place depuis lors et a organisé des réunions d'échange d'informations à caractère formel.

Suite à cette nouvelle lancée internationale, le gouvernement français, sous l'impulsion du rapport de la commission Curien (alors Ministre de l'Industrie), a demandé au CEA de réexaminer l'option P&T, ce qui a donné lieu à l'introduction du projet SPIN en 1990.

En 1991, le parlement français adopte la loi Bataille, qui prône la poursuite des études sur l'aval du cycle du combustible selon deux voies parallèles :

- l'étude du stockage géologique et la réalisation de laboratoires souterrains (quatre sites);
- l'étude de la séparation et de l'incinération des actinides et des produits de fission.

### 3.2 Objectifs techniques du projet SPIN

Les objectifs techniques du projet SPIN sont répartis en deux programmes : PURETEX et ACTINEX.

#### Programme PURETEX (1990-2000)

Le programme PURETEX poursuit les objectifs suivants :

- améliorer la récupération du plutonium et des actinides dans le procédé PUREX;
- examiner les possibilités de séparation sélective du neptunium et du technétium;
- introduire de nouvelles techniques pour réduire les déchets de gaines, boues, etc.;
- réduire autant que possible les décharges en mer.

#### Programme ACTINEX (1990-2020)

Le programme ACTINEX, quant à lui, vise à

- étudier de nouvelles méthodes pour extraire tous les actinides des solutions de haute activité;
- développer des méthodes nouvelles de retraitement en remplacement du procédé PUREX pour le recyclage complet des actinides;
- étudier la séparation sélective et le conditionnement de l'iode et du technétium;
- étudier la transmutation des actinides mineurs (neptunium, américium).

Le programme PURETEX est essentiellement développé par le CEA et la Cogéma. Le programme ACTINEX est un programme CEA « pur », c'est-à-dire pour lequel l'industrie ne participe pas financièrement.

La partie *séparation* étudie de nouveaux procédés de retraitement dont les procédés DIAMEX et SESAME et les extractions aux calixarènes. La partie *incinération* étudie l'irradiation en réacteurs thermique (REP) et rapide (RNR) de l'américium et du neptunium.

Par le biais du programme ACTINEX, le CEA participe aux expériences internationales SUPERFACT gérées par l'Institut Transuranien.

### 3.3 Impact du programme SPIN sur la gestion des déchets belges

**Programme PURETEX** La réalisation des objectifs du programme PURETEX aura comme conséquence que la quantité de plutonium résiduel qui se trouvera dans les déchets vitrifiés sera réduite à 0,1% de l'inventaire initial.

Il est concevable que le neptunium soit dévié de son trajet normal (la solution de haute activité) pour être envoyé, soit vers la fraction uranium, soit vers la fraction plutonium. Le technétium soluble (environ 40% du total) peut être extrait et conduit vers une unité de conditionnement sélectif pour être mélangé aux fines de dissolution. Les déchets de gaine seront comprimés et réduits à  $0,5 \text{ m}^3 \cdot \text{TML}^{-1}$  (Tonne Métal Lourde).

Les déchets de haute et moyenne activité de retour en Belgique contiendraient donc environ cinq fois moins de plutonium et pourraient être exempts de neptunium et en partie de technétium. Par contre, ils contiendraient encore la quantité totale d'américium et de curium ainsi que tous les produits de fission.

L'enfouissement de tels déchets ne pose pas de problèmes de sûreté, étant donné la demi-vie relativement courte de ces radioéléments (400 ans pour  $^{241}\text{Am}$  et 24 ans pour  $^{244}\text{Cm}$ ) vis-à-vis de la période de confinement garantie par l'argile, soit plus de 100 000 ans.

Les fines de dissolution et le technétium récupéré représentent une catégorie de déchets qui nécessite un confinement de l'ordre du million d'années. Les caractéristiques physicochimiques de l'argile garantissent en cas de stabilité de la couche un confinement parfait du technétium ou  $\text{TcO}_2$ .

**Programme ACTINEX** Le programme ACTINEX aura des conséquences encore plus importantes sur le taux de radiotoxicité résiduel des déchets vitrifiés.

Si les méthodes actuellement à l'étude (TRUEX, DIDPA, DIAMEX et TRPO) donnent satisfaction, elles permettront d'extraire quantitativement près de 99% d'actinides mineurs (américium, curium et neptunium). En premier lieu, on pourrait se diriger vers un conditionnement thermodynamiquement stable pour encore réduire leur impact et les stocker en attendant une solution définitive (enfouissement ou incinération).

Le remplacement à terme du Tri Butyl Phosphate (TBP) par des diamides dans le procédé PUREX aura comme conséquence une réduction de la quantité et du volume de déchets de moyenne activité alpha. L'impact global est cependant minime.

Le conditionnement de l'iode, même sous une forme stable, pose problème. En effet, s'il n'est pas dilué dans les océans, l'iode se dispersera dans l'argile et constituera la source la plus importante de dose à l'homme, atteignant jusqu'à 50% de la dose admissible. Une transmutation semble ici extrêmement difficile et représente une activité de longue haleine. Etant donné le

faible volume de ces déchets (160 fûts de 400 l), on pourrait négocier leur échange avec d'autres types de déchets provenant d'un pays qui envisage l'évacuation géologique dans le sel. Le sel contient une quantité importante d' $^{127}\text{I}$  (non actif), qui permet de diminuer l'impact radiologique par dilution isotopique.

Les déchets de haute activité exempts d'actinides ne posent aucun problème de sûreté et ne nécessitent qu'un confinement de 600 ans au plus.

### **3.4 Synthèse de l'impact d'un programme de transmutation (CAPRA + SPIN) sur l'inventaire des radionucléides critiques**

Le recyclage quantitatif du plutonium vers le MOX dans les REP conduit à la création d'un terme source « actinides » dont la masse est environ cinq fois plus faible, mais dont la concentration spécifique est plus élevée. L'inventaire en plutonium est, après irradiation, environ 75 % de celui du combustible MOX frais.

Il n'y a pas moyen de recycler plus que deux fois le combustible MOX-REP. La seule alternative est alors de recourir aux réacteurs rapides, c'est-à-dire au programme CAPRA.

La transmutation des actinides mineurs (américium, neptunium) en REP donne lieu à la formation massive de  $^{238}\text{Pu}$  avec une demi-vie de 84 ans et à des actinides plus lourds et de longue demi-vie (isotopes 245, 246, 247, ... de l'américium).

La transmutation, ou plutôt l'incinération, des actinides (plutonium et actinides mineurs) dans des réacteurs du type CAPRA permet en principe de réduire cet inventaire à quelque 10% de sa valeur initiale.

La transmutation de  $^{99}\text{Tc}$  et de  $^{129}\text{I}$  dans un réacteur REP est extrêmement lente (environ 30 ans pour une réduction de 50%). Seule la transmutation dans un système accélérateur de protons/assemblage sous-critique permet d'y remédier, mais cela paraît impossible à justifier.

## CHAPITRE 4

# Conclusions et recommandations

---

**L**es projets CAPRA et SPIN visent à diminuer l'inventaire des déchets de haute activité et à longue demi-vie produits par les réacteurs de puissance. Le projet CAPRA en particulier s'intègre bien dans le contexte français, voire européen, compte tenu de la nécessité de disposer à ces fins d'installations adéquates (réacteurs rapides, installations de conditionnement et de fabrication de combustible, ...).

Plusieurs aspects abordés dans ce document montrent la connection des aspects « plutonium » avec ceux des actinides mineurs, et de là le couplage du projet CAPRA avec le projet SPIN (P&T). Plusieurs années de recherches seront encore nécessaires avant que ces nouvelles techniques soient applicables à l'échelle industrielle. Les investissements importants que requiert la construction de nouveaux réacteurs et accélérateurs ne militent pas en faveur d'un quelconque avantage économique à court ou moyen terme.

Quelle que soit l'option retenue pour le retraitement des déchets, l'évacuation en formation géologique reste l'étape finale incontournable.

En ce qui concerne la Belgique, les alternatives de type CAPRA et SPIN ne peuvent être, compte tenu des évaluations de performances réalisées à ce jour, considérées comme une exigence absolue d'un point de vue radiologique visant à garantir la sécurité à long terme. En particulier, les études relatives à la sûreté de l'évacuation géologique en formation argileuse, dans leur état d'avancement actuel, ne conduisent pas à considérer le plutonium comme un problème critique, sauf en cas d'intrusion humaine. Des résultats expérimentaux sur le comportement du combustible irradié en milieu argileux et des analyses de sûreté globales sont cependant encore nécessaires pour confirmer l'acceptabilité de l'option « évacuation directe » en Belgique. Depuis le débat au parlement sur le MOX, le retraitement du combustible n'est plus l'option unique pour l'aval du cycle du combustible en Belgique et le problème des combustibles usés de type MOX reste entier. Tout le problème se concentre donc sur l'acceptabilité de l'enfouissement définitif de quantités macroscopiques de plutonium et d'actinides mineurs (40 à 50 tonnes) dans la couche d'argile de Boom à Mol.

A court terme, la gestion des déchets ne subira pas de changements importants, compte tenu des contrats de retraitement en cours et de l'extension du stockage des combustibles usés dans des installations de surface (conteneurs, piscines).

Mais, à moyen terme, une décision devra être prise quant au sort à faire subir à ces quantités importantes (4 000 à 5 000 tonnes) d'éléments combustibles épuisés. En cas de retraitement et en cas de résultats positifs des développements du programme PURETEX en France, aujourd'hui déjà très prometteur, on peut espérer une diminution sensible des volumes de déchets et, après amortissement des installations de la Hague, une diminution du coût de retraitement. Ces deux aspects ne pourront avoir qu'un effet bénéfique sur la gestion des déchets radioactifs.

Si les programmes MOX dans les centrales REP et CAPRA en France évoluent d'une manière satisfaisante, on peut espérer que l'actuel excédent de plutonium pourra être recyclé plus rapidement et que le plutonium contenu dans les combustibles MOX-REP pourra être recyclé dans les futurs RNR-CAPRA. Tout dépendra de la rapidité avec laquelle des installations de fabrication de combustible MOX (BN, Melox, Hanau) pourront résorber l'actuel excédent en plutonium. La Belgique se doit donc de participer au projet CAPRA, vu la dimension de son industrie nucléaire (BN, FBFC) et l'importance du stock potentiel de plutonium. Le développement du combustible MOX est une réalisation belge qui pourrait servir de guide à l'élaboration de nouveaux types de combustibles plutonifères.

La Belgique doit suivre l'évolution des programmes PURETEX et ACTINEX afin de pouvoir juger de la validité des approches proposées et apporter, le moment venu, son savoir-faire industriel au développement futur des combustibles nucléaires pour les réacteurs à neutrons rapides de la seconde génération.

Une élimination des actinides mineurs des solutions de haute activité avant vitrification est en tout cas un objectif valable, pour autant que les frais de retraitement n'en soient pas augmentés considérablement.

Le CEN-SCK a, comme institut de recherche, le devoir de participer au projet CAPRA et de suivre de près les travaux du projet SPIN sans pour autant développer de techniques propres.

Après son *refurbishment*, le BR2 pourrait constituer un outil particulièrement adéquat pour l'essai de nouveaux types de combustibles plutonifères contenant des quantités significatives d'actinides mineurs. A côté de tels essais d'irradiation à haut flux ayant la particularité de pouvoir concerner des cibles de quelques centaines de grammes, on peut encore identifier deux domaines de collaboration :

- la physique des réacteurs (type et géométrie des combustibles);
- la réalisation et l'interprétation d'analyses postirradiatoires sur un combustible à base de plutonium à très haut taux de combustion.

Enfin, plusieurs points n'ont pas été abordés et mériteraient des développements futurs. Citons le passif complémentaire ainsi créé, les déchets secondaires produits et les doses supplémentaires pour l'actuelle génération de personnel professionnellement occupé à ces tâches.

## ANNEXE A

# Comparaison entre trois options

La table ci-dessous compare les quantités de déchets (en  $\text{kg} \cdot \text{TML}^{-1}$ ) à enfouir dans les trois options « enfouissement direct », « retraitement conventionnel » et « retraitement plus P&T ». Pour le retraitement conventionnel, la récupération de l'uranium et du plutonium est de 99,7 %.

<i>Méthode</i>	<i>U</i>	<i>Pu</i>	<i>Np, Am, Cu</i>	<i>Produits de fission</i>
Enfouissement direct	949	10,2	1,17	40
Retraitement	< 3	0,03	1,17	40
Retraitement + P&T	≪ 3	0,003	0,0117-0,117	40

Pour l'ensemble du parc nucléaire belge (5 750 MWe, facteur de charge de 0,8) et sur base d'une durée de vie des centrales de 40 ans (1975-2015, respectivement 1985-2025), on obtient, sans tenir compte de la décroissance radioactive, les données globales suivantes (en tonne équivalent) pour un taux de combustion de 33, respectivement 40  $\text{MWj} \cdot \text{TML}^{-1}$ , correspondant à 5 500 TML de combustible déchargé. (Dans le cas de l'entreposage direct et du retraitement, l'uranium contient environ 1 % d' $^{235}\text{U}$ .)

<i>Méthode</i>	<i>U</i>	<i>Pu</i>	<i>Np, Am, Cu</i>	<i>Produits de fission</i>
Enfouissement direct	5 220	52	5,9	220
Retraitement	14,4	0,15	5,9	220
Retraitement + P&T	0,144-1,44	0,0015-0,015	0,059-0,59	220



## ANNEXE B

# Evolution de l'inventaire de matières fissiles

Les besoins belges en uranium, exprimés en TML, et intégrés sur une période de 40 ans, conduisent, sans tenir compte du recyclage du plutonium, aux informations chiffrées dans la table suivante.

	$^{235}\text{U}$	TML (dont $^{235}\text{U}$ )	Ci $\alpha$
Uranium naturel	0,72 %	39 000 (281)	$1,07 \times 10^5$
Uranium appauvri	0,28 %	34 041 (94)	$0,91 \times 10^5$
Uranium enrichi	3,7 %	5 059 (187)	$1,74 \times 10^5$
Combustible déchargé	$\approx 1\%$	5 059 ( $\approx 50$ )	–
Inventaire net d'uranium	$\approx 1\%$	4 802 ( $\approx 48$ )	$2,90 \times 10^4$

Si le plutonium est recyclé, il représente un stock en plutonium fissile. Cette quantité permet de réduire la demande d'uranium naturel. Sur une période de 40 ans, cela représente 51,8 TML en plutonium, soit un potentiel fissile de 33,8 TML ( $^{235}\text{U}$ ), ou 12 % des besoins globaux (281 TML en  $^{235}\text{U}$ ).

La quantité d'uranium recyclé diminue les besoins en uranium de 13 %. Au total, le recyclage d'uranium et plutonium constitue une économie de 25 % en uranium naturel, avec des pics annuels de 33 %. La masse d'uranium appauvri n'est utilisable qu'en partie pour fabriquer du combustible MOX (12 à 15 TML·an<sup>-1</sup>, négligeables par rapport aux 850 TML·an<sup>-1</sup> mises en œuvre) aussi longtemps que l'emploi de MOX est limité à Doel 3 et Tihange 2.

Centrale	Années → 1992	Cap. nette [GWe·an <sup>-1</sup> ]	Taux combust. [GWj·T <sup>-1</sup> ]	TML combust. déchargé	Pu [kg]	Pu fissile [kg]
Doel 1	17	0,337	33	190,4	1 766	1 152
Doel 2	16	0,312	33	166,1	1 541	1 005
Doel 3	10	0,783	40	215	2 201	1 436
Doel 4	7	0,867	40	166	1 700	1 109
Tihange 1	17	0,712	33	402,7	3 737	2 439
Tihange 2	9	0,773	40	191	1 956	1 276
Tihange 3	7	0,905	40	173,8	1 778	1 160
				1 505	14 680	9 580

(La capacité nette est le produit de la puissance nominale par le facteur de charge. Le plutonium fissile, comprenant les isotopes  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ , représente 65,27 %.)

La quantité de plutonium produite jusqu'en 1992 peut être déduite de la table précédente. L'incertitude provient de l'évolution du taux de combustion, porté de  $33 \text{ GWj} \cdot \text{T}^{-1}$  à  $43 \text{ GWj} \cdot \text{T}^{-1}$ .

Les contrats conclus par Synatom sont les suivants :

- contrats 1976 et 1978            140 TML ;
- contrat en cours (1978)        530 TML ;
- contrat Tihange 1                225 TML ;
- sous-total                         895 TML ;
- option à confirmer  $120 \text{ TML} \cdot \text{an}^{-1}$ .

Des 1 505 TML qui ont été déchargées jusqu'en 1992, 895 TML ont été envoyées à la Hague pour retraitement et 610 TML ne se sont pas encore vu attribuer d'option définitive. La situation belge est donc en quelque sorte à comparer à la répartition mondiale entre le cycle « ouvert » et le cycle « fermé ».

La quantité restante de plutonium qui sera séparée jusqu'en l'an 2000 s'élève à 8 730 kg, soit  $(895/1505) \times 14 680$ .

Après soustraction des 1 135 kg de plutonium vendus à SKB, BN et EdF, on obtient 7 595 kg de plutonium total ou 4 957 kg de plutonium fissile.

La quantité de combustible MOX qui peut être fabriquée à partir de ce plutonium séparé dépend du pourcentage d'enrichissement, qui varie de 5,13 à 5,36% en plutonium fissile selon le temps de refroidissement. La fabrication du combustible MOX devra donc avoir un enrichissement total de 7,8 à 8,3%.

Le plutonium potentiellement disponible sous forme séparée et provenant du retraitement permet de fabriquer 97 TML de combustible MOX. Les charges en MOX des réacteurs Doel 3 et Tihange 2 ont été limitées d'une manière volontariste à 20% du cœur, c'est-à-dire 15 TML MOX par cœur de réacteur. Le rechargement en combustible MOX est donc limité à six cœurs de 900 MWe. Durant l'irradiation dans les REP, la quantité de plutonium dans le MOX diminue de 25% par cycle.

Le terme source résiduel qui devra être stocké contiendra donc environ 5,7 TML en plutonium total et se trouve dans les 97 TML de combustible déchargé. Cet inventaire de plutonium devra être stocké durant une longue période après laquelle on peut envisager trois possibilités :

- retraitement et recyclage d'une nouvelle charge de MOX après enrichissement avec du plutonium « noble » provenant des réacteurs gaz/graphite ;
- stockage à long terme suivi d'enfouissement en formation géologique ;
- retraitement et recyclage du MOX dans les réacteurs rapides de type CAPRA.

L'option retenue dépendra de facteurs économiques et de l'existence d'un dépôt souterrain pour des combustibles MOX.

Aucune option définitive n'est prise pour la période allant de 1992 à 2015 (resp. 2025). Jusqu'à l'an 2000, l'option de retraitement de  $120 \text{ TML} \cdot \text{an}^{-1}$  reste ouverte. Après cette date, aucun choix n'est encore arrêté, mais les alternatives peuvent être quantifiées :

- si le coût du retraitement reste aussi élevé, le combustible pourrait ne pas être retraité. Dans cette hypothèse, le parc de réacteurs de puissance amènera encore 3 500 TML  $\text{UO}_2$  et/ou MOX. Le contenu en plutonium correspondant est de 35 TML plutonium. Cumulé aux quantités de plutonium produites durant la période 1975-1992, on atteint ainsi un inventaire de 41 TML plutonium.
- si on décide en 1995 de continuer à retraiter jusqu'à la fin de la période considérée (2015 ou 2025), le terme source sera réduit à 31 TML plutonium dans le cas le plus optimiste.

Le recyclage de ces quantités de MOX dans des réacteurs du type CAPRA peut réduire le terme source à 3 TML plutonium.

## ANNEXE C

# Impact radiologique à long terme

---

Les études effectuées dans le cadre des projets PAGIS et PACOMA de la Commission Européenne ainsi que les résultats des examens de la commission SAFIR dans le cadre belge ont démontré que l'évacuation des déchets de très haute activité (les déchets vitrifiés) en formation géologique argileuse (argile de Boom à Mol-Dessel) est une solution acceptable pour l'homme et l'environnement à long terme.

Les doses d'irradiation résiduelles qui ont été calculées dans ces études sont de plusieurs ordres de grandeur inférieures à la dose d'irradiation naturelle de  $3 \text{ mSv} \cdot \text{an}^{-1}$  due au rayonnement naturel (cosmique et terrestre) en Belgique.

### C.1 Déchets de retraitement

Une dose maximale de  $3 \times 10^{-4} \text{ mSv} \cdot \text{an}^{-1}$  a été calculée pour le scénario dit d'évolution naturelle, dans le cas où la migration des radioéléments vers la biosphère se fait selon des voies naturelles (sol, rivières). Lorsqu'un forage est aménagé pour le pompage d'eau, la dose maximale est portée à  $4 \times 10^{-3} \text{ mSv} \cdot \text{an}^{-1}$ ; cela provient essentiellement des résidus d' $^{129}\text{I}$  se trouvant dans les déchets de très haute et de moyenne activité. L'impact maximum sur l'environnement se situe vers 60 000 ans.

Les actinides, particulièrement le  $^{237}\text{Np}$ , le  $^{226}\text{Ra}$  et le  $^{231}\text{Pa}$ , sont les seuls actinides qui occasionnent une dose significative. Le plutonium (1 % de l'inventaire) est très insoluble et fortement retardé dans l'argile. Quelques descendants radioactifs du plutonium et de l'américium ( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{231}\text{Pa}$  et  $^{226}\text{Ra}$ ) peuvent atteindre la nappe phréatique, mais seulement après des millions d'années.

L' $^{129}\text{I}$ , radio-isotope critique pour la migration dans l'argile, n'est présent qu'en concentration très faible, parce qu'il est rejeté en mer lors du retraitement et dilué dans les océans. La présence d' $^{127}\text{I}$  (naturel) dans les océans diminue fortement l'impact sur la biosphère à l'échelle de la terre.

## C.2 Evacuation directe de combustible irradié

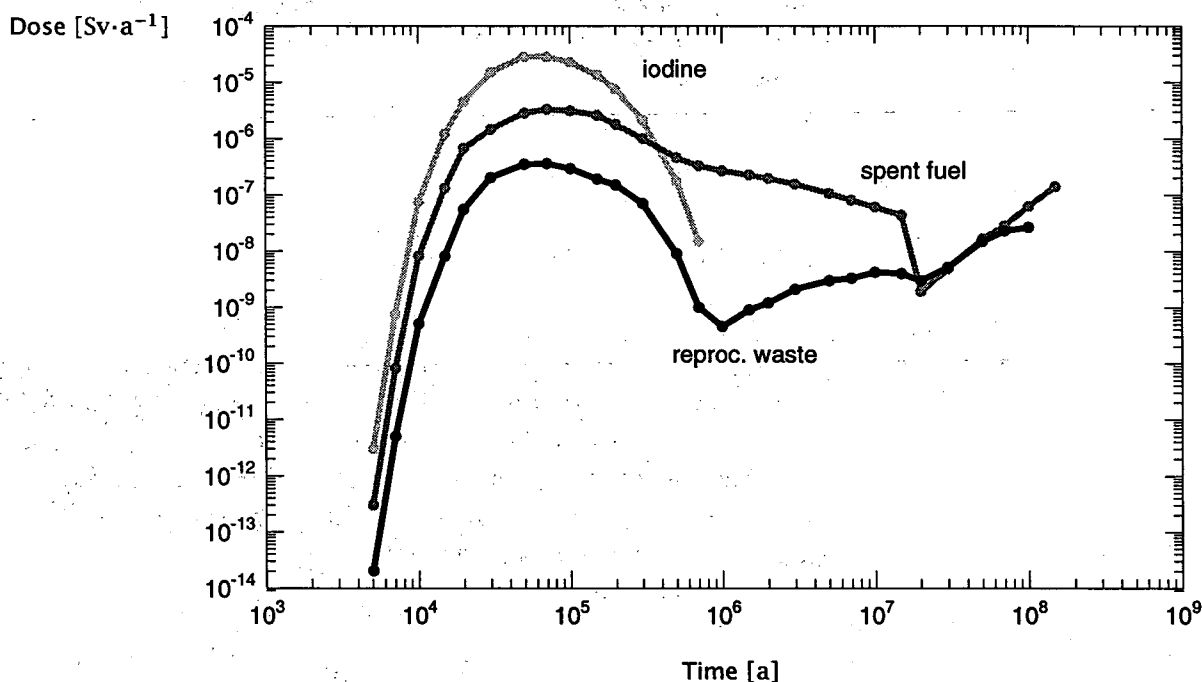
Lors de l'évacuation directe de combustibles usés en souterrain, c'est l'ensemble du potentiel radiologique qui forme le terme source.

Les quantités d'uranium, de plutonium et d' $^{129}\text{I}$  sont entre 100 et 300 fois plus élevées que dans le cas du retraitement conventionnel. Il y a en outre des quantités importantes d'uranium appauvri provenant des usines d'enrichissement qui s'ajoutent aux déchets radioactifs proprement dits.

Il faudra étudier en détail l'évolution à long terme de ce terme source où, du point de vue *impact radiologique potentiel*, les actinides constituent effectivement les éléments les plus radiotoxiques mais où, du point de vue du *risque résiduel*, l' $^{129}\text{I}$  et le  $^{99}\text{Tc}$  sont les radionucléides les plus importants.

Des études analogues au programme PAGIS-PACOMA doivent être effectuées avant de conclure à l'acceptabilité de l'option d'évacuation directe dans l'argile de Boom, qui, pour rappel, se situe en bordure d'une réserve d'eau potable très importante.

La figure suivante illustre l'évolution de la dose annuelle en fonction du temps pour les trois types de déchets considérés ici.



### Intrusion humaine

A court terme (300-500 ans), il est très peu probable qu'une intrusion humaine involontaire ait lieu. A plus long terme, c'est-à-dire au-delà de quelques milliers d'années, il est difficile d'exclure complètement ce genre de scénario. Plusieurs types d'intrusion sont possibles :

- une campagne volontaire visant à récupérer le potentiel fissile enfoui,
- un forage accidentel dans les tunnels où sont déposés les éléments combustibles,
- un forage pour de l'eau potable traversant la couche d'argile.

Dans chacun des cas, il y aura dispersion de quantités importantes d'actinides et contamination indirecte de la nappe aquifère.

Il est à noter que la radiotoxicité de l' $^{241}\text{Am}$  détermine la dose potentielle jusqu'à 4 000 ans. Au-delà de cette période et jusqu'à 240 000 ans (10 demi-vies du  $^{239}\text{Pu}$ ), le plutonium représente le risque majeur. L' $^{129}\text{I}$  est pour le dépôt souterrain l'élément le plus important pour le risque à très long terme.

**Criticité** L'évacuation directe, en particulier avec du combustible MOX-REP, pose le problème de la criticité à long terme, qui devra être résolu d'une manière très fondamentale pour éviter des effets du type Oklo.

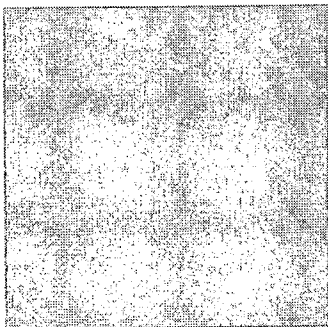
### C.3 Déchets de retraitement avec P&T

La présence dans le verre hautement actif d' $^{241}\text{Am}$  limite l'influence radiologique de ce terme source à 4 000 ans. Avec la séparation des actinides des solutions de haute activité, ce problème est éliminé et le seul potentiel radiologique est représenté par les produits de fission, où le  $^{137}\text{Cs}$  et le  $^{90}\text{Sr}$  déterminent le risque durant 600 ans au maximum.

Les actinides majeurs sont recyclés dans des charges MOX-REP et peuvent plus tard être soumis au multirecyclage pour en diminuer le terme source à 10% de l'inventaire initial des éléments combustibles  $\text{UO}_2$ -REP.

Ces opérations donnent lieu à des termes sources diminués et potentiellement encore plus stables que le verre (céramiques, etc.). Restera à étudier l'option à prendre pour les combustibles MOX-REP et pour les cœurs de réacteurs RNR-MOX à la fin d'une séquence de recyclage.

La spécialisation de chaque type de formation géologique pourrait faciliter les décisions à prendre sans hypothéquer le futur lointain.



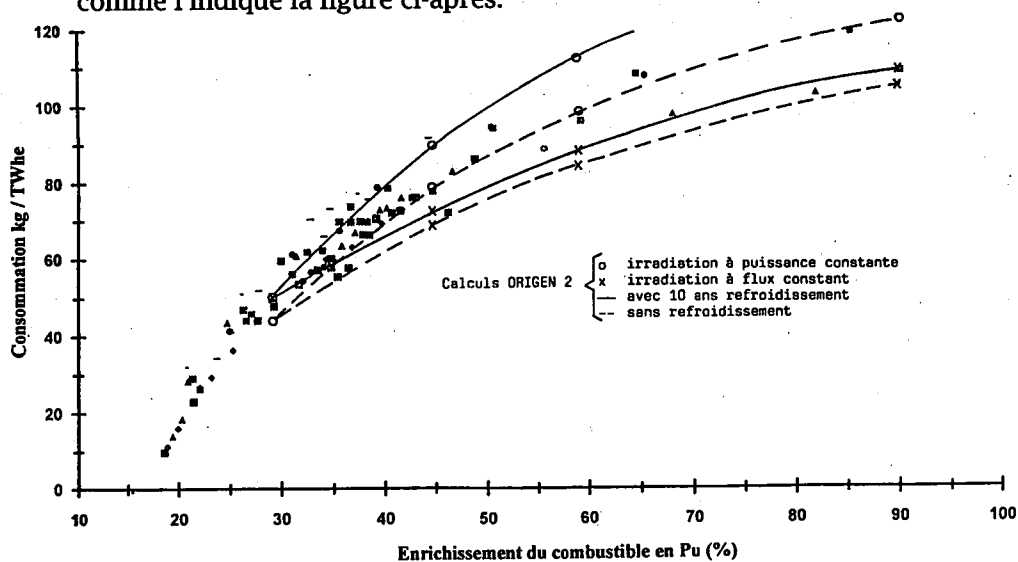
## ANNEXE D

# Consommation de plutonium dans les réacteurs CAPRA

Les calculs effectués par le CEN·SCK à l'aide du code ORIGEN 2 pour un combustible hypothétique de 33% en plutonium et actinides mineurs et 66% en uranium sont basés sur la composition isotopique donnée ci-dessous :

- 100 - x % d'uranium, composé comme suit :
  - ▶ 0,25 %  $^{235}\text{U}$ ;
  - ▶ 99,75 %  $^{238}\text{U}$ ;
- 0,8909 x % de plutonium, composé comme suit :
  - ▶ 3,08 %  $^{238}\text{Pu}$ ;
  - ▶ 37,25 %  $^{239}\text{Pu}$ ;
  - ▶ 33,62 %  $^{240}\text{Pu}$ ;
  - ▶ 17,10 %  $^{241}\text{Pu}$ ;
  - ▶ 8,95 %  $^{242}\text{Pu}$ ;
- 0,1091 x % d'actinides mineurs, composés comme suit :
  - ▶ 5,09 %  $^{237}\text{Np}$ ;
  - ▶ 48,94 %  $^{241}\text{Am}$ ;
  - ▶ 30,79 %  $^{243}\text{Am}$ ;
  - ▶ 15,18 %  $^{244}\text{Cm}$ ;

Ces calculs conduisent à une consommation de 50 kg de plutonium par TW·h ou 435 kg de plutonium par GWe·an, ce qui est conforme aux calculs exécutés par le CEA pour une gamme de concentrations en plutonium, comme l'indique la figure ci-après.



## ANNEXE E

# Sections efficaces

Les sections efficaces pour neutrons sont une mesure de la probabilité d'interaction de neutrons à une énergie donnée avec les noyaux lourds concernés :

- $\sigma_f$  : section efficace de fission,
- $\sigma_c$  : section efficace de capture.

La table ci-dessous donne des valeurs typiques de sections efficaces (en barns) pour neutrons rapides ou thermiques.

Nucléide	Neutrons thermiques ( $2\ 200\ m \cdot s^{-1}$ )		Neutrons rapides*	
	$\sigma_f$ [b]	$\sigma_c$ [b]	$\sigma_f$ [b]	$\sigma_c$ [b]
$^{235}\text{U}$	582,6	98,3	1,235 1	0,097 27
$^{238}\text{U}$	$0,004 \times 10^{-3}$	2,68	0,305 2	0,069 93
$^{237}\text{Np}$	$21,5 \times 10^{-3}$	175,9	1,347 3	0,165 90
$^{238}\text{Pu}$	17,9	540	1,976 8	0,145 42
$^{239}\text{Pu}$	748,1	269,3	1,790 9	0,040 43
$^{240}\text{Pu}$	0,056	289,5	1,352 0	0,087 21
$^{241}\text{Pu}$	1 011,1	358,2	1,597 2	0,108 96
$^{242}\text{Pu}$	< 0,2	18,5	1,125 7	0,072 10
$^{241}\text{Am}$	3,20	587	1,465 5	0,258 5
$^{243}\text{Am}$	0,198 3	75,1	1,193 4	0,074 96
$^{242}\text{Cm}$	< 5	16	1,844	0,071 62
$^{244}\text{Cm}$	1,04	15,2	1,607 6	0,122 08

\* valeur pondérée sur un spectre de fission



## ANNEXE F

# Multirecyclage dans les réacteurs CAPRA

---

Un réacteur de type CAPRA de même puissance peut éliminer par fission la quantité annuelle de plutonium produite par deux à trois réacteurs de puissance (environ  $500 \text{ kg} \cdot \text{an}^{-1}$ ). Cette quantité est beaucoup plus importante que la quantité de plutonium transmutée dans la partie MOX des réacteurs REP. La diminution globale en plutonium dans les REP-MOX est à peu de chose près nulle ou même légèrement positive, mais cette partie de cœur aura produit 30% d'électricité en plus vis-à-vis du non-recyclage.

Un réacteur de type CAPRA est donc un vrai brûleur de plutonium et éventuellement d'actinides mineurs issus des charges MOX. Il faut cependant atteindre un rapport d'un RNR pour quatre REP pour stabiliser l'inventaire global en plutonium et actinides.

La diminution de la quantité de plutonium est proportionnelle au taux de combustion réalisé dans les éléments combustibles du réacteur CAPRA. Dans l'état actuel de la technologie des RNR, le taux de combustion moyen oscille entre 12 et 15%, mais atteint déjà des valeurs de 25% au centre du combustible. Si l'on arrivait à réaliser un taux de combustion uniforme de 20 ou de 25%, on aurait alors réalisé réellement un cycle « plutonivore ».

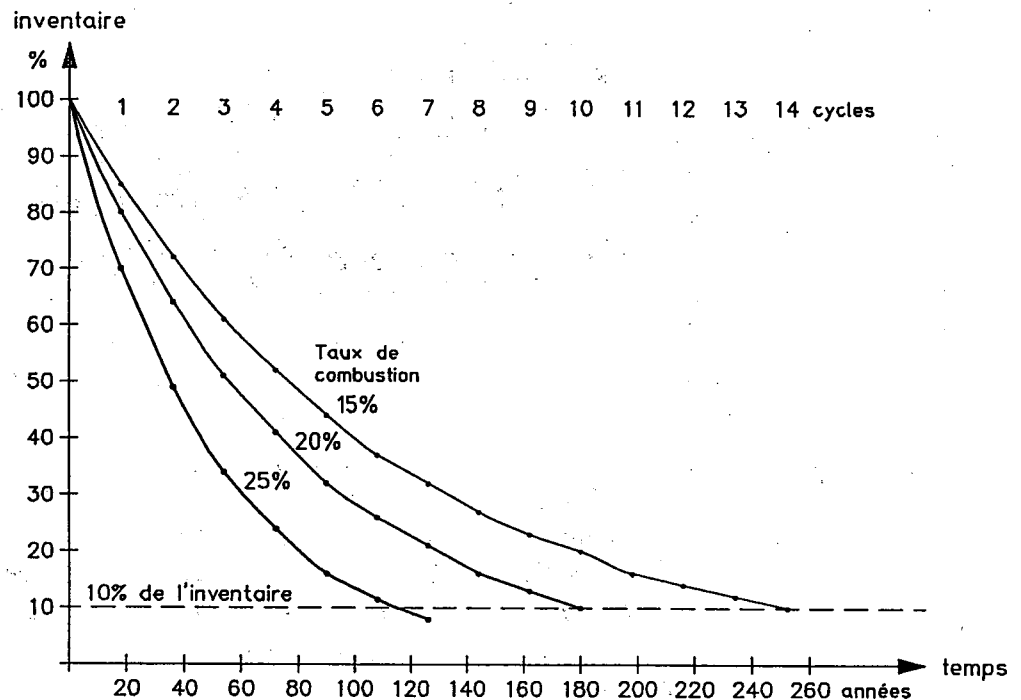
La durée d'un cycle se compose approximativement de 5 ans d'irradiation, 10 ans de refroidissement, 2 ans de retraitement et 1 an de refabrication du combustible « rapide ». Cela fait donc un total de 18 ans par cycle.

La figure F.1 montre la diminution d'un inventaire unitaire initial en fonction du nombre de recyclages et du taux de combustion.

La durée totale du multirecyclage peut y être lue pour un inventaire résiduel de 10% : le temps nécessaire s'échelonne de 252 ans (taux de combustion de 15%) à 144 ans (taux de 25%).

En dehors de l'investissement associé aux réacteurs, il faut considérer la construction d'une usine de retraitement spécialisée pour traiter un combustible aussi radioactif, ainsi que la construction de plusieurs unités de fabrication de combustible complètement automatisées. Un tel effort budgétaire n'est concevable qu'au niveau de grands pays, comme la France, voire à l'échelle de l'Europe.

Des calculs ont été réalisés au CEN•SCK pour évaluer l'évolution de la composition isotopique du combustible en fonction des recyclages, pour des



**Figure F.1** Diminution d'un inventaire unitaire initial en fonction du nombre de recyclages et du taux de combustion.

périodes d'irradiation de 5 ans, entrecoupées par des périodes de refroidissement de 10 ans. Il a été supposé que les actinides mineurs accompagneraient le plutonium pour être incinérés avec lui.

La figure F.2 montre l'évolution de la composition isotopique du plutonium. Il y a essentiellement un accroissement du  $^{238}\text{Pu}$  et une diminution drastique du  $^{241}\text{Pu}$ . Les autres isotopes restent au niveau du combustible utilisé MOX-REP, dont ils sont extraits.

La figure F.3 montre l'évolution des isotopes constituant les actinides mineurs. Il y a une augmentation importante de la concentration en  $^{243}\text{Am}$  et en  $^{245}\text{Cm}$ . Les autres radionucléides sont plus ou moins stabilisés.

Il est à remarquer que deux des isotopes influençant la gestion des déchets ( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ) sont effectivement brûlés.

Ces calculs démontrent que le principe de la fission/transmutation est valable pour le plutonium et les actinides mineurs, mais que d'importants efforts de recherche devront être faits pour définir le type de combustible adéquat et la nature du cycle du combustible associé.

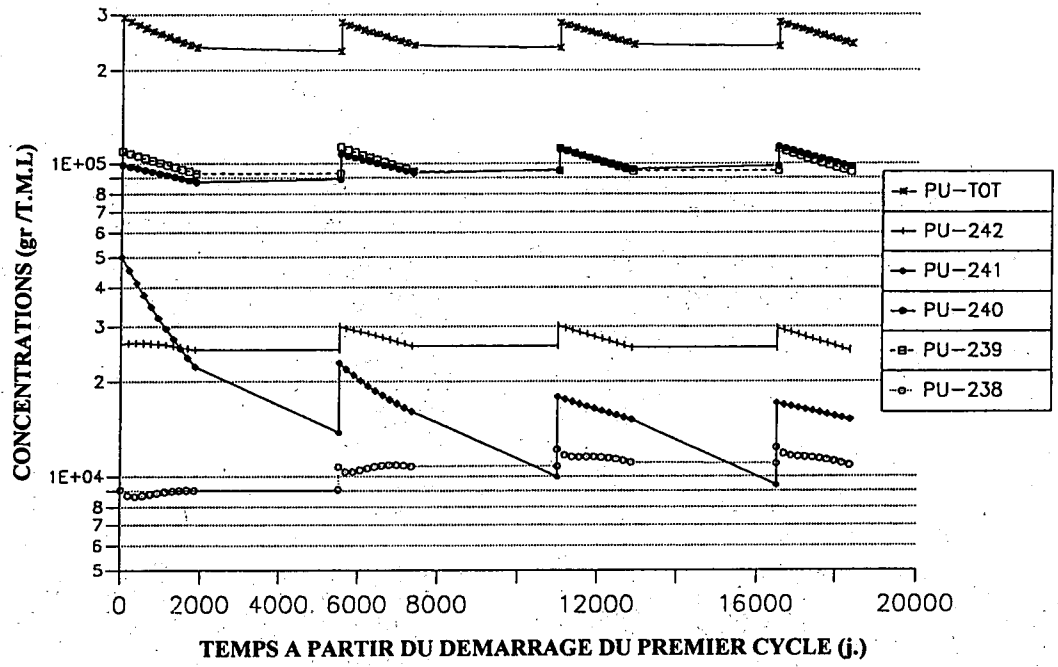


Figure F.2 Evolution de la composition isotopique du plutonium.

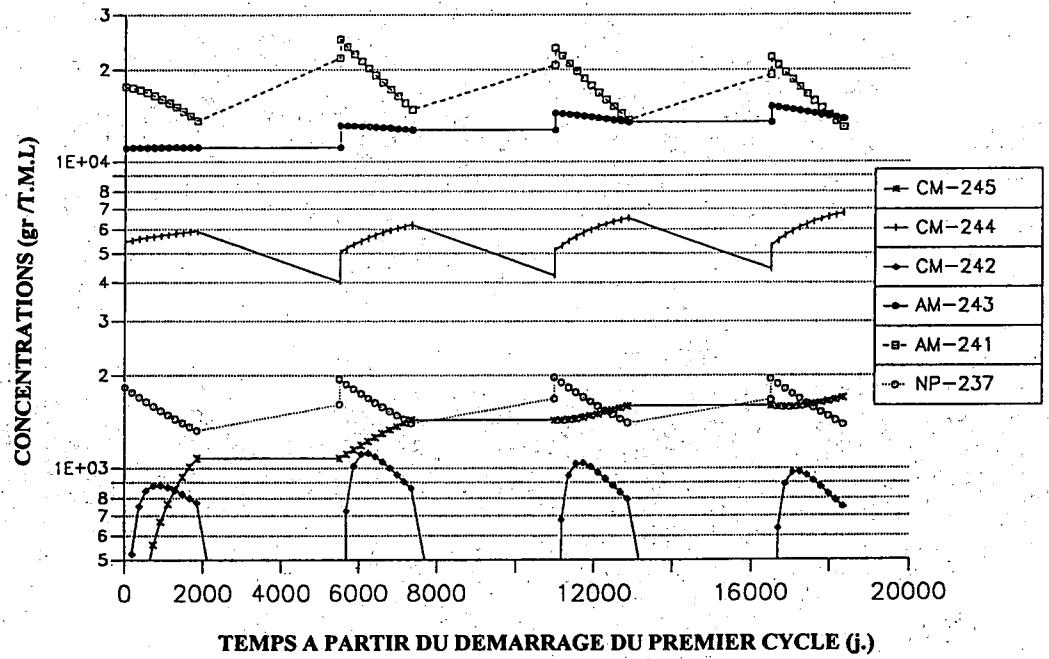


Figure F.3 Evolution des isotopes constituant les actinides mineurs.



## ANNEXE G

# Design du cœur des réacteurs CAPRA

---

Le réacteur de type CAPRA suppose l'utilisation d'un combustible à teneur en plutonium supérieure à ce qui est aujourd'hui utilisé en réacteur rapide. Pour tout type de réacteur, l'équilibre neutronique doit répondre au critère suivant :

$$\text{production} = \text{absorption} + \text{perte.}$$

En augmentant le contenu en plutonium, on augmente, toutes choses restant égales, le terme de production. Dès lors, pour maintenir l'équilibre, on peut

- réduire la production en diminuant la masse de combustible,
- augmenter l'absorption par l'addition de matériaux absorbants,
- augmenter le terme « perte » en adaptant, par exemple, la forme du cœur.

En pratique, on peut avantageusement remplacer une partie du combustible par de l'acier, du vide, du sodium ou un absorbant, de façon homogène ou hétérogène, afin de diminuer le terme « production » et d'augmenter l'absorption.

Les études en cours indiquent, comme une des solutions les plus prometteuses, la possibilité de réduire la fraction en volume du combustible (pastilles annulaires autour d'un trou central, céramiques d'oxydes à basse densité, aiguilles vides distribuées de façon adéquate, ...). Différents niveaux d'hétérogénéités peuvent encore être définis ; l'influence respective des différentes options sur la sécurité de fonctionnement doit quant à elle être examinée en détail (réactivité vide sodium, ...). De façon générale, on considère que la solution de « dilution » du cœur à l'aide de matériaux inertes a la préférence, bien que l'« empoisonnement » des diluants puisse être nécessaire dans la série initiale d'éléments combustibles.

Un concept de référence du projet CAPRA est ici annexé.

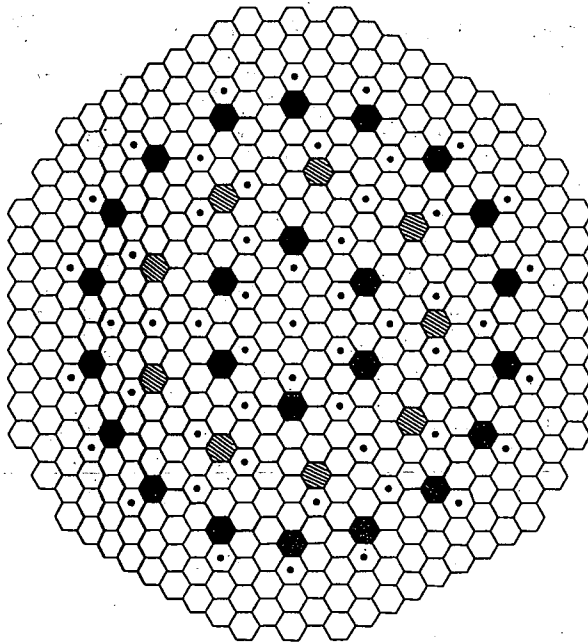
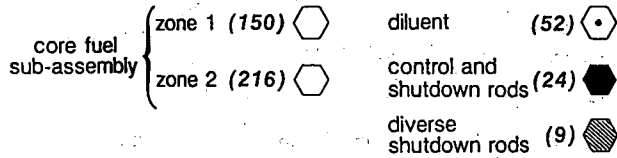
Pour être complets, signalons encore deux orientations possibles au niveau du combustible :

- l'utilisation de plutonium au sein d'une matrice inerte, c'est-à-dire non productrice de plutonium car non à base d'uranium (faisabilité à démontrer);

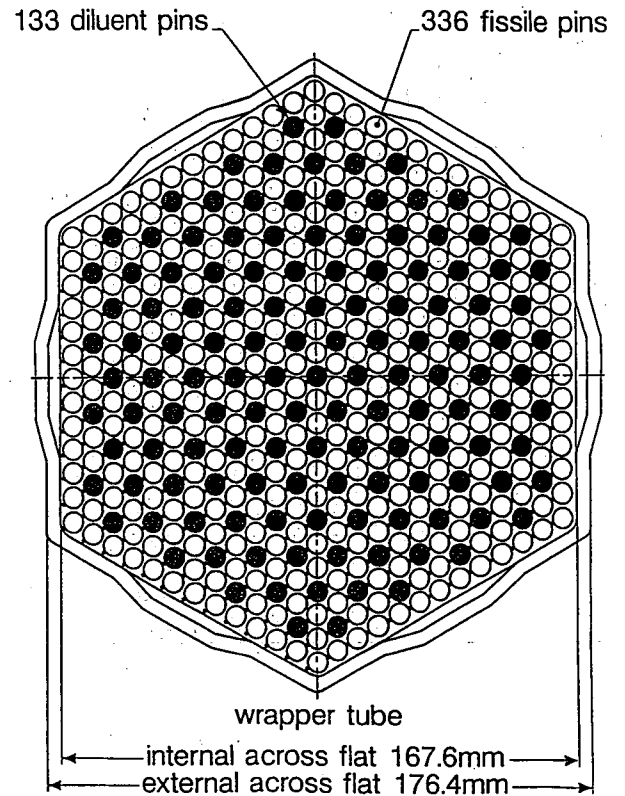
- l'utilisation de combustibles « nitrures » et non plus « oxydes » ; de tels combustibles devraient permettre de porter le contenu en plutonium de 45 à 60% et présenteraient des avantages au niveau de l'incinération des actinides mineurs. Outre les études de faisabilité, un inconvénient majeur de ce type de combustible réside en la production de  $^{14}\text{C}$ .

## CORE LAYOUT

(04.94)



## SUB-ASSEMBLY DESIGN





## ANNEXE H

# Références

---

- [1] E. Schmidt, E. Zamarani, W. Hage, S. Guardini, « Assessment Studies on Nuclear Transmutation of By-Product Actinides », rapport final, CCE, JRC Ispra (Italie), SA/1.05.03.83.13, 1983.
- [2] Rapport du groupe de travail sur la gestion des combustibles irradiés. Rapport « Castaing », Ministère de la Recherche et de l'Industrie, Conseil supérieur de la sûreté nucléaire, Paris, 1982.
- [3] C. W. Forsberg, A. G. Croff, D. C. Kocher, « Historical Perspective—Economic Analysis and Regulatory Analysis of the Impacts of Waste Partitioning-Transmutation on the Disposal of Waste », ORNL-TM 11650, 1990.
- [4] Actinide and Fission Product Separation and Transmutation, Information Exchange Meeting (OMEGA Project), Mito City, Japon, 6-8 novembre 1990, Proceedings OECD-NEA, Paris, 1991.
- [5] « The Management of End-of-Cycle Products Arising from the Nuclear Power Programme. The Possible Contribution of the Superphenix Reactor », Rapport Ministère de l'Industrie, Paris, décembre 1992.
- [6] L. H. Baetslé, « Role and Influence of Partitioning and Transmutation on the Management of Nuclear Waste Streams », OECD-NEA P&T report no. 3, 1992.
- [7] L. H. Baetslé, « Role and Influence of Partitioning and Transmutation on the Management of Nuclear Waste Streams. Summary », Proceedings Waste Management Conference WM93 vol. 2, pages 1235-1241, 1993.
- [8] L. H. Baetslé, « Partitioning and Transmutation of Actinides and Fission Products », *Atomwirtschaft. Atomtechnik* 4, pages 255-270, avril 1993.
- [9] L. H. Baetslé, Ch. De Raedt, A. Delbrassine, A. Beeckmans, « Transmutation Capability of the High-Flux Reactor BR2 Actinide and Fission Product Separation and Transmutation », Proceedings International Information Exchange Meeting Argonne National Laboratories, Argonne, Illinois, USA, 11-13 novembre 1992, OECD-NEA, Paris, France, pages 273-305, 1993.
- [10] L. H. Baetslé, Ch. De Raedt, « Limitations of Actinide Recycle and Waste Disposal Consequences—A Global Analysis, Reactor Physics and Reactor Computations », Proc. Int. Conference, Tel Aviv, Israël, pages 49-74, 1994.
- [11] First international CAPRA Seminar, Cadarache, France, 24-25 mars 1994.
- [12] Second international CAPRA Seminar, Karlsruhe, Allemagne, 21-22 septembre 1994.

- [13] L. H. Baetslé, « Impact of High Burnup Irradiation and Multiple Recycle of Plutonium and Minor Actinides on the Fuel Cycle Activities », Third International Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Cadarache, France, 12-14 décembre 1994, présentation 1.5.
- [14] A. Bonne, J. Marivoet, C. Van Bosstraeten, « PAGIS. Clay option », CCE-DG XII et CEN-SCK, 1989.
- [15] J. Marivoet, « Updating of the Performance Assessment of the Geological Disposal of High-Level and Medium-Level Wastes in the Boom Clay Formation », CEN•SCK Mol, NIRAS/ONDRAF Brussels, BLG 634, 1992.

## ANNEXE I

# Acronymes

---

<b>ACTINEX</b>	ACTINide EXtraction
<b>BN</b>	BelgoNucléaire (Bruxelles et Dessel, Belgique)
<b>BR2</b>	Belgian Reactor 2 (Mol, Belgique)
<b>CAPRA</b>	Consommation Accrue en Plutonium dans des réacteurs RAPides
<b>CCE</b>	Commission des Communautés Européennes
<b>CEA</b>	Commissariat à l'Energie Atomique (France)
<b>CEN•SCK</b>	Centre d'étude de l'Energie Nucléaire/StudieCentrum voor Kernenergie
<b>Cogéma</b>	Compagnie GÉNérale de MATières nucléaires (France)
<b>DIAMEX</b>	DIAMide EXtraction
<b>DIDPA</b>	Di-IsoDecyl Phosphoric Acid
<b>EdF</b>	Electricité de France (Paris, France)
<b>FBFC</b>	Franco-Belge de Fabrication de Combustibles (Dessel, Belgique)
<b>JRC</b>	Joint Research Centre (Ispra, Italie)
<b>MOX</b>	Mixed OXide
<b>NIRAS/ONDRAF</b>	Nationale Instelling voor Radioactief Afval en verrijkte Spleijtstoffen/Organisme National des Déchets RadioActifs et des matières Fissiles enrichies (Bruxelles, Belgique)
<b>OCDE-AEN</b>	Organisation pour la Coopération et le Développement Economique — Agence de l'Energie Nucléaire (Paris, France)
<b>OECD-NEA</b>	Organization for Economic Cooperation and Development—Nuclear Energy Agency (Paris, France)
<b>OMEGA</b>	Options Making Extra Gain from Actinides
<b>ORIGEN 2</b>	ORNL Isotope GEneration and depletion code, second version
<b>ORNL</b>	Oak Ridge National Laboratory (Oak Ridge, Tennessee, USA)
<b>PACOMA</b>	Performance Assessment of the COnfinement of Medium-level and Alpha waste
<b>PAGIS</b>	Performance Assessment of Geological Isolation Systems
<b>P&amp;T</b>	Partitioning and Transmutation
<b>PURETEX</b>	Amélioration du procédé PUREX
<b>PUREX</b>	Plutonium and Uranium Recovery by EXtraction
<b>REP</b>	Réacteur à Eau Pressurisée
<b>RNR</b>	Réacteur à Neutrons Rapides
<b>SAFIR</b>	Safety Assessment and Feasibility Interim Report
<b>SKB</b>	Swedish nuclear fuel and waste management (Stockholm, Sweden)



<b>SPIN</b>	<b>SéParation et INcinération</b>
<b>TBP</b>	<b>Tri Butyl Phosphate</b>
<b>TML</b>	<b>Tonne Métal Lourd</b>
<b>TRUEx</b>	<b>TRansUranium EXtraction</b>

CEN•SCK, avril 1995

Graphisme, composition, relecture JL Consulting, Zaventem

Impression de la couverture Lannoo, Tielt

Editeur responsable Carl M. Malbrain  
Boeretang 200, B-2400 Mol, Belgique

---

**CONTACTS**

Déchets et Enfouissement    Bernard Neerdael  
+32 14 33 27 70 (fax 32 12 79)  
bneerdae@sckcen.be

Relations publiques    Anne Verledens  
+32 14 33 25 86 (fax 33 25 84)  
averlede@sckcen.be

---

**ADRESSES**

Laboratoires    Boeretang 200  
B-2400 Mol, Belgique  
Tél. : +32 14 33 21 11  
Fax : +32 14 31 50 21

Siège social    rue du Moulin à Papier 51 boîte 9  
B-1160 Bruxelles, Belgique  
Tél. : +32 2 661 08 11  
Fax : +32 2 660 75 63



STUDIECENTRUM VOOR KERNENERGIE  
CENTRE D'ÉTUDE DE L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE