

Un combustible nucléaire redécouvert : le thorium

■ par **S. DAVID, E. HUFFER, H. NIFENECKER**

Société Française de Physique, Commission Energie

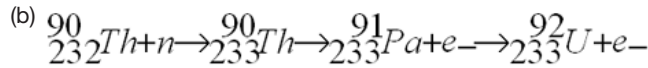
Généralités

La loi du 30 décembre 1991 a conduit un nombre significatif d'enseignants chercheurs et de chercheurs à s'investir dans des études sur la gestion des déchets nucléaires, en particulier à travers des groupements de recherche comme PRAC-TIS, FORPRO, MOMAS, PARIS, GEDEON (GEDEPEON). En particulier le CNRS a acquis une expertise de haut niveau dans les domaines du calcul de réacteurs, dans l'étude des cycles de combustible et dans la mise au point de scénarios de déploiement de systèmes de production d'électricité nucléaires. De ce fait les chercheurs et enseignants chercheurs ont développé des approches du nucléaire du futur qui, sans être contradictoires avec celles développées par les institutions, en sont complémentaires. Il a semblé utile à la SFP que certaines de ces approches soient portées à la connaissance du public dans le cadre du Débat Public Particulier sur la gestion des déchets nucléaires. Dans la contribution présente, on insistera plus particulièrement sur le cycle du Thorium, sur les réacteurs à sels fondus et sur l'optimisation du recyclage des combustibles UOx usés.

Les avantages du cycle Thorium

Les réacteurs surgénérateurs comme Super Phénix font appel au cycle uranium238-plutonium239. (a)

Dans ce cycle, le plutonium dont la fission produit l'énergie du réacteur est remplacé par du nouveau plutonium obtenu grâce à la capture d'un neu-



tron par l'uranium238. Dans le cycle thorium232-uranium233, le thorium232 joue le rôle de l'uranium238 et l'uranium233 celui du plutonium239. (b)

Comme on peut le voir sur la Figure 1, alors que le cycle uranium238-plutonium239 exige, pour fonctionner durablement, que les neutrons soient rapides, le cycle thorium232-uranium233 fonctionne aussi bien avec des neutrons rapides qu'avec des neutrons lents.

Un faible inventaire initial

La probabilité relative de fission des noyaux fissiles (Pu239 et U233) comparée à celle de simple capture des neutrons par les noyaux fertiles (U238 et Th232) est plus grande pour les neutrons lents que pour les neutrons rapides. De ce fait les quantités de noyaux fissiles nécessaires au fonctionnement de réacteurs à neutrons lents sont généralement plus faibles que celles nécessaires au fonctionnement des réacteurs à neutrons rapides. C'est ainsi que, dans le cas du cycle uranium238-plutonium239, la quantité de Plutonium 239 nécessaire au fonctionnement d'un surgénérateur à neutrons rapides d'une puissance thermique de 3 GW est, typiquement, de l'ordre de 7 à 14 tonnes (selon les quantités immobilisées dans le circuit de retraitement). Dans le cas du cycle thorium232-uranium233, la quantité d'uranium 233 nécessaire au fonctionnement d'un surgénérateur à neutrons lents de même puissance ne nécessite que deux à trois

tonnes. Il s'ensuit que la fabrication de la première charge d'un surgénérateur du cycle thorium232-uranium233 grâce à l'irradiation de thorium 232 dans un réacteur "classique" prendrait environ quatre fois moins de temps que celle de la première charge d'un surgénérateur du cycle uranium238-plutonium239.

Des déchets moins radioactifs

Au delà de quelques siècles la radio-toxicité des déchets nucléaires est dominée par celle des noyaux lourds radioactifs alpha produits par des captures successives de neutrons par les noyaux lourds du combustible nucléaire. Dans le cas des surgénérateurs utilisant le cycle uranium-plutonium, ces deux derniers éléments sont complètement utilisés et ne concourent que très peu (pertes de retraitement) à la radio-toxicité des déchets qui est, de ce fait, deux ordres de grandeur plus faible que dans

le cas des réacteurs REP¹ classiques, comme on peut le voir sur la Figure 2.

En d'autres termes, à production d'énergie égale, les besoins de stockage géologique seront près de 100 fois plus faibles pour un ensemble de surgénérateurs uranium-plutonium que dans la pratique actuelle. L'utilisation du cycle thorium-uranium est encore plus favorable de ce point de vue car, le thorium 232 ayant un nombre de masse de six unités inférieur à celui de l'uranium 238, la production des actinides mineurs (Neptunium, Américium, Curium), qui sont à l'origine de l'essentiel de la radiotoxicité des déchets du cycle uranium-plutonium, est fortement réduite. La Figure 2 montre que la radiotoxicité des déchets du cycle thorium-uranium est beaucoup plus faible que celle du cycle uranium-plutonium pendant les premiers 10 000 ans. En particulier, la faiblesse de la radioactivité de ce cycle au début du stockage permettrait de grandes économies sur la dimension et donc le coût de celui-ci².

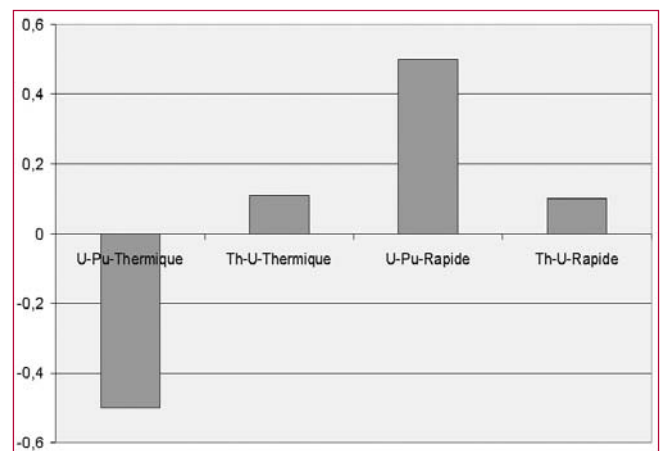
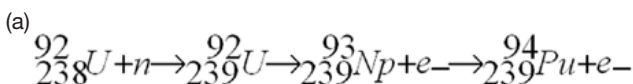


Fig. 1 - Valeur du nombre de neutrons disponibles pour la surgénération dans les systèmes uranium-plutonium et thorium-uranium pour des spectres de neutrons thermiques et rapides. Les valeurs négatives signifient que la régénération est impossible.



1 Réacteurs à eau pressurisée, les seuls utilisés en France. Les REB (réacteurs à eau bouillante) ont des caractéristiques similaires en ce qui concerne l'utilisation du combustible.
2 Ceci sans préjudice de la nécessité de gérer les stocks actuels et ceux produits par la prochaine génération d'EPR.

Point de Vue

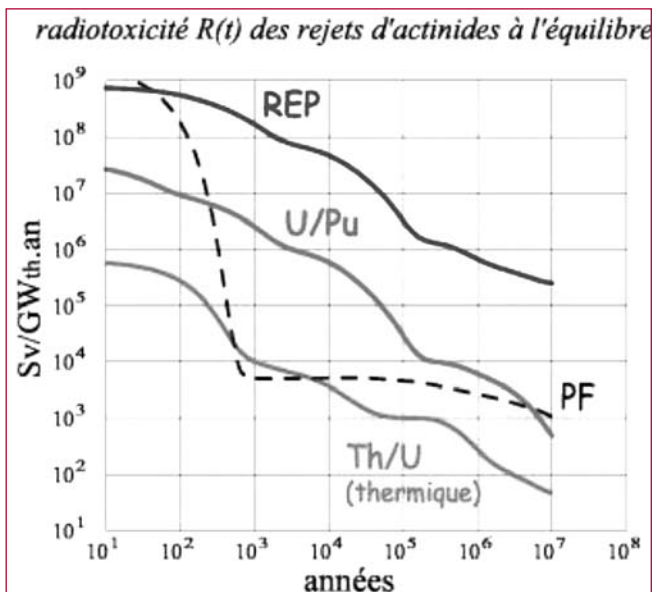


Fig. 2 - Evolution temporelle de la radiotoxicité des déchets de haute activité pour différents cycles nucléaires.

Un combustible peu proliférant

La disponibilité d'un noyau fissile de faible activité gamma est indispensable pour la fabrication d'une arme nucléaire. En effet la présence d'une forte activité gamma nécessite que les opérateurs soient protégés par d'importantes épaisseurs de plomb ou de verre au plomb. L'uranium 235 obtenu grâce aux usines de séparation isotopique n'a qu'une faible activité gamma tout comme le plutonium extrait des combustibles irradiés. La production d'uranium 233 est, en général, accompagnée de celle d'uranium 232 de période 70 ans. Les désintégrations alpha successives de l'uranium 232 conduisent au thallium 208 dont la désintégration s'accompagne de l'émission d'un rayonnement gamma de 2,6 MeV extrêmement pénétrant. La fabrication d'une arme utilisant de l'uranium 233 contaminé par de l'uranium 232 est pratiquement impossible. Il est vrai que cet avantage à l'égard de la prolifération se paye par la complexité de la fabrication du combustible des réacteurs dont toutes les étapes doivent être robotisées ou, au moins, se faire à l'abri de lourdes protections.

Des réserves importantes

Les réserves terrestres de Thorium sont estimées à environ 4 fois celles d'Uranium. En particulier des gisements très riches sont abondants en Inde, au Brésil, à Madagascar. Par contre le Thorium est très peu soluble, ce qui exclut son extraction de l'eau de mer, au contraire de celle de l'Uranium. Il y a lieu de souligner, toutefois, que la technologie des réacteurs surgénérateurs, très économe en combustible, permet l'exploitation rentable de minerais de faible teneur et garantirait la disponibilité de combustibles pour plusieurs milliers d'années aussi bien pour les surgénérateurs au Thorium que pour ceux à l'Uranium. La plus grande abondance du Thorium n'est donc pas un élément décisif.

Quels réacteurs pour mettre en œuvre le cycle thorium ?

Dans le cycle thorium-uranium la surgénération peut être obtenue aussi bien avec des neutrons rapides qu'avec des neutrons lents. Avec les neutrons rapides elle est plus difficile que pour le cycle Uranium-Plutonium. Elle exige des inventaires initiaux élevés,

de l'ordre de 4 tonnes pour un réacteur de 3 GWth. A cet inventaire dans le cœur il faut ajouter l'uranium 233 présent dans le cycle du combustible. Il s'ensuit que les temps de doublement deviennent très grands. En pratique les réacteurs thorium-uranium à neutrons rapides seront des réacteurs simplement régénérateurs. Ils pourraient être du même type que les réacteurs rapides utilisant le cycle uranium-plutonium.

Les réacteurs surgénérateurs thorium-uranium à neutrons lents ne nécessitent qu'un faible inventaire d'uranium 233, de l'ordre de 1 tonne. Les temps de doublement théoriques sont équivalents à ceux des surgénérateurs uranium-plutonium à neutrons rapides. Toutefois les produits de fission empoisonnent de façon beaucoup plus efficace les réacteurs à neutrons lents que les réacteurs à neutrons rapides. Pour conserver un temps de doublement intéressant, il est donc nécessaire de minimiser les captures dans les produits de fissions et dans les autres éléments de structure ou caloporteurs. Une solution théoriquement très élégante à ce problème a été proposée dans les années 60 sous la forme de réacteurs à sels fondus dans lesquels le combustible est un sel fondu qui fait aussi office de caloporteur. Pour limiter les captures dans les produits de fission il était proposé de recycler le sel en ligne, au prix d'une grande complexité du réacteur qui devient une usine chimique. L'abandon de l'objectif d'un faible temps de doublement permet d'envisager des réacteurs à sel fondu où le retraitement en ligne est très simplifié ou d'autres types de réacteurs à déchargement continu comme les réacteurs à eau lourde (CANDU) ou les réacteurs à boulets refroidis au gaz. Un schéma particulièrement intéressant consisterait à compléter un parc de régénérateurs thorium-uranium par des réacteurs rapides utilisant un cœur régénérateur uranium-plutonium entouré d'une couverture en thorium qui fournirait l'excédent d'uranium 233 nécessaire à la croissance du parc.

Avantages et inconvénients des combustibles MOx uranium-plutonium

A la suite du choc pétrolier de 1973, les experts français avaient prévu un développement rapide de la production d'électricité nucléaire dans le monde, à l'image de la politique dans laquelle la France allait s'engager. Les ressources dans les réacteurs de type REP, risquaient d'être insuffisantes. Pour cette raison la France s'engagea hardiment dans le développement des réacteurs surgénérateurs refroidis au Sodium (RNR) avec la construction et les mises en service successives des réacteurs Rapsodie, Phenix et Super-Phenix. De plus il fut décidé de réaliser les usines de séparation du Plutonium (La Hague) et de fabrication (Marcoule) de combustibles chargés en Plutonium nécessaires à la fourniture et à la fabrication des cœurs des réacteurs surgénérateurs. Les prévisions des experts français ne se réalisèrent pas du fait, d'une part, du développement des centrales électriques à charbon favorisé par des coûts d'investissement plus faibles que ceux des centrales nucléaires, et d'autre part de l'accident de Three Mile Island qui mit fin à la construction de réacteurs aux USA. La justification économique des RNR disparut donc. En même temps leur développement se heurtait à une virulente opposition du mouvement antinucléaire qui voyait en eux, à juste titre, une condition suffisante d'un nucléaire durable. La décision politique d'arrêter Super-Phenix mit fin au programme de RNR en France, au moins à court et moyen terme. Il fut alors décidé de tirer profit du considérable investissement technique, économique et humain représenté par les usines de La Hague et de Marcoule en brûlant le plutonium extrait dans les réacteurs REP. C'est le programme MOx.

Le programme MOx a des avantages indiscutables : économie d'Uranium 235, diminu-

Point de Vue (suite)

tion considérable du volume des déchets de haute activité et vie longue, conditionnement de ces derniers sous forme de verres très stables, maintien d'une compétence technique et industrielle unique au monde qui représente un atout exceptionnel pour la France dans la perspective d'un re-développement du nucléaire dans le monde.

Mais le programme MOx a aussi des inconvénients. Les combustibles MOx irradiés sont entreposés dans la perspective d'utiliser le plutonium qu'ils contiennent encore dans des réacteurs du futur. Mais le plutonium ainsi entreposé est moins en qualité et quantité que celui présent dans les combustibles UOx³ avant retraitement. La pratique du MOx nuit donc à la constitution du stock de combustible nécessaire au déploiement d'un parc futur de RNR. De plus les combustibles MOx irradiés sont environ 5 fois plus radioactifs que les combustibles UOx irradiés, ce qui rend leur entreposage et, surtout, leur stockage éventuel en site géologique plus difficile.

Avantages du MOx thorium-plutonium

Actuellement un REP MOx Uranium-Plutonium incinère environ 650 kg de Plutonium par an (pour la simplicité du raisonnement, on suppose ici un REP complètement MOxé alors qu'en réalité les REP ne sont MOxés que pour le tiers de leur chargement). Un REP MOx totalement chargé en Thorium-Plutonium devrait produire environ 280 kg d'Uranium 233 par an, tout en incinérant environ 800 kg de Plutonium. La production d'actinides mineurs serait réduite d'environ 20 %. Par contre la qualité du Plutonium au déchargement serait légèrement dégradée. Les résultats obtenus sont résumés dans le Tableau 1.

L'inventaire d'un surgénérateur de 1 GWe à neutrons

Noyau	Chargement kg/8TWhe	Production MOx kg/8TWhe	Production MOxTh kg/8TWhe	Facteurs de qualité	Qualité Pu MOx	Qualité Pu MOxTh
U233	0	0	278,72			
Pu239	1008	-500	-650	Pu239/Am	3,65467626	3,65467626
PU TOTAL	1900	-544	-800	Pu239/(Putot-Pu239+Am)	0,51469098	0,41579559
A.M.	0	139	119			

Tableau 1 - Comparaison des performances des combustibles MOx et MOx thoriés. (Résultats d'un calcul simplement indicatif)

rapides Uranium-Plutonium est d'environ 7 tonnes. Celui d'un surgénérateur de 1 GWe à neutrons thermiques Thorium-Uranium 233 serait d'environ 1,5 tonnes. L'incinération du Plutonium en REP MOx Uranium-Plutonium fait donc disparaître 9% de l'inventaire initial d'un RNR, alors que l'incinération en REP MOx Thorium-Plutonium fait apparaître environ 18% de l'inventaire d'un breeder Thorium-Uranium 233. On n'hypothèque donc plus le développement d'un parc de surrégénérateurs. De plus le Plutonium n'étant plus créé à partir de l'Uranium, la quantité nette de Plutonium incinéré augmenterait d'environ 150 kg. La Figure 3 illustre les considérations ci-dessus dans le cas d'un fonctionnement d'un parc de réacteurs REP partiellement chargé en combustibles MOx thoriés (on

suppose que tout le Plutonium produit dans les combustibles UOx est recyclé sous forme de MOx thorié). On constate sur la figure que le nombre de surgénérateurs Thorium-Uranium excède significativement le nombre de surgénérateurs Uranium-Plutonium "perdus" du fait de l'incinération du Plutonium. Rappelons qu'une des raisons qui a disqualifié les surgénérateurs Thorium-Uranium par rapport aux surgénérateurs Uranium-Plutonium était, précisément, l'absence d'un stock d'Uranium 233 alors que les réacteurs PWR, BWR à eau lourde et à modérateur graphite produisaient de grandes quantités de Plutonium. L'utilisation de combustibles MOx Thorium-Plutonium changerait complètement le panorama. De plus, en l'absence d'un programme surgénérateur, l'Uranium 233

pourrait être brûlé dans des réacteurs standard sans production importante de Plutonium ou d'actinides mineurs.

Conclusion

Il serait regrettable que des orientations trop hâtivement décidées et en absence de véritable débat scientifique et technique concernant les réacteurs et cycles du futur soient prises sous prétexte que d'autres orientations seraient trop éloignées des pratiques actuelles. Il n'y a pas de véritable urgence à définir les systèmes du futur et la période se prête donc à une réflexion approfondie et ouverte. Certes les études "papier" ne suffisent pas et il est nécessaire que des maquettes de petite dimension de réacteurs prometteurs soient réalisées dans le cadre de collaborations internationales. C'est ainsi qu'il serait très intéressant de reprendre le programme sur les réacteurs à sel fondu initié dans les années 60 par le laboratoire d'Oak Ridge en réalisant une maquette de quelques dizaines de MW. De même, aucune raison valable ne devrait s'opposer à l'irradiation en réacteur de quelques assemblages combustibles MOx thoriés. Enfin la France devrait proposer une collaboration au Canada et à l'Inde pour évaluer les potentialités des réacteurs CANDU vis-à-vis du cycle thorium-uranium 233.

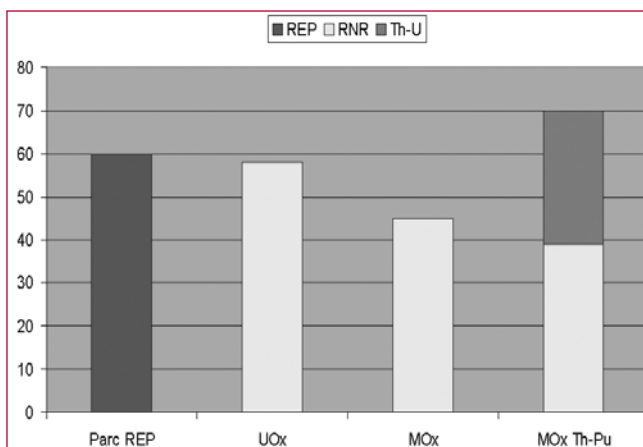


Fig. 3 - Nombre de surgénérateurs susceptibles d'être démantés après 40 ans de fonctionnement d'un parc REP de 60 GWe.

3 Les combustibles UOx sont initialement composés d'oxyde d'Uranium faiblement enrichi. Après irradiation ils contiennent de produits de fission, du plutonium et des actinides mineurs (neptunium, americiem, curium). Le retraitement consiste à en extraire le plutonium et l'uranium et à insérer les autres éléments dans des matrices en verre. A mesure que les taux d'irradiation croissent la proportion d'isotopes fissiles du plutonium (surtout le plutonium 239) diminue au profit d'isotopes non fissiles (surtout le plutonium 240), ce qui est un avantage sur le plan de la prolifération nucléaire mais un inconvénient pour l'utilisation en réacteur.