



PLUTONIUM ET COMBUSTIBLE MOX

Jean-Claude ZERBIB, André GUILLEMETTE¹ et Bernard LAPONCHE

12 février 2021

*

1. LE PLUTONIUM

Le plutonium est un élément chimique de numéro atomique 94 et de symbole "Pu" qui n'existe dans la nature qu'en quantités infimes et qui est produit en quantités importantes dans le cœur des réacteurs nucléaires, à partir de l'uranium (numéro atomique 92 et symbole U).

Le plutonium produit dans les réacteurs est constitué d'un ensemble d'isotopes. Les uns, les plutoniums 239, 240, 241, 242, 243 (symbolisés par : Pu^{239} , Pu^{240} , Pu^{241} , Pu^{242} , Pu^{243}) sont produits à partir de la capture d'un neutron par un noyau d' U^{238} et les isotopes Pu^{236} et Pu^{238} sont produits à partir de l' U^{235} .

Comme l' U^{235} , les Pu^{239} et Pu^{241} sont fissiles et contribuent à la réaction en chaîne dans le réacteur au fur et à mesure de leur création.

2. PRODUCTION DU PLUTONIUM

À la fin de leur utilisation dans le réacteur nucléaire d'une centrale électrique (après trois ans environ), les combustibles irradiés sont stockés sous eau dans des « piscines » situées à proximité des réacteurs. Ils sont constamment refroidis par circulation d'eau afin d'évacuer la chaleur produite par la radioactivité des produits de fission et des transuraniens qu'ils contiennent (dont les principaux : le Pu^{238} et le Cm^{244}).

La solution adoptée dans la majorité des pays équipés de centrales nucléaires (États-Unis, Allemagne, Suède, Corée du Sud...) est de garder les combustibles irradiés en l'état, de les laisser dans les piscines de stockage, et 3 à 4 ans plus tard éventuellement dans des sites

¹ L'ingénieur André GUILLEMETTE, membre et militant de Global Chance et de l'ACRO, est décédé en novembre 2019. Il a écrit plusieurs articles seul ou avec Jean Claude ZERBIB sur les problèmes posés par le retraitement des combustibles, les déchets qu'il produit et l'ampleur des problèmes du MOX qui sont cachés derrière le recyclage du plutonium, une pseudo économie de matière première qui se paye en final très cher.

de stockage à sec lorsque leur radioactivité et la chaleur qu'ils dégagent auront suffisamment diminué (puissance $\leq 2\text{kW}$ par assemblage) [IRSN 2018].

En France (La Hague) et en Russie (Ozersk) par contre, le plutonium est extrait des combustibles irradiés dans une usine dite de "retraitement", les seules en fonctionnement dans le Monde, depuis l'arrêt de Sellafield au Royaume-Uni en novembre 2012 et de THORP (*Thermal Oxide Reprocessing Plant*) fermée en 2018. Les usines de La Hague (UP2-800 et UP3) retraitent essentiellement des combustibles des centrales d'EDF, mais aussi, surtout dans le passé, des combustibles "étrangers" (Allemagne, Belgique, Japon², Pays Bas et Suisse).

A La Hague, de 1977 à 1995, il a été retraité pour ces cinq pays 512 tonnes de combustibles irradiés dans l'usine UP2-800 puis 9683 tonnes de 1999 à 2016, dans l'usine UP3.

Depuis la loi du 28 juin 2006, qui a modifié et complété le code de l'environnement, les contrats de retraitement de combustibles irradiés doivent faire préalablement l'objet d'accords intergouvernementaux (sur la période 2007-2017). De tels accords, qui font ensuite l'objet d'un décret, ont été signés entre la France et l'Italie (222 tonnes, 2007), les Pays-Bas (122 t, 2010 et 2013), la Belgique (196 t, 2014) et l'Australie (0,55 t, 2018).

Fin 2019, selon Orano, ce sont 36 502 tonnes de combustibles usés des réacteurs de type eau légère qui ont été retraitées à la Hague, dont environ 71 % pour EDF, 15 % pour des clients allemands, 8 % pour des clients japonais³, et le reste principalement pour des clients belges, suisses, néerlandais et italiens [ORANO 2020].

3. UTILISATION DU PLUTONIUM

La technique du retraitement consiste à séparer par voie chimique les trois grands composants du combustible irradié : uranium, plutonium et l'ensemble des produits de fission et des transuraniens autres que le plutonium, les actinides mineurs. Après être extraits simultanément de la solution de dissolution des combustibles irradiés, l'uranium et le plutonium sont séparés. Cette technique a été historiquement développée durant la seconde guerre mondiale pour la production de plutonium à des fins militaires (la "bombe atomique", également développée avec de l'uranium 235 obtenu par "enrichissement" en ²³⁵U de l'uranium naturel).

Puis la production de plutonium a été poursuivie et amplifiée pour fournir du combustible à la filière des "surgénérateurs" : Rapsodie, Phénix et Superphénix en France.

En parallèle à cette utilisation, un nouveau combustible a été imaginé pour se substituer au combustible classique à uranium enrichi en U²³⁵ (3,7% contre 0,71% dans l'uranium naturel) dans les réacteurs à eau ordinaire et uranium enrichi (PWR et BWR).

Ce nouveau combustible est appelé MOX (mélange d'oxydes d'uranium et de plutonium : UO₂-PuO₂) qui contient de l'uranium appauvri en U²³⁵ et du plutonium.

L'utilisation de combustibles MOX dans les réacteurs d'EDF a débuté en 1987 [IRSN 2013]. En 2021, elle concerne 22 réacteurs sur les 32 réacteurs de 900 MW en fonctionnement (voir annexe 1).

La teneur moyenne en plutonium des combustibles MOX neufs a varié de 5,3 % à 7,08 % (ce pourcentage est variable suivant la position de l'assemblage dans le cœur). Depuis

² Voir Annexe 3.

³ Le 31 juillet 2018, la Commission japonaise de l'énergie atomique (JAEC) a publié les stocks de plutonium japonais qui représentent environ 47,2 tonnes de plutonium (à fin 2017), dont 36,7 tonnes à l'étranger (21,2 tonnes au Royaume-Uni et 15,5 tonnes en France) et 10,5 tonnes au Japon. Fin 2019 la part du Japon entreposée à La Hague était égale à 14,8 tonnes de plutonium [ORANO 2020].

2007, le taux moyen est passé à 8,65 % de Pu, afin d'équilibrer les taux de combustion UO₂ et MOX, et obtenir ainsi une gestion identique des deux types de combustible par quart de cœur.

Depuis 2017, EDF est autorisée⁴ à utiliser une teneur en plutonium plus élevée (9,08%) et en 2020 à avoir une plus grande souplesse pour la valeur des teneurs en plutonium⁵ des recharges MOX.

Superphénix ayant été définitivement arrêté et la filière abandonnée, le MOX s'est trouvé être le "débouché" pour une partie importante du plutonium produit par le retraitement. Il reste cependant des quantités importantes de plutonium entreposées à l'usine de retraitement de La Hague, qui dépassent très largement les besoins annuels des réacteurs d'EDF.

Ces réacteurs utilisent en moyenne 111 t/an de combustibles MOX⁶, avec une teneur en plutonium de 8,65% soit un besoin moyen de 9,65 tonnes de plutonium par an. Fin 2019, sur les 69 tonnes de plutonium (sous forme de PuO₂) détenues à La Hague, 54,2 tonnes appartenaient à la France, soit la quantité suffisante pour 5,6 années de fonctionnement des 22 réacteurs de 900 MW utilisant du combustible MOX, à fin 2020. Un trop-plein qui entraîne la pollution du plutonium par de l'américium 241 (isotope neutrophage) produit par la décroissance du ²⁴¹Pu.

2. ENTREPOSAGE ET STOCKAGE DES COMBUSTIBLES MOX IRRADIÉS

Les combustibles MOX neufs et irradiés sont, du fait de leur forte teneur en radionucléides émetteurs α , beaucoup plus chauds que les combustibles UO₂ classiques (deux fois plus après trois années de refroidissement, [Guillemette 2013], [IRSN 2018]). L'entreposage en piscine des combustibles MOX irradiés nécessite une compensation pour l'évaporation plus importante que celle des piscines qui contiennent des combustibles UO₂. Enfin, le temps de séjour en piscine des combustibles MOX usés est beaucoup plus long que celui des combustibles UO₂ et ces combustibles ne sont pas retraités.

Entre 1992 et 2008 les usines de La Hague ont retraité **73,21** tonnes de MOX pour des clients étrangers, alors que dans le même temps, les combustibles UO₂ concernaient 19 697 tonnes. Le retraitement des MOX n'a concerné que 0,37% de l'ensemble des combustibles retraités.

La teneur en plutonium du MOX neuf qui est égale à 8,65% est réduite à 6,66% dans le MOX irradié, soit une réduction de 1,3%. En valeur relative, seuls 23% de la charge initiale en plutonium a produit de l'énergie, ce qui montre que l'usage du MOX ne constitue pas une bonne solution pour consommer le plutonium.

Pour être transporté sur la voie publique, la puissance thermique maximale d'un combustible irradié doit être au plus égale à 6 kW, selon les agréments de transport actuels en France, ce qui correspond à un séjour d'environ 2,5 années de refroidissement dans la piscine de réacteur avant le transfert à La Hague. Cette contrainte conduit à un engorgement des piscines de réacteurs de 900 MW utilisant le MOX car la capacité de ces piscines est d'environ 2 cœurs avec une place laissée libre pour tout déchargement d'urgence du cœur

⁴ Décision n° 2017-DC-0608 de l'Autorité de sûreté nucléaire du 5 octobre 2017 relative à la gestion de combustible "Parité MOX" de certains réacteurs électronucléaires exploités par Électricité de France (EDF).

⁵ Décision n° 2020-DC-0684 de l'Autorité de sûreté nucléaire du 28 janvier 2020 relative à la variabilité des recharges de combustible pour les réacteurs nucléaires d'Électricité de France (EDF) de 900 MWe mettant en oeuvre la gestion de combustible "Parité MOX".

⁶ Valeur moyenne pour la période 2010-2016 [HCTISN 2018] page 81/101.

en fonctionnement. La réponse d'EDF à ce problème repose sur la construction d'une nouvelle piscine d'entreposage centralisé qui ne sera mise en service qu'à l'horizon 2030. A cette date, l'usine UP3 fêtera ses 40 ans, un âge avancé pour une INB, généralement une étape où l'on commencera à fixer une date d'arrêt de son activité industrielle.

Pour le stockage définitif, on estime qu'il faut entreposer 60 ans un combustible irradié à base d'uranium mais 150 ans pour un combustible MOX irradié.

La France envisage cependant de stocker à Cigéo les combustibles MOX en même temps que les assemblages UOX et URE, mais afin de ne pas dépasser les 90°C à la surface du conteneur de stockage⁷, celui des MOX ne comporterait qu'*un seul* assemblage MOX au lieu de quatre.

Il occuperait ainsi *à lui seul*, une alvéole de stockage alors que les UOX seraient groupés par quatre dans une alvéole de même dimension. Le surcoût du MOX s'exprime donc à toutes les étapes : depuis la fabrication du combustible, jusqu'à son stockage définitif une fois irradié.

De 1987 (année du 1^{er} chargement de MOX) à fin 2018, 2 140 tonnes de MOX ont été déchargées tandis que 424 t étaient chargées dans les 22 réacteurs de 900 MW [ANDRA 2020]. Ces 2 564 assemblages MOX irradiés, qui seraient stockés en l'état, prendraient plus de place que 10 000 assemblages⁸ UOX et URE.

Fin 2019, l'entreposage dans les piscines de La Hague de combustibles irradiés issus des réacteurs était de 9 883 tonnes, dont environ 1 700 tonnes de MOX. La capacité théorique de ces piscines a été portée de 12 000 à 18 000 tonnes, après renforcement de la protection neutronique des "paniers" (contenant 9 assemblages PWR) qui permet de les rapprocher les uns des autres. Mais pour des raisons techniques, notamment les espaces nécessaires aux mouvements sous eau des "paniers" de combustibles, la capacité maximale autorisée⁹ est de 13 990 tonnes. Il faut donc, pour ne pas perturber les équilibres, évacuer annuellement la quantité déchargée des cœurs, soit environ 1200 tonnes dont 1 100 tonne sont retraités.

En clair, le programme national de retraitement des combustibles irradiés à La Hague est dominé par un facteur unique : *le risque d'engorgement des piscines d'entreposage d'EDF et de La Hague*.

5. RADIOACTIVITE ET TOXICITE DU PLUTONIUM

Du fait du rôle principal du Pu²³⁹ fissile, on oublie généralement les autres isotopes. Dans le cas d'un réacteur à eau et uranium enrichi, le Pu²³⁹ représente en poids 53 % du plutonium contenu dans le combustible usé et le Pu²⁴¹ 11%, ce qui porte à 64% la proportion d'isotopes fissiles, soit près des deux tiers du plutonium total.

Si le Pu²³⁹ est sur le plan "pondéral" l'isotope majeur du plutonium produit dans le réacteur, il n'en va pas de même en termes de charge radioactive (voir annexe 2).

Tous les isotopes et composés du plutonium sont toxiques et radioactifs. La radioactivité d'une quantité de plutonium dépend de sa composition en différents isotopes, chacun ayant une "durée de vie différente et un type différent d'émission de particules"¹⁰.

⁷ L'ANDRA a retenu de limiter la température à 90°C au contact de la roche ou de la barrière ouvragée [ANDRA 2005], page 55/497.

⁸ Après un refroidissement de 60 ans, le conteneur des 4 combustibles UOX dégagera une puissance thermique de 1 600 W et celui de l'assemblage MOX, après 90 ans de refroidissement, dissipera 1 100 W [ANDRA 2005], page 146.

⁹ Orano La Hague fait valoir ses arguments, La Presse de la Manche, 12 octobre 2018.

¹⁰ Les isotopes du plutonium sont des émetteurs alpha à 100% à l'exception du plutonium 241 qui est un émetteur bêta pratiquement "pur" (émission supplémentaire alpha de 2,3 millièmes de %).

Ainsi, le Pu²³⁹ a une "demi-vie" ou "période" (temps au bout duquel la moitié de la quantité initiale de cet isotope s'est transformée) de 24 110 ans, tandis que celle de Pu²⁴¹ est de 14,33 ans et celle de Pu²³⁸ de 87,74 ans [CEA 2014].

Dans le plutonium couramment produit dans les réacteurs des centrales nucléaires, la radioactivité¹¹ provient surtout de Pu²⁴¹ (émetteur "bêta", électrons) et de Pu²³⁸ (émetteur "alpha", noyau d'hélium). De plus, le Pu²⁴¹ se transforme en américium 241, émetteur "alpha" de 432,6 ans de demi-vie¹². L'activité massique très élevée du plutonium 238 produit, par absorption des "alpha" dans le combustible, un fort dégagement de chaleur.

Dans les espaces de travail professionnel des usines de retraitement, la nature chimique du plutonium va varier en fonction des étapes de son extraction et de ses traitements (nitrate, Pu-TBP, PuO₂). L'inhalation sous forme d'aérosols et leur pénétration dans le poumon profond va dépendre de leur diamètre aérodynamique moyen¹³ et de leur densité. Une fraction des particules inhalées est remontée le long de la trachée puis, arrivée au carrefour aéro-digestif, bascule dans le système digestif où elle est en très grande partie éliminée par voie fécale¹⁴.

Les particules de plutonium s'oxydent très rapidement dans l'air et celles qui pénètrent dans le système respiratoire sont généralement sous forme d'oxyde de plutonium insoluble. Quand ces particules de plutonium sont inhalées, elles irradient directement les cellules du poumon, au contact de l'aérosol déposé. Elles sont ensuite solubilisées lentement au niveau des poumons avec une *période biologique*¹⁵ d'environ 500 à 1000 jours. Dans le cas d'une ingestion, la fraction du plutonium qui passe dans le sang est très faible ($f = 5 \cdot 10^{-4}$ environ). Elle dépend de la solubilité chimique sous laquelle se trouve le plutonium¹⁶.

Une fois passée la barrière intestinale, le plutonium inhalé ou ingéré est alors dans le sang circulant et peut se déposer dans divers organes. Il se fixe principalement (80%) sur deux d'entre-eux : les *surfaces osseuses* du squelette et le *foie* avec des taux de rétention égaux respectivement à environ 50% et 30%. La période biologique d'élimination du plutonium (élimination de 50% de la charge radioactive de l'organe considéré) est en moyenne de l'ordre de 50 ans au niveau osseux et d'environ 20 ans au niveau hépatique. Le plutonium parvenu dans ces organes peut donc affecter l'ADN et provoquer des cancers, si la répartition des particules dans l'organe considéré est assez grande.

Pour ces raisons, les installations industrielles traitant du plutonium (usines de retraitement, usines de fabrication de combustibles au plutonium, transports de plutonium) nécessitent des barrières de protection adaptées aux risques présentés par les aérosols (dépressions, filtration) et par les rayonnements (béton, hublots de verre au plomb, pour se protéger des émissions de rayonnements "gamma" et matériaux neutrophages pour les "neutrons"

¹¹ Le becquerel (Bq) est l'unité de mesure de l'activité d'une source de rayonnements. 1 Bq correspond à une désintégration de noyau par seconde. Cette unité est très petite et on utilise couramment ses multiples, dont le téraBecquerel (TBq : 10¹² Bq ou mille milliards de becquerels).

¹² Voir Annexe 2.

¹³ Les aérosols ne sont ni sphériques ni tous de même dimensions, mais il est possible de définir le diamètre de particules sphériques qui auraient un comportement hydraulique équivalent. Il est appelé le *diamètre aérodynamique moyen*.

¹⁴ La surveillance biologique des travailleurs exposés à la contamination par des aérosols de plutonium est assurée par la mesure de la charge radioactive des selles ; ce qui permet d'évaluer l'activité incorporée.

¹⁵ La *période biologique* d'un radionucléide, c'est le temps mis par la charge radioactive d'un organe ou de l'organisme entier pour diminuer de moitié. Dans le cas de la période biologique d'un organe le départ du radionucléide se fait par voie sanguine et une fraction de ce qui a été relargué pourra être à nouveau mobilisé.

¹⁶ Les composés chimiques sous lesquelles se trouvent les substances radioactives sont dans la réglementation, classés comme étant de type F (rapidement transférable), de type M (moyennement transférable) ou de type S (très peu transférable). La radiotoxicité d'un radionucléide augmente en passant de F à M et de M à S.

(neutrons qui proviennent des réactions nucléaires dans l'oxyde de plutonium qui est la matière ouvragée).

En termes de radioprotection des personnes du public, la limite de dose annuelle, fixée par les autorités de radioprotection (1 millisievert par an) peut se traduire en limite d'incorporation du plutonium par voie respiratoire ou digestive en utilisant les différents facteurs de dose qui s'expriment en sievert¹⁷ par becquerel inhalé ou ingéré.

Ce calcul donne, pour un adulte du public exposé à l'inhalation de Pu²³⁹, environ 9/1000^{ème} de millièmième de gramme (9/1000^{ème} de microgramme). Pour un bébé de moins d'un an la dose engagée de 1 mSv est atteinte avec l'inhalation de 5/1000^{ème} de millièmième de gramme (ou 5 nanogrammes)¹⁸.

6. RISQUES ACCRUS DU FAIT DU MOX, EN FONCTIONNEMENT ET EN CAS D'ACCIDENT

Un combustible MOX ("neuf") est composé d'environ 8,65% de plutonium issu du retraitement des combustibles irradiés et de 91,35% d'uranium appauvri. L'activité "alpha-bêta" du MOX est complètement dominée par celle du plutonium qui comporte cinq isotopes émetteurs α et un seul isotope émetteur β (le Pu²³¹).

L'activité "alpha" est, elle, dominée par celle du Pu²³⁸, tandis que l'activité totale est essentiellement constituée par l'activité bêta du Pu²⁴¹ (voir Annexe 2). L'activité de 1kg de MOX (environ 38 TBq) est 1,7 million de fois plus importante que celle d'un kg d'uranium naturel (environ $2,28 \cdot 10^{-5}$ TBq).

a) Du fait de sa plus grande radioactivité alpha, un élément neuf de combustible MOX a une température de surface (paroi de la gaine du combustible) de 80 degrés, alors qu'un combustible neuf à l'uranium est à la température ambiante. Le maniement des combustibles neufs MOX nécessite donc des équipements particuliers. La présence de combustibles MOX dans un réacteur nucléaire (en général un tiers ou un quart du chargement total) rend donc la manipulation des combustibles (chargement et déchargement) plus difficile.

b) La présence de combustibles MOX dans le réacteur rend le contrôle plus délicat (combustibles de natures différentes) et réduit l'efficacité des barres de contrôle.

c) Les températures de fusion du plutonium (640°C et 2400°C pour le PuO₂) sont plus basses que celles de l'uranium (1135°C et 2 865°C pour l'UO₂).

d) En cas de détérioration et de fusion des combustibles, le risque de « criticité » (emballement de la réaction en chaîne) est plus grand car la masse critique du plutonium est le tiers de celle de l'uranium 235 (celui-ci n'étant d'ailleurs pas séparé des autres isotopes en cas de fusion et ne représentant au maximum que 3,5% de la masse totale de l'uranium du combustible UO₂).

¹⁷ En cédant de l'énergie à une quantité de matière, on délivre une dose de rayonnement *physiquement* mesurable. Si cette dose est délivrée à une personne il est possible d'évaluer l'effet biologique néfaste de cette dose au moyen d'un *calcul*, faisant intervenir des coefficients de pondérations liés à la nature du rayonnement incident et aux types de tissus et organes atteints. Le sievert (Sv) est l'unité de dose biologique utilisée pour mesurer les effets sur le corps humain de cette absorption de rayonnement (alpha, bêta, gamma, X, neutron). La valeur en sievert d'une dose de rayonnement est *calculée* à partir de l'intensité de la source de rayonnement *externe* à l'organisme ou de l'activité *incorporée* dans l'organisme (exprimée en becquerels) par voie respiratoire ou digestive.

¹⁸ Les particules alpha ont des parcours dans les tissus humains de quelques centièmes de mm. Aussi, la notion de dose, en lien avec un impact sanitaire à moyen ou long terme, n'a de sens que si la répartition de la charge radioactive est suffisamment homogène dans l'organe cible.

Ce risque de criticité peut se présenter également dans les usines de fabrication du combustible MOX ou dans les usines de retraitement¹⁹.

Ce risque est présent également dans les piscines de stockage des combustibles irradiés en cas de perte du refroidissement, détérioration et fusion de combustibles.

e) La quantité de plutonium est beaucoup plus importante dans un combustible MOX (dans un réacteur ou dans une piscine de combustibles irradiés) que dans un combustible uranium. En cas de détérioration ou de fusion du cœur ou d'explosion ou d'incendie (dans le cœur ou dans les piscines de stockage), la quantité de plutonium pouvant être projetée dans l'environnement, qu'il s'agisse d'un combustible usé ou plus encore s'il est neuf, sera donc beaucoup plus importante.

Non seulement le MOX rend le réacteur plus difficile à piloter mais encore, en cas d'accident, sa présence facilite la mise à nu des combustibles (plus de chaleur donc plus d'évaporation de l'eau), la détérioration et la fusion des combustibles (dans le réacteur lui-même et dans les piscines des combustibles irradiés) et, en cas d'émissions radioactives, ce qui a été le cas lors de l'accident de Fukushima, des particules de plutonium peuvent être dispersées dans l'environnement (terre et eau principalement).

7. BIBLIOGRAPHIE

[Amiard 2019], Amiard Jean-Claude, *Les accidents nucléaires industriels et médicaux, conséquences environnementales, écologiques, sanitaires et socio-économiques*, 302 pages, ISTE Editions, Grande Bretagne, Juillet 2019

[ANDRA 2005], ANDRA, "*Dossier 2005 Argile, Tome architecture et gestion du stockage géologique*" 497 pages, 2005.

[ANDRA 2020], ANDRA, *Inventaire national des matières et déchets radioactifs, les essentiels*, 26 pages, Janvier 2020.

[ASN 2020], ASN, "*Capacité d'entreposage des combustibles usés : le collège de l'ASN auditionne le directeur du parc nucléaire et thermique d'EDF*", Note de l'SN du 1^{er} juillet 2020.

[CEA 2014], CEA, *Périodes radioactives, Table de valeurs recommandées*, 20 pages, CEA, Laboratoire National Henri Becquerel, février 2014.

[Deluzarche 2020], Deluzarche Céline, *Rokkashô, comme une version japonaise de la centrale nucléaire de Flamanville*, 11/08/2020.

[Enerpresse 2009], Enerpresse, *Japon : report de mise en chantier d'une usine de combustible nucléaire MOX*, 25 mars 2009.

[Guillemette 2013], Guillemette A. et Zerbib JC, *Les combustibles MOX d'EDF, production et stockages, bilans 2011*, Global Chance, N° 33, pp (66-85), Mars 2013.

[HCTISN 2018], HCTISN, *Présentation du "Cycle du combustible français" en 2018*, 101 pages, 27 juillet 2018 (Mise à jour du 21 septembre 2018).

[IRSN 2013], IRSN, *Le combustible MOX en France*, février 2013.

[IRSN 2018], IRSN, *Entreposage du combustible nucléaire usé : concepts et enjeux de sûreté*, Rapport IRSN n°2018-00003, Juin 2018.

[ORANO 2020], ORANO, *Traitement des combustibles usés provenant de l'étranger dans les installations d'Orano la Hague, Rapport 2019*, 52 pages, Juin 2020.

[Phan 2007], Phan G, Ribière F, Deligne J-M, Jourdain J.R, *Fiche radionucléide Plutonium, Aspects sanitaires*, 13 pages, IRSN, Fontenay aux Roses, 2007.

[WNN 2018], World Nuclear News, *Reprocessing ceases at UK's Thorp plant*, 14 November 2018.

¹⁹ Depuis 1945, il y a eu dans le monde 60 accidents de criticité dont 6 seulement après 1978, soit jusqu'au début des années 1980 plus d'un accident par an. Les trois derniers ont eu lieu à Tokai Mura, au Japon (deux en 1997 et un en 1999 qui a entraîné le décès de deux personnes), [Amiard 2019] pages 14-15 et 50-51.

Annexe 1

Les 22 réacteurs qui utilisent du combustible MOX en France²⁰

- 2 réacteurs à la Centrale nucléaire du Blayais N°1 et 2, (2 x 910 MWe net)
- 4 réacteurs à la Centrale nucléaire de Chinon N°1 à 4, (4 x 905 MWe net)
- 4 réacteurs à la Centrale nucléaire de Dampierre N°1 à 4, (4 x 890 MWe net)
- 6 réacteurs à la Centrale nucléaire de Gravelines N°1 à 6, (6 x 910 MWe net)
- 2 réacteurs à la Centrale nucléaire de St Laurent N°1 et 2, (2 x 915 MWe net)
- 4 réacteurs à la Centrale nucléaire du Tricastin N°1 à 4, (4 x 915 MWe net)

Les 2 réacteurs en attente du 1^{er} chargement MOX en France

- 2 réacteurs à la Centrale nucléaire du Blayais N°3 et 4, (2 x 910 MWe net), autorisation par l'arrêté du 28 mai 2013.

²⁰ <https://www.edf.fr/sites/default/files/contrib/groupe-edf/producteur-industriel/notes-d-informations/note20cycle20combustible202013.pdf>

Annexe 2

Calcul des activités comparées Uranium naturel (U_{nat}) et MOX

Activité massique, exprimée en becquerel par gramme, des isotopes de l'uranium naturel

Isotope	U 234	U 235	U 238
Période (10 ⁶ an)	0,2455	704	4 468
Bq/g	2,30.10 ⁸	8,0.10 ⁴	1,244.10 ⁴

L'uranium est un élément naturel constitué de trois isotopes : les ²³⁴U et ²³⁸U qui sont à l'équilibre et l'²³⁵U. Dans une masse donnée d'uranium naturel, les activités des ²³⁸U et ²³⁴U sont donc égales, mais leurs masses respectives, très différentes, sont dans le rapport inverse de leur activité massique (la masse de l'²³⁴U est 18 200 fois plus petite que celle de l'²³⁸U).

Du point de vue pondéral, c'est l'isotope 238 qui constitue la quasi-totalité de la masse de l'uranium naturel (99,29%). Nous calculons donc, pour 1 g d'uranium naturel, l'activité de l'isotope ²³⁸U qui est égale à celle de l'²³⁴U. Pour obtenir l'activité de l'uranium naturel, il suffit alors d'ajouter aux activités de ces deux isotopes à l'équilibre, celle l'activité de l'²³⁵U.

Activité d'1 g d' U_{nat} :

$$= 2 \times (0,99287 \text{ g d}'^{238}\text{U} \times 1,244.10^4) + (0,713.10^{-2} \text{ g d}'^{235}\text{U} \times 8,0.10^4) = 2,527.10^4 \text{ Bq/g.}$$

Soit pour 1kg d' U_{nat} = 2,527.10⁷ Bq ou 2,527.10⁻⁵ TBq.

Pour fabriquer du MOX, l'on utilise de l'uranium appauvri et du plutonium issu du retraitement des combustibles irradiés d'un réacteur, chargé initialement en combustible à uranium (enrichi à 3,7%).

En prenant les compositions isotopiques du plutonium calculées pour un taux de combustion de 45 GWj/t_{MLi} et 3 années de refroidissement [Guillemette 2013], nous pouvons estimer l'activité d'un kg de ce plutonium :

Répartition pondérale moyennes annuelles en kg par tonne retraitée

Radionucléide	Période années	Activité TBq/t _{MLi}	Activité %	Masse g/t _{MLi}	Masse %
²³⁶ Pu α	2,87	0,022	0,0005	1,12.10 ⁻³	1.10 ⁻⁵
²³⁸ Pu α	87,74	208,8	4,70	335	2,99
²³⁹ Pu α	24 100	13,4	0,30	5 914	52,75
²⁴⁰ Pu α	6 561	23,5	0,53	2 885	25,73
²⁴¹ Pu β	14,33	4 196	94,47	1 221	10,89
²⁴² Pu α	3,73.10 ⁵	0,13	0,003	857	7,64
Total Pu	-	4 441,85	100	11 212	100

Taux de combustion 45 GWj/t_{MLi}, UO₂ enrichissement initial en ²³⁵U : 3,7 %, activité en TBq/ t_{MLi},

Composition de 1kg de Pu : 29,9 g de ²³⁸Pu + 527,5 g de ²³⁹Pu + 257,3 g de ²⁴⁰Pu + 108,9g de ²⁴¹Pu et 76,4 g de ²⁴²Pu.

Avec l'activité massique des différents isotopes du plutonium, nous pouvons calculer l'activité d'un kg de ce plutonium

Radionucléide	Période années	Activité massique Bq/g
²³⁶ Pu α	2,87 ± 0,01a	1,9535.10 ²³
²³⁸ Pu α	87,74 ± 0,03 a	0,6336.10 ¹²
²³⁹ Pu α	24 100 ± 11 a	2,294.10 ⁹
²⁴⁰ Pu α	6561 ± 7 a	0,840.10 ¹⁰
²⁴¹ Pu β	14,33± 0,04 a	3,8314.10 ¹²
²⁴² Pu α	(3,73±0,03)10 ⁵ a	1,4658.10 ⁵

Activité de 1 kg de Pu :

$$= (29,9 \times 6,3336.10^{11}) \text{ Bq} + (527,5 \times 2,294.10^9) \text{ Bq} + (257,3 \times 8,40.10^9) + (108,9 \times 3,8314.10^{12}) + (76,4 \times 1,4658.10^8) = \text{Bq}$$

$$= (18,937 + 1,21 + 2,161 + 417,24 + 0,011) \times 1.10^{12} = 439,56.10^{12} \text{ Bq, soit } \mathbf{440 \text{ TBq}}$$

Si l'on admet que le MOX est composé de 8,65% de Pu et de 91,35% d'uranium appauvri, l'activité de 1kg de MOX sera de $440.10^{12} \times 0,0865 = 38,06.10^{12}$ + l'activité de l'uranium appauvri dont la valeur (de l'ordre de $2,5.10^7 \times 0,9135 = 2,28.10^7$) est 1,67 million de fois plus faible L'activité du MOX est donc complètement dominée par celle du plutonium tout seul et l'activité alpha par celle du ²³⁸Pu.

L'activité totale du combustible MOX ("neuf") est essentiellement constituée par l'activité bêta du ²⁴¹Pu.

L'activité de **1kg de MOX (environ 38TBq) est plus d'un million de fois plus importante que celle d'un kg d'uranium naturel (environ 2,5 10⁻⁵ TBq).**

Toxicologie du plutonium

Isotope	Inhalation		Ingestion	
	≤ 1 an	≥ 17 ans	≤ 1 an	≥ 17 ans
²³⁶ Pu	4,8.10 ⁻⁵	2,0.10 ⁻⁵	2,1.10 ⁻⁶	8,7.10 ⁻⁸
²³⁸ Pu	7,8.10 ⁻⁵	4,6.10 ⁻⁵	4,0.10 ⁻⁶	2,3.10 ⁻⁷
²³⁹ Pu	8,0.10 ⁻⁵	5,0.10 ⁻⁵	4,2.10 ⁻⁶	2,5.10 ⁻⁷
²⁴⁰ Pu	8,0.10 ⁻⁵	5,0.10 ⁻⁵	4,2.10 ⁻⁶	2,5.10 ⁻⁷
²⁴¹ Pu	9,1.10 ⁻⁷	9,0.10 ⁻⁷	5,6.10 ⁻⁸	4,8.10 ⁻⁹
²⁴² Pu	7,6.10 ⁻⁵	4,8.10 ⁻⁵	4,0.10 ⁻⁶	2,4.10 ⁻⁷

Les facteurs de dose sont en sievert par becquerel (Sv/Bq)

Ces données montrent que :

- les toxicités des isotopes émetteurs alpha du plutonium sont voisines à l'exception de celles du ²⁴¹Pu qui est émetteur bêta. Pour les deux âges et les deux modes d'expositions, la toxicité du ²⁴¹Pu est en moyenne 68 fois plus faible que celles des autres isotopes.
- La toxicité dans le cas de l'inhalation est significativement supérieure à celle de l'ingestion : dans un rapport égal à 19 pour le bébé de moins d'un an et un rapport 203 pour un adulte.
- Une dose engagée de 1 mSv par inhalation est atteinte par un adulte avec 20 Bq de ²³⁹Pu (ou 8,7 nanogrammes de ²³⁹Pu) et 12,5 Bq pour un bébé de moins d'un an (5,4 nanogrammes).

Par ingestion, la dose de 1 mSv est atteinte avec 4000 Bq (1,74 microgramme) pour un adulte et 238 Bq (0,1 µg) pour un bébé.

Annexe 3

Le retraitement des combustibles irradiés et le MOX au Japon

Après le démarrage d'une usine de retraitement pilote d'une capacité de 100 t/an (Tokai Mura) en 1977, le Japon devait également démarrer à Rokkashô une usine de retraitement en construction depuis avril 1993 par JNFL (*Japan Nuclear Fuel Limited*), un groupe formé par les dix grands électriciens du pays, avec l'appui industriel d'AREVA.

La construction de l'usine a connu de nombreux retards et son coût a été multiplié par 3,8 (de 760 à 2 900 milliards de yens, soit 23,26 milliards d'€) entre le coût initial de 1993 et 2020 [Deluzarche 2020].

Les premiers tests de retraitement ont démarré en avril 2006.

Les reports de démarrage se sont multipliés (en 2020, le démarrage a connu son 24^{ème} report).

JNFL avait pour objectif d'achever sa construction au cours du premier semestre de l'exercice 2022 (se terminant en mars 2023), mais s'attend maintenant à ce que cela se produise au premier semestre de l'exercice 2024.

Ce complexe industriel produirait du combustible MOX à partir du plutonium fourni par l'usine de retraitement (1200 t/an). La construction de l'usine MOX qui devait démarrer en octobre 2007 a commencé fin 2010, mais la fabrication du MOX pose problème. Cette dérive de calendrier est due à diverses mesures de précaution supplémentaires visant à renforcer les dispositifs parasismiques prévus [Enerpresse 2009].

Seuls **quatre** réacteurs japonais sont aujourd'hui capables de fonctionner au MOX, loin des seize à dix-huit planifiés avant la catastrophe de Fukushima [Deluzarche 2020].

Avec ses quelques 45 tonnes de plutonium actuelles, presque autant que la France (54,2 t) qui, avec **vingt** réacteurs de 900 MW équipés pour recevoir du MOX, a un trop-plein de plutonium, le Japon a de bonnes raisons de s'interroger sur l'utilité de poursuivre la réalisation d'une usine de retraitement et de fabrication de combustibles MOX.