

DPh - PFC - DIR

EUR - CEA - FC - 723

ETUDE SUR LA DESTRUCTION PAR TRANSMUTATION
NEUTRONIQUE DES RESIDUS RADIOACTIFS PROVENANT
DU TRAITEMENT DES COMBUSTIBLES IRRADIES

D. BRETON

Décembre 1973

ETUDE SUR LA DESTRUCTION PAR TRANSMUTATION NEUTRONIQUE
DES RESIDUS RADIOACTIFS PROVENANT DU TRAITEMENT
DES COMBUSTIBLES IRRADIES

D. BRETON

Département de la Physique du Plasma
et de la Fusion Contrôlée

Décembre 1973

REMERCIEMENTS

L'auteur tient à remercier M. VIDAL et M. BOUCHARD, du Département de Physique des Réacteurs et de Mathématiques Appliquées, pour les discussions qu'il a eues avec eux et de l'aide qu'ils lui ont apportée. Ce travail a été fait en collaboration avec eux, en particulier pour les travaux de neutronique.

ETUDE SUR LA DESTRUCTION PAR TRANSMUTATION NEUTRONIQUE
DES RESIDUS RADIOACTIFS PROVENANT DU TRAITEMENT
DES COMBUSTIBLES IRRADIES

- I - INTRODUCTION
- II - PRINCIPE
- III - LA PRODUCTION DES ELEMENTS RADIOACTIFS RESIDUELS
LORS DU TRAITEMENT DES COMBUSTIBLES IRRADIES
- IV - DECROISSANCE DES ELEMENTS RADIOACTIFS RESIDUELS
- V - LA SEPARATION ET LA TRANSMUTATION DU Cs¹³⁷ ET Sr⁹⁰
- VI - LES POSSIBILITES DE TRANSMUTATION DANS LES REACTEURS
NUCLEAIRES
- VII - TRANSMUTATION DU Kr⁸⁵
- VIII - LES ACTINIDES
- IX - CONCLUSION

R E S U M E

Le développement accéléré du programme de construction de centrales électronucléaires va s'accompagner d'une production importante de résidus radioactifs. Les études sur le stockage de ces résidus ont abouti à des solutions qui offrent des garanties techniques satisfaisantes à court et moyen termes, et qui paraissent d'un coût suffisamment bas pour ne pas pénaliser abusivement les bénéficiaires actuels de l'énergie nucléaire.

Certaines études ont été entreprises aux USA en vue d'examiner des possibilités autres que le stockage. Il s'agit en particulier de la destruction des résidus radioactifs les plus nocifs par transmutation neutronique.

La décroissance des résidus radioactifs fait apparaître que

- après une période de l'ordre de quelques années, le Cs¹³⁷ et le Sr⁹⁰ ayant une période de 30 ans et de 28 ans respectivement, sont les deux éléments dominants ; leur transmutation neutronique en des éléments stables réduit notablement (1/2 environ) la nocivité des résidus radioactifs à moyen terme (quelques centaines d'années) ;
- à très long terme (plusieurs milliers d'années) le rôle des actinides est dominant ; on peut envisager de les recycler dans les réacteurs comme c'est le cas pour le plutonium.

Les réacteurs à eau, tels que ceux utilisés actuellement pour la production d'énergie électrique, présentent peu d'intérêt pour la transformation des résidus (sauf le cas particulier du Kr⁸⁵ qui mériterait une étude plus approfondie).

Les réacteurs à neutrons rapides offrent des perspectives plus intéressantes, en particulier pour les actinides.

Les possibilités les meilleures sont celles qu'offrirait les réacteurs thermonucléaires de l'avenir. Le raison de cet intérêt est le flux élevé de neutrons de 14 MeV produit par ces installations et, à

puissance égale, produisent 7 fois plus de neutrons que les réacteurs à fission .

La transmutation neutronique n'apporte pas un remède général aux problèmes que pose l'abondance des résidus radioactifs, tout au plus peut-elle contribuer à une réduction de la quantité des éléments les plus nocifs dont le stockage est le plus coûteux.

Il ne s'agit que d'études préliminaires, qui devront faire l'objet de travaux complémentaires dans les domaines scientifiques (sections efficaces, rendement de fission), techniques (extraction et séparation chimique), économique (coût des opérations de transmutation et d'irradiation comparé au coût de stockage à long terme), sûreté (manipulation de grandes quantités de produits fortement radioactifs), mais les principes mis en œuvre paraissent valables, de sorte qu'il est satisfaisant de penser qu'outre le stockage des résidus radioactifs aussi excellent soit-il, il existe éventuellement des solutions de rechange auxquelles il pourra être fait appel en temps utile.

.../...

I - INTRODUCTION -

Le développement accéléré du programme de construction de centrales électronucléaires va s'accompagner d'une production importante d'éléments radioactifs apparaissant lors du retraitement des combustibles irradiés qu'il faudra stocker. Des difficultés particulières apparaissent en ce qui concerne ces résidus radioactifs, le stockage doit être prévu pour plusieurs centaines d'années, en outre l'opinion publique est particulièrement sensible aux conséquences sur l'environnement, enfin les critères de choix permettant de dégager les techniques les plus acceptables font couramment appel à la rentabilité (et donc au taux d'actualisation) ; de tels critères n'ont plus aucun sens pour des durées aussi longues. Les méthodes d'analyse économique, du type coût-avantage ou coût-efficacité, et plus généralement celles qui sont retenues dans les études de rationalisation de choix des programmes, sont de peu de valeur pour définir ce que la société actuelle est prête à investir présentement en vue de prémunir les populations à venir dans plusieurs générations contre des risques d'ampleur d'ailleurs difficiles à définir.

Les études sur les stockages de résidus entreprises depuis de nombreuses années, ont abouti à des solutions qui offrent des garanties techniques satisfaisantes à court et à moyen termes, et qui paraissent être d'un prix suffisamment bas pour ne pas trop pénaliser les bénéficiaires actuels de l'énergie nucléaire. Les besoins futurs d'énergie paraissent tellement grands, que le recours massif aux centrales électronucléaires est indispensable. Le problème posé par les résidus radioactifs paraît suffisamment important pour que des études aient été entreprises à l'étranger, notamment aux U.S.A., afin d'envisager des solutions autres que le stockage, aussi excellent soit-il. Plusieurs idées originales ont été proposées :

.../...

- l'une concerne l'envoi dans l'espace ou sur des planètes voisines des résidus les plus difficiles à stocker ;

- l'autre est relative à l'enfouissement tectonique dans les couches très profondes de la terre, en utilisant les mouvements géologiques à long terme pour favoriser cet enfouissement.

- enfin, une autre éventualité, concerne la transmutation neutronique des éléments les plus nocifs, pour les transformer en éléments stables.

Cette dernière idée est analysée succinctement dans cette note.

../. ..

II - PRINCIPE -

La nocivité des résidus radioactifs dépend de leur schéma de désintégration et de leur période, qui sont l'un et l'autre des caractéristiques spécifiques des noyaux constituant ces résidus.

Pour essayer de réduire cette nocivité, il a été envisagé de procéder à une irradiation neutronique des noyaux les plus actifs, en vue de leur transformation en d'autres noyaux ayant des caractéristiques nucléaires moins contraignantes.

On peut, par exemple, songer à transformer un noyau radioactif de longue période en un noyau stable.

Les résidus radioactifs sont essentiellement constitués par

- les déchets provenant de l'irradiation neutronique des éléments de structure des réacteurs, en particulier les gaines métalliques des éléments de combustible;
- les produits de fission ;
- les radioéléments formés lors de l'irradiation neutronique du combustible, tels que les transuraniens, les transplutoniens et plus généralement les actinides. On désignera par ce terme tous les éléments de $Z \geq 94$.

Les résidus proviennent en très large majorité des usines de retraitement du combustible irradié dans les réacteurs nucléaires; il ne peut être envisagé de réirradier l'ensemble de ces produits sans discernement pour les deux raisons suivantes :

a) - Le taux de formation de nombreux radioéléments correspond à un équilibre entre le taux de disparition par capture neutronique ou par décroissance radioactive, et le taux de formation par fission ou par filiation. Une irradiation supplémentaire ne modifierait cet équilibre que si on envisageait des valeurs de flux de neutrons très intenses et à très haute énergie

b) - Certains éléments formés sont stables, soit qu'ils possèdent cette stabilité dès leur création, soit qu'ils deviennent stables après décroissance de leur antécédant. Sous l'influence d'une irradiation neutronique supplémentaire, ils risqueraient de devenir radioactifs, ce qui va à l'encontre du résultat recherché.

La transmutation radioactive des résidus conduit à envisager en premier lieu, la séparation des produits les plus nocifs de l'ensemble des résidus, puis ultérieurement leur irradiation. Cette idée est mise à profit depuis la naissance de l'énergie nucléaire pour le Plutonium 239, qui s'il n'était pas fissile, constituerait l'un des résidus les plus nocifs.

Jusqu'à présent, dans les usines de retraitement, on n'a pas cherché à séparer (sauf cas particuliers) les éléments les plus nocifs de ceux qui le sont moins. Le traitement chimique des éléments combustibles irradiés vise seulement leur mise en solution pour extraire uniquement la majeure partie de l'uranium et du plutonium (99,5 %) en vue de leur réutilisation. Cette réutilisation étant limitée au plutonium et à l'uranium enrichi.

Peut-on envisager de recycler également les autres actinides ? Peut-on également envisager de séparer les produits de fission les plus nocifs pour les transmuter au cours d'une réirradiation ? Quel serait l'intérêt de telles opérations ? Résoudraient-elles les problèmes posés par le stockage, et à quel prix ?

Pour être efficaces les méthodes de séparation doivent avoir un très bon rendement d'extraction chimique. Afin d'illustrer cette nécessité, on rappelle qu'au cours de la décroissance d'un élément radioactif pendant un temps égal à 7 fois sa période, 99 % des noyaux initiaux ont disparu ; donc, si on considère des corps dont la période est de l'ordre de 30 ans comme le ^{137}Cs ou le ^{90}Sr , et que l'on ne puisse

.../...

industriellement procéder à leur extraction qu'avec un rendement de 95 %, l'activité de la solution contenant les 5 % restants sera égale à l'activité qu'aurait eu la solution initiale 130ans plus tard.

Le coût de ces opérations chimiques est-il compensé par l'économie que procure pendant 100 ans le stockage d'un volume d'activité 20 fois plus faible ? La séparation chimique peut-elle valoriser certains produits ainsi isolés ?

La réponse à ces questions nécessiterait des travaux technico économiques qui ne semblent pas avoir été effectués.

.../...

III - LA PRODUCTION DES ELEMENTS RADIOACTIFS RESIDUELS LORS DU RETRAITEMENT DES COMBUSTIBLES IRRADIES -

Un travail important a été entrepris aux Etats-Unis, au Laboratoire d'OAK RIDGE [1], pour estimer la nature et la quantité de produits radioactifs contenus dans les éléments combustibles irradiés et dans les résidus, après retraitement.

La production des radioéléments a été calculée pour les deux types de réacteurs suivants :

- Réacteur thermique à eau légère de 1000 MWe utilisant un combustible d'oxyde d'uranium enrichi à 3,3 %, gainé Zircaloy, et atteignant un taux de combustion de 33 000 MWatts jour/tonne. Il s'agit d'un réacteur considéré aujourd'hui comme classique, type P ou BWR.

- Réacteur à neutrons rapides de 1000 MWe, utilisant comme combustible de l'oxyde mixte d'uranium et de plutonium, gainé en acier inoxydable et atteignant un taux de combustion de 80 000 MWatts jour/tonne.

Les auteurs ont déterminé la composition du combustible 90 jours après le déchargement, puis celle des résidus 1 an, 10, 100 et 1 000 ans , après le retraitement dans une usine déterminée, prise comme référence. Les auteurs indiquent également la radioactivité de ces résidus et la puissance calorifique émises lors de leur désintégration.

Les principaux résultats sont rassemblés dans le Tableau I qui présente l'activité exprimée en curies des résidus produits chaque année pour les deux types de réacteurs considérés.

.../...

TABLEAU I

Activité des résidus radioactifs produits chaque année par un réacteur thermique et un réacteur rapide de 1 000 MWe

	Radio-élément	Demi-vie	Activité en curies après une décroissance égale à				
			90 jours	1 an	10 ans	100 ans	1000 ans
Quelques fragments de fission parmi les principaux	H ₁ ³	12,5 ans	6,2.10 ⁴	6,0.10 ⁴	3,6.10 ⁴	2,2.10 ²	≈ 0
	Kr ⁸⁵	10,4 ans	1,0.10 ⁶	9,0.10 ⁵	5,4.10 ⁵	1,6.10 ³	≈ 0
	Sr ⁹⁰	28 ans	6,9.10 ⁶	6,7.10 ⁶	5,3.10 ⁶	5,8.10 ⁵	≈ 0
	Cs ¹³⁷	30 ans	9,0.10 ⁶	9.10 ⁶	7,5.10 ⁶	9,0.10 ⁵	≈ 0
	Total des fragments de fission		5,5.10 ⁸	1,8.10 ⁸	2,7.10 ⁷	3,0.10 ⁶	≈ 2.10 ³
Quelques actinides parmi les principaux	Pu ²³⁸	89 ans	1,3.10 ³	7,0.10 ³ (1,4.10 ⁴)	9,0.10 ³ (1,6.10 ⁴)	4,5.10 ³ (9,0.10 ³)	11 (85)
	Am ²⁴¹	458 ans	1,5.10 ⁴	1,5.10 ⁴ (7,0.10 ⁴)	1,5.10 ⁴ (7,0.10 ⁴)	1,4.10 ⁴ (6,0.10 ⁴)	3,6.10 ³ (1,5.10 ⁴)
	Cm ²⁴²	163 jours	1,7.10 ⁶	5,5.10 ⁵ (7,0.10 ⁵)	2,7.10 ² (3,0.10 ³)	1,8.10 ² (2,0.10 ³)	2,7 (33)
	Cm ²⁴⁴	17,6 ans	2,2.10 ⁵	2,1.10 ⁵ (5,4.10 ⁴)	1,5.10 ⁵ (3,8.10 ⁴)	5,0.10 ³ (1,2.10 ³)	≈ 0 ≈ (0)
	Total des actinides		2.10 ⁶	8,2.10 ⁵ (1,0.10 ⁵)	2,1.10 ⁵ (2,2.10 ⁵)	2,7.10 ⁴ (9,0.10 ⁴)	7,2.10 ³ (2,2.10 ⁴)
Quelques matériaux de structure	Fe ⁵⁵						
	Co ⁶⁰						
	Ni ⁶³		≈ 4.10 ⁶	≈ 9.10 ⁵	≈ 10 ³	≈ 0	≈ 0
	Zr ⁹⁵ etc...		≈ 5.10 ⁷			≈ 0	≈ 0

N.B. : les valeurs entre parenthèses se rapportent au réacteur à neutrons rapides.

(Réf. : Rapport ORNL 4451 - Avril 1970)

.../...

IV - DECROISSANCE DES ELEMENTS RADIOACTIFS RESIDUELS -

L'étude de la décroissance des résidus radioactifs en fonction du temps permet approximativement de distinguer trois périodes :

- Une période initiale dont la durée est de l'ordre de quelques années (2 à 5 environ), qui correspond à la décroissance des fragments de fission à vies courte et moyenne; aucun élément particulier ne s'y distingue des autres.

- Une période qui s'étend sur quelques centaines d'années dominée par l'activité de deux éléments particuliers : le Cs¹³⁷₅₅ et le Sr⁹⁰₃₈, dont les périodes sont respectivement de 30 et 28 ans. L'activité de ces deux éléments représente environ 30 % de l'activité totale des résidus formés après 10 ans, et 60 % après 100 ans. Après 350 ans, l'activité de ces éléments a diminué d'un facteur 100.

- Ensuite, après environ 1000 ans, l'activité résiduelle provient des actinides, et essentiellement de l'Am²⁴¹.

Ces constatations conduisent à envisager la séparation dans les usines de retraitement :

- du Cs¹³⁷ et du Sr⁹⁰, soit pour les stocker, soit pour une utilisation future (sources d'irradiation), soit éventuellement pour traitement ultérieur par transmutation ;

- de certains actinides, en particulier l'Am et le Cm pour les recycler dans les réacteurs thermiques ou rapides.

.../...

Le Tableau II, extrait d'un récent article américain 2 présente la quantité de résidus qui seront accumulés aux Etats-Unis en l'an 2000, en supposant un programme de construction de centrales nucléaires conduisant à des puissances installées de :

5 gigawatts en 1970
130 gigawatts en 1980
500 gigawatts en 1990
1 200 gigawatts en 2000

On y constate le rôle important du Sr^{90} et du Cs^{137} , et à très long terme, celui des actinides.

Enfin dans le Tableau III, on donne à titre de rappel, la nocivité radiologique de quelques éléments parmi les plus toxiques.

.../...

TABLEAU II

Activité des résidus radioactifs aux U.S.A. en l'an 2000

Radioéléments		Activité accumulée en l'an 2000 en millions de curies	Activité en millions de curies après une décroissance égale à			
			1000 ans	10 ⁴ ans	10 ⁵ ans	10 ⁶ ans
Quelques fragments de fission parmi les principaux	Sr ⁹⁰	13.10 ³	≈ 0	≈ 0	≈ 0	≈ 0
	Zr ⁹³	0,39	0,39	0,39	0,37	0,25
	Tc ⁹⁹	2,9	2,9	2,8	2,1	0,1
	Cs ¹³⁵	7,9.10 ⁻²	7,9.10 ⁻²	7,9.10 ⁻²	7,8.10 ⁻²	6,2.10 ⁻²
	Cs ¹³⁷	19.10 ³	0	0	0	0
	Total des fragments de fission	149.10 ³	4,4	4,2	3,2	0,7
Quelques actinides parmi les principaux	Pu ²³⁸	2,1.10 ²	0,2	≈ 0	≈ 0	≈ 0
	Am ²⁴¹	65.	15	0,14	≈ 0	≈ 0
	Cm ²⁴⁴	8,9.10 ²	≈ 0	≈ 0	≈ 0	≈ 0
	Cm ²⁴⁵	0,32	0,29	0,14	≈ 0	≈ 0
	Total des actinides	1650	35	10	1,3	0,8
Total général des résidus radioactifs		150.10 ³	≈ 40	≈ 15	≈ 4,5	≈ 1,5

Réf. :

"Managing radioactive wastes"

John O. BLORNEKE, Jere P. NICHOLS, William CLAIN

Physics today - August 1973 - p. 36

.../...

TABLEAU III

Elément	H_1^3	Cs^{137}	Sr^{90}	Pu^{239}	Am^{241}
Concentration max. admissible dans l'eau en Ci/m ³	$3 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$5 \cdot 10^{-6}$	$4 \cdot 10^{-6}$

Les chiffres inclus dans ce tableau ont été extraits d'un document publié par M. SOUSSELIER (à paraître dans les Annales des Mines).

V - LA SEPARATION ET LA TRANSMUTATION DU Cs^{137} ET DU Sr^{90} -

V.1 - Séparation

En vue d'une transmutation ultérieure de ces éléments faut-il effectuer une extraction par un procédé purement chimique qui concernerait tous les isotopes de ces éléments (ce qui certes pose déjà des problèmes de génie chimique complexes), ou bien faut-il envisager une extraction sélective des isotopes Cs^{137} ou Sr^{90} , ce qui pose des problèmes incomparablement plus complexes et coûteux encore ? Pour tenter de répondre à cette question, on examinera d'une part les résultats des travaux américains inclus dans le document évoqué précédemment, et d'autre part les chaînes de décroissance radioactives des différents isotopes de ces deux éléments, présentées dans l'Annexe I.

.../...

On déduit du Tableau de l'Annexe I, la conclusion suivante :

Si on laisse décroître les isotopes de ces éléments pendant une durée de l'ordre de 2 ans, il restera, pour le Sr les isotopes Sr^{84} , Sr^{87} , Sr^{88} et Sr^{90} , et pour le Cs, les isotopes Cs^{133} , Cs^{134} , Cs^{135} , Cs^{137} .

Les isotopes Sr^{84} , Sr^{87} , Sr^{88} étant stables, il ne reste que le Sr^{90} qui présente une activité importante.

Le Cs^{133} est stable, l'activité du Cs^{135} très faible (210⁶ ans) le Cs^{134} est gênant à relativement court terme. Seul le Cs^{137} est réellement gênant à moyen terme.

V.2 - Abondance et production de ces divers isotopes

Les éléments radioactifs présents dans les résidus ont été formés :

- soit directement à la fission,
- soit par décroissance radioactive d'antécédents produits directement à la fission.

Ces éléments radioactifs séjournent un temps variable dans le réacteur (ce temps est compris entre le chargement du combustible et son déchargement). La fluence neutronique reçue par les différents éléments dépend ainsi de leur date de formation et de l'intensité du flux qu'ils reçoivent.

La composition des résidus radioactifs produits est donc fonction du temps de séjour dans le réacteur et du régime de fonctionnement de celui-ci. Dans ce domaine les calculs ne peuvent donner que des ordres de grandeur, en particulier dans le cas des réacteurs à neutrons rapides, à cause des incertitudes sur les rendements de fission.

On présente en Annexe II les chaînes de décroissance des isotopes du Sr et du Cs. On constate que si on laisse décroître les corps à période courte, et qu'on extrait ensuite le Sr et le Cs, on obtient

.../...

- pour le Sr un mélange de Sr^{88} (stable) et de Sr^{90} (T = 28 ans) :
- pour le Cs, un mélange de Cs^{133} (stable), de Cs^{135} (2.10^6 ans) et de Cs^{137} (T = 30 ans).

V.3 - Transmutation

On étudie l'irradiation d'un tel mélange dans un flux de neutrons en considérant, d'une part les réactions (n, γ), d'autre part les réactions (n, 2n). Les transmutations ainsi réalisées sont présentées en Annexe III.

V.3.1 - Réactions nucléaires

On constate que l'on aboutit par irradiation à détruire les éléments dont la période est de l'ordre de 30 ans (Sr^{90} et Cs^{137}) pour former des éléments stables à travers des chaînes de corps dont la période n'excède pas 54 jours.

Mais on constate aussi que l'on transmute également des éléments stables Sr^{88} , Cs^{133} , ou pratiquement stables comme le Cs^{135} , en d'autres éléments qui ne redeviennent stables qu'à travers des chaînes radioactives dont la période la plus longue est de 2,2 ans. Est-ce judicieux de gaspiller ainsi des neutrons ? Faudrait-il envisager une séparation isotopique ? Compte tenu des technologies en usage, la réponse aujourd'hui serait, selon toute vraisemblance, négative. Qu'en sera-t-il dans l'avenir ? Cette étude n'apporte pas d'éléments de réponse sur ces points.

V.3.2 - Fluence et section efficace

Le taux de disparition $\frac{dN}{dt}$ d'un radioélément de période λ dans un flux ϕ est déterminé par la relation

$$\frac{dN}{dt} = -\sigma\phi - \lambda \rightarrow N = N_0 e^{-(\sigma\phi + \lambda)t}$$

σ = section efficace de capture de l'élément considéré.

.../...

La période du Cs et du Sr est de l'ordre de 30 ans. Si l'on veut par exemple réduire la quantité de ces éléments de moitié en 2 ans, ce qui paraît un ordre de grandeur raisonnable, on constate que $\sigma \phi$ doit être de l'ordre de 210^{-8} n/s, de sorte que si $\sigma \approx 10^{-24}$ cm² le flux doit être de l'ordre de 10^{16} n/cm² x s.

Les sections efficaces des produits de fission sont en général mal connues (elles sont difficiles à atteindre expérimentalement), mais on peut par contre les calculer à l'aide des modèles nucléaires existants ; c'est ce qui a été fait pour le Cs¹³⁷ et le Sr⁹⁰ auxquels on s'intéresse ici.

Les principales valeurs des sections efficaces sont données dans le Tableau de l'Annexe IV.

A titre d'information on présente sur les figures 1 et 2 les courbes exprimant la section efficace $\sigma(n, \gamma)$ du Sr⁹⁰ calculée suivant des modèles nucléaires différents. On constate combien les estimations sont imprécises et mériteraient d'être améliorées.

.../...

Dans un bilan neutronique, les réactions $(n, 2n)$ sont génératrices d'un neutron, tandis que les réactions (n, γ) sont créditrices d'un neutron ; de sorte que l'on peut définir grossièrement un terme ξ qui détermine la balance des neutrons pour chacune des réactions par la relation

$$\xi = \frac{2}{1 + \frac{\sum_i N_i \sigma_i(n, \gamma)}{\sum_i N_i \sigma_i(n, 2n)}} \quad N_i = \text{nombre de noyaux d'espèce } i$$

Si N_i reste constant au cours du temps $\xi_i \cong \frac{2}{1 + \frac{\sigma_i(n, 2n)}{\sigma_i(n, \gamma)}}$

pour un spectre de neutron de 14 MeV.

$$\xi_i = 1,78 \text{ pour le Sr}^{90}$$

$$\xi_i = 1,52 \text{ pour le Cs}^{137}$$

Sans tenir compte de "l'importance" des neutrons, donc en négligeant les problèmes d'hétérogénéité, il apparaît que la destruction du Cs^{137} et du Sr^{90} ne doit pas détériorer notablement le bilan neutronique d'un dispositif dans lequel règne un spectre de neutrons de 14 MeV.

Il en va tout autrement pour les spectres neutroniques existant dans les réacteurs thermiques ou rapides.

VI - LES POSSIBILITES DE TRANSMUTATION DANS LES REACTEURS NUCLEAIRES -

VI.1 - Réacteurs à neutrons thermiques

Pour présenter un intérêt, du point de vue de cette étude, la destruction éventuelle des produits de fission comme le Cs^{137} et le Sr^{90} par transmutation dans les réacteurs ne doit pas conduire à un accroissement notable de la consommation de combustible risquant d'une part de majorer abusivement le prix du combustible, d'autre part de créer des résidus dont la nocivité excède celle des produits détruits. Cette dernière condition n'est pas compatible avec le spectre des neutrons existant dans un réacteur à neutrons thermiques.

.../...

VI.2 - Réacteurs à neutrons rapides

Par contre le cas de la couverture d'un réacteur à neutron rapide mérite plus d'intérêt. Un calcul d'ordre de grandeur montre qu'un réacteur de 1200 MWe pourrait, sans que le facteur de surrégénération en souffre inconsiderément, brûler dans la couverture presque autant de Cs¹³⁷ et de Sr⁹⁰, qu'il en produit dans le cœur (cette évaluation a été faite en prenant $\overline{\sigma}(n, \gamma) \approx 1$ b dans la région du Kev, courbe de section efficace en pointillé de la figure 1).

VI.3 - Réacteurs thermonucléaires du futur

L'acuité des problèmes posés par les résidus radioactifs n'apparaîtra que dans un avenir de plusieurs dizaines d'années, époque à laquelle on peut espérer sans optimisme exagéré que la fusion aura fait les preuves de ses possibilités. Il est donc naturel d'étudier (et c'est ce qui a été entrepris aux USA) les problèmes de transmutation des résidus provenant des réacteurs à fission par les réacteurs à fusion du futur que l'on s'accorde en général à prévoir pour la fin de ce siècle ou le début du suivant.

On sait que les réacteurs à fusion utilisant la réaction DT produisent, à énergie égale, 7 fois plus de neutrons que les réacteurs à fission ; ils devraient avoir pour cette raison un taux de reproduction du tritium consommé relativement élevé, de sorte qu'il peut se concevoir d'utiliser les neutrons de 14 MeV excédentaires pour brûler efficacement des poisons du type Cs¹³⁷ ou Sr⁹⁰.

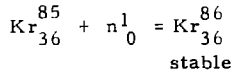
Les études entreprises aux USA sont très préliminaires ; elles ne prennent pas en compte la totalité de l'aspect technologique des problèmes, et abordent l'aspect économique de façon incomplète. Il n'en demeure pas moins que les principes paraissent valables (pour autant que les réacteurs thermonucléaires puissent être réalisés).

.../...

VII - LA TRANSMUTATION DU Kr⁸⁵

Le Krypton 85 a une période de 10,6 ans ; comme tous les gaz nobles il est très difficile à fixer et la possibilité de le transmuter a été étudiée aux USA ; une étude économique grossière a été entreprise.

Il a été envisagé de le transmuter en utilisant la réaction



Le Kr⁸⁵ présent dans les résidus gazeux est mélangé au Kr⁸³, Kr⁸⁴ et Kr⁸⁶.

Le rendement de fission du Kr⁸⁵ est faible, de sorte qu'il est 10 fois moins abondant que le Kr⁸⁶, 5 fois moins abondant que le Kr⁸⁴ et 2 fois moins abondant que le Kr⁸³.

La section efficace du Kr⁸⁵ pour les neutrons thermiques est de l'ordre de 15 barns, tandis qu'elle est de 200 barns pour le Kr⁸³₃₆ et 0,1 barn pour le Kr⁸⁶₃₆ (noyau à couche magique de 50 neutrons).

Ces caractéristiques conduisent les auteurs américains à envisager une séparation isotopique; dans ces conditions il n'est pas exclu que les réacteurs à neutrons thermiques puissent brûler du Krypton 85 dans des conditions qui pourraient être acceptables. (l'étude économique reste toutefois à faire).

VIII - LES ACTINIDES

Le recyclage des actinides dans les réacteurs à eau légère a été récemment étudié aux USA. On considère le combustible irradié dans le réacteur à eau défini précédemment (1000 MWe) avec taux de combustion 33000 MWJ/t et traité dans une usine chimique, capable d'extraire les actinides ainsi que l'Uranium et le Plutonium.

Ces actinides sont réincorporés dans le combustible à chaque cycle de rechargement. La perte de réactivité maximale, atteinte au bout de 5 cycles, est de 0,8 %, et peut être compensée par un accroissement de l'enrichissement de l'Uranium de 0,1 %, le faisant passer de 3,3 % à 3,4 %.

Un examen sommaire du recyclage des actinides dans un réacteur rapide montre que la pénalité serait plus faible. On pourrait peut-être même atteindre un bilan positif sur l'ensemble des isotopes de l'américium, alors qu'il est un peu négatif pour le ^{241}Am seul, sauf si l'on prend en compte le ^{238}Pu fourni par capture après décroissance du ^{242}Cm . Pour se prononcer plus clairement sur ce point il faut améliorer la connaissance des sections efficaces dont les valeurs actuelles sont pour la plupart très incertaines, et analyser avec soin les produits de filiation, en particulier les isotopes de masse plus élevée dont la formation serait accélérée par ce recyclage.

Pour exprimer le gain apporté par le recyclage, les auteurs déterminent le rapport entre la quantité d'eau nécessaire pour diluer les résidus produits sans recyclage des actinides et avec le recyclage. Ils démontrent que les risques à long terme pourraient être réduits d'un facteur 200, le recyclage des actinides pourrait être à chaque cycle de 99,9 %, et d'un facteur 40 s'il n'était que de 99,5 %, mais ceci dans 1 million d'années. Dans 1000 ans, les facteurs 200 et 40 seraient respectivement de 20 et 4.

.../...

IX - CONCLUSION -

La décroissance des résidus radioactifs fait apparaître que

- après une période de l'ordre de quelques années, le Cs^{137} et le Sr^{90} sont les deux éléments dominants et leur transmutation neutronique réduirait la nocivité des résidus à moyen terme (quelques centaines d'années).

- à très long terme, le rôle des actinides est dominant (plusieurs milliers d'années). Leur irradiation dans les réacteurs à eau conduirait à une réduction de leur nocivité au prix semble-t-il d'un très léger enrichissement (0,1 %), leur combustion dans les réacteurs à neutrons rapides est certainement plus prometteuse. Mais il est très difficile de se faire une idée de l'intérêt d'une réduction de la nocivité à très long terme.

Les études entreprises aux USA concernant la transmutation neutronique des résidus radioactifs produits par les usines de retraitement de combustibles, mettent en évidence que le procédé nécessiterait :

- la mise en œuvre de méthode d'extraction industrielle des éléments à transmuter ayant une très grande efficacité (de l'ordre de 99 %).

- l'utilisation de sources neutroniques de très forte intensité correspondant à des flux à très haute énergie, de l'ordre de quelques 10^{15} n/cm².s.

Les réacteurs à eau légère, tels que ceux utilisés pour la production d'énergie électrique, présentent peu d'intérêt pour la transmutation des résidus (sauf le cas particulier du Kr^{85} qui mériterait une étude plus approfondie).

Les réacteurs à neutrons rapides offrent des perspectives plus intéressantes surtout pour les actinides. Il conviendrait cependant de les préciser en entreprenant des études plus détaillées, tant du point de vue neutronique que pratique et économique.

Les possibilités les meilleures sont celles qu'offrirait les éventuels réacteurs thermonucléaires de l'avenir. Les problèmes posés par l'abondance des résidus radioactifs n'apparaîtront qu'à long terme, époque à laquelle il est vraisemblable d'imaginer que la fusion sera opérationnelle. La raison de cet intérêt réside dans le flux très élevé de neutrons de 14 MeV qui permettent de produire un grand nombre de réactions (n, 2n) qui n'amointrissent pas quantitativement le bilan neutronique.

La transmutation neutronique n'apporte pas un remède général aux problèmes que pose l'abondance des résidus radioactifs, tout au plus peut-elle contribuer à une réduction de la quantité des éléments les plus nocifs dont le stockage est le plus coûteux, en raison des très longues périodes de ces corps. Encore convient-il d'être très prudent en ce qui concerne une telle éventualité, qui n'a jusqu'à présent fait l'objet que d'études de principe, car sur le plan pratique les objections ne manqueront pas. En dehors de l'aspect économique (dont la difficulté est évoquée brièvement dans l'introduction), les problèmes de génie chimique radioactif que soulèvent les extractions, et éventuellement les séparations isotopiques sont certainement redoutables ; l'aspect sûreté peut soulever également des objections sérieuses, dont l'une d'entre elles (et non des moindres) est la suivante : Court-on plus de risques en stockant le mieux possible, dans des endroits spécialement aménagés, des produits dangereux, qu'en les manipulant dans des installations chimiques d'extraction, de concentration et en les irradiant dans des réacteurs dont on accroîtra encore les risques radioactifs potentiels ? Il appartiendra aux commissions de sûreté de se prononcer sur une telle éventualité.

.../...

Pour conclure, il paraît réconfortant de penser que, outre le stockage des résidus radioactifs, aussi excellent soit-il, il existe éventuellement des solutions de rechange.

Il paraît utile d'entreprendre quelques études pour contrôler la validité des travaux effectués aux Etats-Unis et les compléter en étudiant le cas des réacteurs rapides, tant au niveau de la production des résidus qu'en ce qui concerne leur possibilité de transmutation,

BIBLIOGRAPHIE

- 1)- Sitting of fuel reprocessing plants and waste management facilities
ORNL 4451. July 1970
- 2)- Long term waste management methods
A. M. PLATT and R. W. RAUSSEY
BNWL SA 4450
- 3)- A radioisotope oriented view of nuclear waste management
A. F. RUPP
ORNL 4776 - May 1972
- 4)- The long term hazard of radioactive waste produced by the enriched
uranium Pu - U²³⁸, U²³³-Th fuel cycles
ORNL TM 3548 - November 1971
- 5)- Neutron induced transmutation of high level radioactive waste
H. C. CLAIRBORNE
ORNL TM 3964 - December 1972
- 6)- The Pacific Northwest Laboratory Annual Report on Controlled Thermo-
nuclear Reactor Technology
WOLKENHAUER
BNWL 1685 - November 1972
- 7)- Etudes sur les produits de fission
D. BRETON
C.E.A. - B.I.B. 146 - 1968
- 8)- Travaux de M. SOUSSELIER
- 9)- Management of radioactive wastes from fuel reprocessing proceeding
OECD PARIS 1972
- 10)- Possibility of fusion reactors as radioactive waste burners.
CTR Technology Group - July 1971

- 11) - Neutron burning of long lived fission products for waste disposal by
STEINBERG and al
BNL 8558 - September 1964

- 12) - A nuclear transformation system for disposal of long-lived fission product
waste in an expanding nuclear power economy.
BNL 11915 - November 1967

ANNEXE I

Isotopes du Cs et du Sr

Isotope	Abondance naturelle %	Période 1/2 vie	Isotope	Abondance naturelle %	Période 1/2 vie
Sr ⁸¹		29 m	Cs ¹²⁷		5,5 h
Sr ⁸²		25,5 j	Cs ¹²⁸		3,1 m
Sr ⁸³		38 h	Cs ¹²⁹		31 h
Sr ⁸⁴	0,55	∞	Cs ¹³⁰		30 m
Sr ⁸⁵		70 m ^{IT} → 65 j	Cs ¹³¹		10 j
Sr ⁸⁶	9,75	2,8 h	Cs ¹³²		7,1 j
Sr ⁸⁷	6,96	∞	Cs ¹³³	100	∞
Sr ⁸⁸	82,74	∞	Cs ¹³⁴		3,15 ^h → 2,3 ans
Sr ⁸⁹		54 j	Cs ¹³⁵		210 ⁶ ans
[Sr ⁹⁰		<u>28 ans</u>	Cs ¹³⁶		13 j
Sr ⁹¹		97 h	[Cs ¹³⁷		<u>30 ans</u>
Sr ⁹²		2,7 h	Cs ¹³⁸		33 m
Sr ⁹³		7 m	Cs ¹³⁹		9,5 m
Sr ⁹⁴		∞ 2 m	Cs ¹⁴⁰		66 s
			Cs ¹⁴¹		très courte
			Cs ¹⁴²		∞ 1 m
			Cs ¹⁴³		très courte
			Cs ¹⁴⁴		très courte
			Cs ¹⁴⁵		très courte

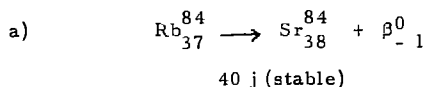
.../...

ANNEXE II

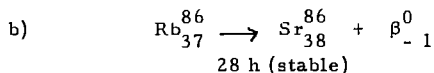
I - CHAINES DE DECROISSANCE DU Sr ET DU Cs -

Le rendement de fission de Sr_{38}^{86} , Sr_{38}^{84} , Sr_{38}^{88} est, d'après les tables pratiquement nul; ces isotopes ne peuvent donc apparaître qu'à la suite de la décroissance de leurs antécédents.

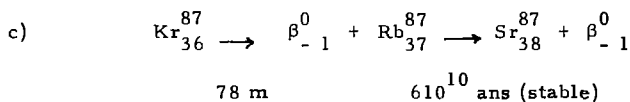
Les antécédents de ces isotopes sont :



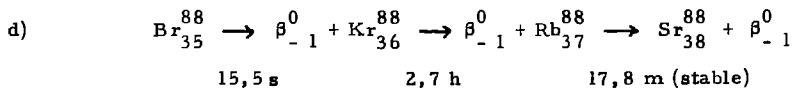
le rendement de fission du Rb_{37}^{84} étant nul il ne peut y avoir production de Sr_{38}^{84}



le rendement de fission du Rb_{37}^{86} étant nul il ne peut y avoir de Sr_{38}^{86}

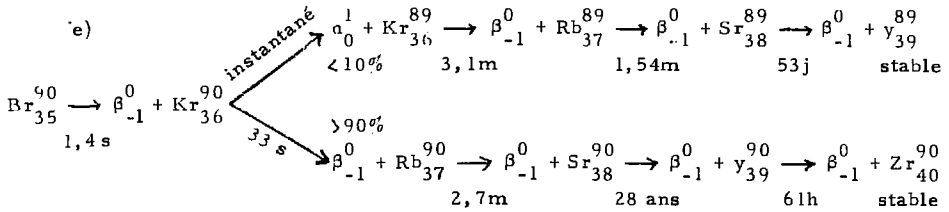


le rendement du Kr_{36}^{85} est d'environ 2,5, mais la période du Rb_{37}^{87} étant pratiquement infinie, il n'y a pas de formation de Sr_{38}^{87}



.../...

Les rendements de fission du Br_{37}^{88} , du Kr_{36}^{88} , du Rb_{37}^{88} et du Sr_{38}^{88} sont respectivement de 1,52 %, 0,79 %, 0,05 % et 0 %.

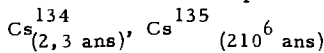


Les rendements de fission du Br_{35}^{90} , Kr_{36}^{90} , Rb_{37}^{90} , Sr_{38}^{90} sont respectivement de 1,37 %, 2,2 %, 1 %, 0,5 %, et le rendement cumulé de la chaîne est de l'ordre de 6 % (6 % U235 - 3 % Pu 239).

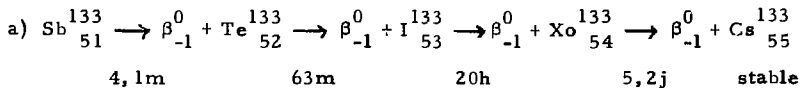
Cette chaîne peut décroître suivant l'un ou l'autre schéma soit en émettant un neutron retardé en suivant la chaîne supérieure, soit en suivant la chaîne inférieure qui aboutit au Sr_{38}^{90} .

2 - CHAÎNE DE DECROISSANCE DES ISOTOPES DU Cs -

Le seul isotope stable du Cs est le Cs_{55}^{133} dont le rendement de fission est nul. Les autres isotopes :



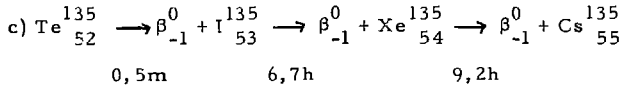
ont également un rendement de fission nul; seul le Cs_{55}^{137} a un rendement de fission qui ne l'est pas (0,8 %). Par contre les isotopes Cs_{55}^{133} , Cs_{55}^{135} , Cs_{55}^{137} sont produits par décroissance radioactive de leurs antécédents.



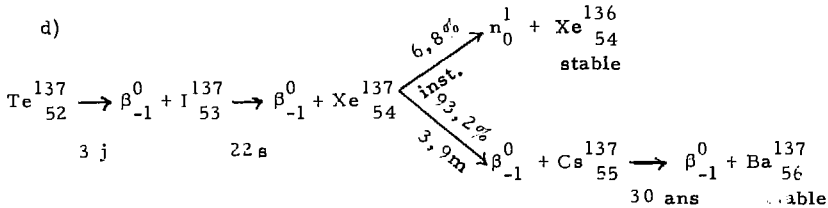
Rendement de fission cumulé 6,58 %

.../...

b) Le Cs¹³⁴₅₅ n'a pas d'antécédent, il est produit par capture dans le Cs¹³³.



Rendement de fission cumulé 6,46 %



Rendement de fission cumulé 6,14 %

Comme dans le cas du Sr⁹⁰, la décroissance peut se faire suivant l'un ou l'autre des deux schémas présentés ci-dessus - Soit émission d'un neutron retardé (6,8 % de probabilité) - Soit décroissance β (93,2 %).

En conclusion, si on laisse décroître les corps à périodes les plus courtes et que l'on extrait le Sr et le Cs, on devrait avoir :

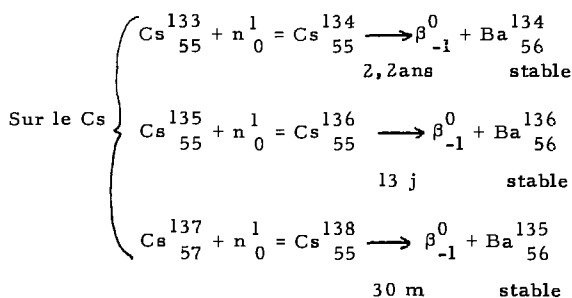
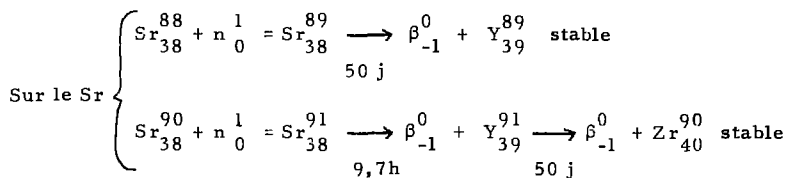
- pour le Sr, un mélange contenant du Sr⁸⁸ (stable) et du Sr⁹⁰ (28 ans)
- pour le Cs, un mélange contenant du Cs¹³³₅₅ (stable), du Cs¹³⁵₅₅ (210⁶ ans) et du Cs¹³⁷₅₅ (30ans).

ANNEXE III

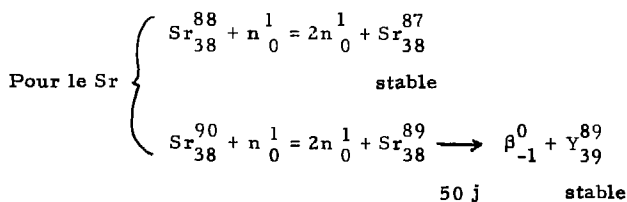
TRANSMUTATIONS

On étudie l'irradiation des deux mélanges décrits dans l'Annexe I. Deux types de réactions sont envisagés :

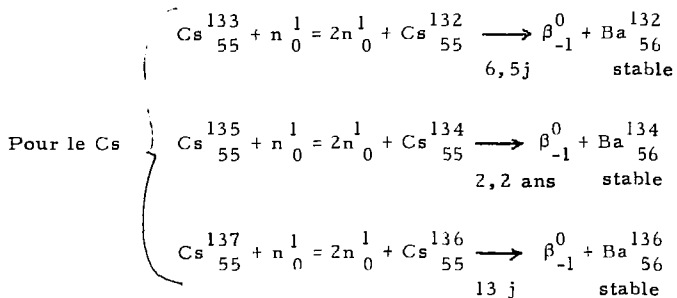
a) les réactions (n, γ)



b) les réactions (n, 2n)



.../...



On constate que l'on aboutit par irradiation, à détruire les éléments dont la période est de l'ordre de 30 ans Sr_{38}^{90} et Cs_{55}^{137} pour former des éléments stables à travers des chaînes formées de corps dont la période n'excède pas 54 jours

.../...

ANNEXE IV

SECTIONS EFFICACES DU Cs ET DU Sr

Ces deux noyaux ont des sections efficaces (n, γ) faibles, la raison en est claire ; l'énergie de liaison des neutrons dans ces noyaux est particulièrement basse ; c'est ce qui explique qu'ils puissent émettre l'un et l'autre un neutron retardé.

Le Cs $^{137}_{55}$ (noyau impair-pair) contient une couche magique de 82 neutrons ; on comprend que dans ces conditions sa section efficace de capture soit si faible ; c'est du reste la raison de son abondance dans les résidus ; par contre, sa section efficace $n2n$ (dont le seuil est à 8 MeV) est beaucoup plus importante (1,9 barn à 14 MeV),

Quant au Sr $^{90}_{55}$ (noyau impair pair) il contient 52 neutrons, le 51^e et le 52^e neutrons proches de la couche magique 50 peuvent s'en détacher facilement ; il peut émettre également un neutron retardé ; sa section efficace de capture est un peu plus forte que celle du Cs $^{137}_{55}$ et sa réaction $(n, 2n)$ un peu plus faible.

Les valeurs des sections efficaces sont rassemblées dans le tableau suivant

Elément	Section efficace de capture $\sigma(n, \gamma)$ en barns pour les neutrons thermiques	Section efficace $(n, 2n)$ pour les neutrons de 14 MeV (barns)
Sr 90	0,8 \pm 0,5	1,48
Cs 137	0,11 \pm 0,03	1,86
		(Valeurs calculées)

A titre d'information on présente sur les Fig. 1 et 2 les courbes exprimant la section efficace $\sigma(n, \gamma)$ du Sr 90 calculée suivant des modèles nucléaires différents. On constate combien les estimations sont imprécises et mériteraient d'être améliorées.

.../...

38 59 60

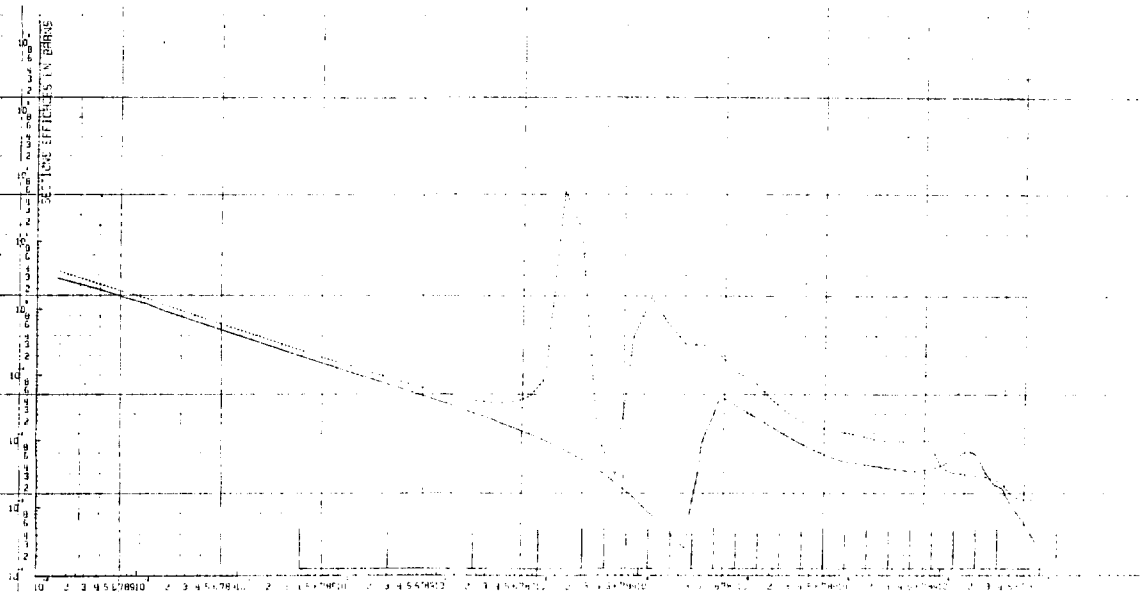
SECTIONS EFFICACES

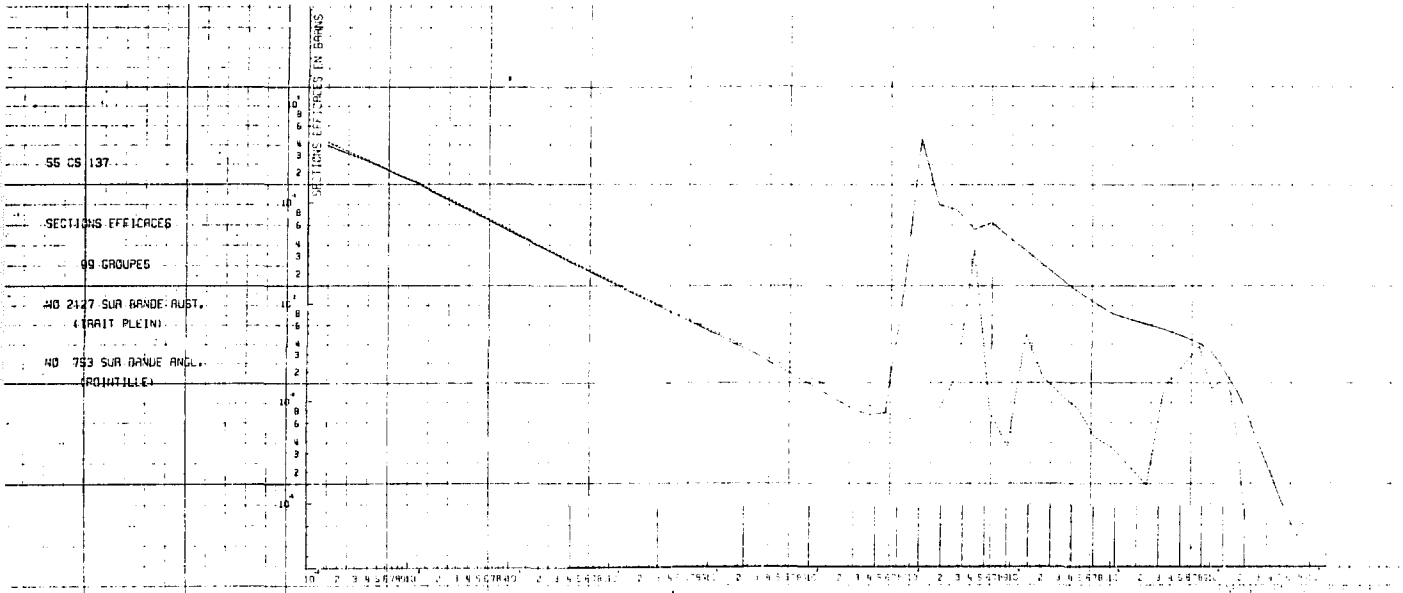
55 GROUPES

N3 2026 SUR BRANDE AUST.
(TRAIT PLEIN)

NJ 712 SUR BRANDE ANGL.
(POINTILLE)

SECTIONS EFFICACES EN TERRAIN





55 CS 137

SECTIONS EFFICACES

99 GROUPE

ND 2127 SUR BANDE AJUST.
(TRAIT PLEIN)

ND 793 SUR BANDE ANCL.
(POINTILLE)

