



RAPPORT TECHNIQUE

FR 8303461

DRNR/P/N° 243

DONNEES DE BASE DANS LE CYCLE DU COMBUSTIBLE
DES REACTEURS A NEUTRONS RAPIDES
BILAN ET PERSPECTIVE

L. COSTA, G. GRANGET, F. JOSSO

RESUME :

On fait le bilan des données nucléaires nécessaires aux études relatives au cycle des combustibles des réacteurs à neutrons rapides.

A partir des précisions obtenues actuellement sur ces données, des calculs de sensibilité ont permis de définir les priorités pour les mesures expérimentales et les évaluations futures.

International conference on nuclear data for science
and technology.
Antwerp (BELGIUM)
1982, 6-10 Sept.
CEA-CONF-- 6735

I - Introduction

On peut considérer le cycle du combustible des réacteurs à neutrons rapides comme un ensemble de transformations physiques, nucléaires, chimiques. Il s'agit pour nous de caractériser le combustible et les structures en ce qui concerne les transformations nucléaires et donc d'établir un bilan de masse et de radioactivité aux différents postes du cycle. La connaissance des données nucléaires de base de l'ensemble des nucléides mis en jeu est l'élément essentiel pour ce type de calcul.

Le nombre de nucléides mis en jeu, étant à priori très important, il est nécessaire de définir des priorités d'études pour la connaissance de ces données.

On essaie de montrer ici, à l'aide d'exemples, la démarche permettant d'établir leur importance relative, compte tenu des contraintes aux divers postes du cycle.

II - Le cycle du combustible : principales grandeurs physiques et données de base

II.1 - Le cycle du combustible

On peut définir le cycle du combustible par ses principaux postes et leurs caractéristiques fonctionnelles.

* Usine de fabrication : mise sous forme d'assemblages d'oxyde d'uranium et plutonium et d'acier inactif.

* Réacteur : production d'énergie par fission, transmutations nucléaires par captures neutroniques.

* Usine de retraitement : transformations chimiques pour la séparation des différents composants et l'extraction du plutonium.

* Stockage des déchets : conditionnement des éléments (produits de fission, actinides, structures acier) autres que uranium et plutonium.

* Transport et manucencion : assurent la liaison entre les divers postes pour les combustibles neufs ou irradiés et les déchets

II.2 - Principales grandeurs physiques

La définition d'une stratégie générale pour le cycle nécessite les études suivantes :

* Dimensionnement des usines.

* Mise au point des procédés.

* Optimisation de l'ensemble.

Soit dans le cadre d'études de prospective, soit dans une optique de projet on doit établir, à chaque poste du cycle, un bilan de masse et un bilan de radioactivité.

- Bilan de masse

On doit prendre en compte aussi bien d'un point de vue chimique qu'isotopique les nucléides que l'on peut regrouper dans les principales familles suivantes :

* Uranium plutonium.

* Actinides (autres que U et PU).

* Produits de fission.

* Matériaux de structure.

Ces bilans de masse isotopique et chimique sont nécessaires pour résoudre les problèmes de :

* Criticité.

* Balance plutonium.

* Mise au point des procédés de retraitement et de stockage.

* Dimensionnement en général de l'ensemble des usines.

- Bilan en radioactivité

Il s'agit de calculer les intensités et les spectres des différents rayonnements α , γ , β , β^+ , n. Ces rayonnements, émis par les combustibles neufs ou irradiés, sont déterminants pour obtenir :

- * La puissance thermique hors irradiation.
- * Les débits de dose et les épaisseurs de protection biologique nécessaires.
- * Le niveau de contamination.

II.3 - Les données nucléaires de base

En amont des calculs d'estimation de l'ensemble des grandeurs physiques que l'on vient d'examiner se situent les données nucléaires caractéristiques de chaque nuclide :

* Les valeurs des sections efficaces en fonction de l'énergie des neutrons :

$\sigma_{\text{capture}}(E)$, $\sigma_{\text{fission}}(E)$, $\sigma_{\text{non}}(E)$...

* Les schémas de formation par radioactivité ou absorption neutronique.

* Les périodes de décroissance radioactive.

* Les rendements de fission.

* La nature, l'intensité et le spectre énergétique des rayonnements émis.

En considérant les quatre grandes familles de nuclides, on arrive à un nombre très important (de l'ordre de 700 nuclides).

- U, Pu : de l'ordre de 16
- autres actinides : de l'ordre de 30
- Produits de fission : de l'ordre de 650
- Produits d'activation : de l'ordre de 15

Il ne serait pas réaliste de faire ici l'inventaire complet des données nucléaires relatives à chacun de ces nuclides, mais, après un bilan rapide de l'état actuel, on donnera les grandes lignes de notre étude :

* Définition systématique de l'importance de chaque nuclide.

* Définition des priorités pour l'évaluation des données nucléaires.

III - Incertitudes - Bilan actuel

On résume dans les tableaux suivants (1 à 4) les nuclides dont il est nécessaire de prévoir la concentration ou l'intensité des rayonnements émis.

Pour chacun d'eux, on précise l'incertitude que l'on affecte aux calculs de leur concentration qui est estimée soit :

* A partir des incertitudes affectées aux données nucléaires de base spécifiques de chacun d'eux et à l'aide d'un calcul de sensibilité.

* A partir de comparaisons calcul-expérience effectuées sur le cycle des réacteurs RAPSDIE et PHENIX.

On peut constater que certains nuclides à période de décroissance très grande ne sont pas affectés d'incertitude ; leur importance apparaît dans la perspective de stockage des déchets nucléaires et ces nuclides sont l'objet des études actuelles.

Tableau 1
Produits de fission
Optique retraitement
Incertitude : $\pm 10\%$ à $\pm 15\%$

90 28	90 29	90 30	90 31	90 32
90 33	90 34	90 35	90 36	90 37
90 38	90 39	90 40	90 41	90 42
90 43	90 44	90 45	90 46	90 47
90 48	90 49	90 50	90 51	90 52
90 53	90 54	90 55	90 56	90 57
90 58	90 59	90 60	90 61	90 62
90 63	90 64	90 65	90 66	90 67
90 68	90 69	90 70	90 71	90 72
90 73	90 74	90 75	90 76	90 77
90 78	90 79	90 80	90 81	90 82
90 83	90 84	90 85	90 86	90 87
90 88	90 89	90 90	90 91	90 92
90 93	90 94	90 95	90 96	90 97
90 98	90 99	90 100	90 101	90 102
90 103	90 104	90 105	90 106	90 107
90 108	90 109	90 110	90 111	90 112
90 113	90 114	90 115	90 116	90 117
90 118	90 119	90 120	90 121	90 122
90 123	90 124	90 125	90 126	90 127
90 128	90 129	90 130	90 131	90 132
90 133	90 134	90 135	90 136	90 137
90 138	90 139	90 140	90 141	90 142
90 143	90 144	90 145	90 146	90 147
90 148	90 149	90 150	90 151	90 152
90 153	90 154	90 155	90 156	90 157
90 158	90 159	90 160	90 161	90 162
90 163	90 164	90 165	90 166	90 167
90 168	90 169	90 170	90 171	90 172
90 173	90 174	90 175	90 176	90 177
90 178	90 179	90 180	90 181	90 182
90 183	90 184	90 185	90 186	90 187
90 188	90 189	90 190	90 191	90 192
90 193	90 194	90 195	90 196	90 197
90 198	90 199	90 200	90 201	90 202
90 203	90 204	90 205	90 206	90 207
90 208	90 209	90 210	90 211	90 212
90 213	90 214	90 215	90 216	90 217
90 218	90 219	90 220	90 221	90 222
90 223	90 224	90 225	90 226	90 227
90 228	90 229	90 230	90 231	90 232
90 233	90 234	90 235	90 236	90 237
90 238	90 239	90 240	90 241	90 242
90 243	90 244	90 245	90 246	90 247
90 248	90 249	90 250	90 251	90 252
90 253	90 254	90 255	90 256	90 257
90 258	90 259	90 260	90 261	90 262
90 263	90 264	90 265	90 266	90 267
90 268	90 269	90 270	90 271	90 272
90 273	90 274	90 275	90 276	90 277
90 278	90 279	90 280	90 281	90 282
90 283	90 284	90 285	90 286	90 287
90 288	90 289	90 290	90 291	90 292
90 293	90 294	90 295	90 296	90 297
90 298	90 299	90 300	90 301	90 302
90 303	90 304	90 305	90 306	90 307
90 308	90 309	90 310	90 311	90 312
90 313	90 314	90 315	90 316	90 317
90 318	90 319	90 320	90 321	90 322
90 323	90 324	90 325	90 326	90 327
90 328	90 329	90 330	90 331	90 332
90 333	90 334	90 335	90 336	90 337
90 338	90 339	90 340	90 341	90 342
90 343	90 344	90 345	90 346	90 347
90 348	90 349	90 350	90 351	90 352
90 353	90 354	90 355	90 356	90 357
90 358	90 359	90 360	90 361	90 362
90 363	90 364	90 365	90 366	90 367
90 368	90 369	90 370	90 371	90 372
90 373	90 374	90 375	90 376	90 377
90 378	90 379	90 380	90 381	90 382
90 383	90 384	90 385	90 386	90 387
90 388	90 389	90 390	90 391	90 392
90 393	90 394	90 395	90 396	90 397
90 398	90 399	90 400	90 401	90 402
90 403	90 404	90 405	90 406	90 407
90 408	90 409	90 410	90 411	90 412
90 413	90 414	90 415	90 416	90 417
90 418	90 419	90 420	90 421	90 422
90 423	90 424	90 425	90 426	90 427
90 428	90 429	90 430	90 431	90 432
90 433	90 434	90 435	90 436	90 437
90 438	90 439	90 440	90 441	90 442
90 443	90 444	90 445	90 446	90 447
90 448	90 449	90 450	90 451	90 452
90 453	90 454	90 455	90 456	90 457
90 458	90 459	90 460	90 461	90 462
90 463	90 464	90 465	90 466	90 467
90 468	90 469	90 470	90 471	90 472
90 473	90 474	90 475	90 476	90 477
90 478	90 479	90 480	90 481	90 482
90 483	90 484	90 485	90 486	90 487
90 488	90 489	90 490	90 491	90 492
90 493	90 494	90 495	90 496	90 497
90 498	90 499	90 500	90 501	90 502
90 503	90 504	90 505	90 506	90 507
90 508	90 509	90 510	90 511	90 512
90 513	90 514	90 515	90 516	90 517
90 518	90 519	90 520	90 521	90 522
90 523	90 524	90 525	90 526	90 527
90 528	90 529	90 530	90 531	90 532
90 533	90 534	90 535	90 536	90 537
90 538	90 539	90 540	90 541	90 542
90 543	90 544	90 545	90 546	90 547
90 548	90 549	90 550	90 551	90 552
90 553	90 554	90 555	90 556	90 557
90 558	90 559	90 560	90 561	90 562
90 563	90 564	90 565	90 566	90 567
90 568	90 569	90 570	90 571	90 572
90 573	90 574	90 575	90 576	90 577
90 578	90 579	90 580	90 581	90 582
90 583	90 584	90 585	90 586	90 587
90 588	90 589	90 590	90 591	90 592
90 593	90 594	90 595	90 596	90 597
90 598	90 599	90 600	90 601	90 602
90 603	90 604	90 605	90 606	90 607
90 608	90 609	90 610	90 611	90 612
90 613	90 614	90 615	90 616	90 617
90 618	90 619	90 620	90 621	90 622
90 623	90 624	90 625	90 626	90 627
90 628	90 629	90 630	90 631	90 632
90 633	90 634	90 635	90 636	90 637
90 638	90 639	90 640	90 641	90 642
90 643	90 644	90 645	90 646	90 647
90 648	90 649	90 650	90 651	90 652
90 653	90 654	90 655	90 656	90 657
90 658	90 659	90 660	90 661	90 662
90 663	90 664	90 665	90 666	90 667
90 668	90 669	90 670	90 671	90 672
90 673	90 674	90 675	90 676	90 677
90 678	90 679	90 680	90 681	90 682
90 683	90 684	90 685	90 686	90 687
90 688	90 689	90 690	90 691	90 692
90 693	90 694	90 695	90 696	90 697
90 698	90 699	90 700	90 701	90 702

Tableau 2

Actinides

Nuclide	Période (ans)	Importance no 1	Nuclide	Période (ans)	Importance no 2	Nuclide	Période (ans)	Importance no 3
Pu 239	100		U 230	$2,36 \times 10^4$	10	Am 243	7000	10
Am 241	432		U 231	$4,47 \times 10^5$	1	Am 244	10,50	10
Am 243	7000		Am 240	14000	10	Am 246	10,11	10
Am 244	10,50		Am 241	$2,16 \times 10^4$	10	Am 247	4900	10
Am 246	10,11		Pu 238	2,01	10	Am 248	6,70	
Am 247	4900		Pu 239	24,4	10	Am 249	$1,50 \times 10^4$	
Am 248	6,70		Pu 240	655	1	Am 250	4000	
Am 249	$1,50 \times 10^4$		Pu 241	14,70	1	Am 251	100	
Am 250	4000		Pu 242	37000	1	Am 252	150,0	
Am 251	100		Pu 243	$4,35 \times 10^4$	1	Am 253	7,00	
Am 252	150,0		Am 241	432,0	1	Am 254	80,0	
Am 253	7,00		Am 243	7000	1	Am 255	10,0	
Am 254	80,0		Am 244	10,50	1	Am 256	10,0	
Am 255	10,0		Am 246	10,11	1	Am 257	10,0	
Am 256	10,0		Am 247	4900	1	Am 258	10,0	
Am 257	10,0		Am 248	6,70	1	Am 259	10,0	
Am 258	10,0		Am 249	$1,50 \times 10^4$	1	Am 260	10,0	
Am 259	10,0		Am 250	4000	1	Am 261	10,0	
Am 260	10,0		Am 251	100	1	Am 262	10,0	
Am 261	10,0		Am 252	150,0	1	Am 263	10,0	
Am 262	10,0		Am 253	7,00	1	Am 264	10,0	
Am 263	10,0		Am 254	10,0	1	Am 265	10,0	
Am 264	10,0		Am 255	10,0	1	Am 266	10,0	
Am 265	10,0		Am 256	10,0	1	Am 267	10,0	
Am 266	10,0		Am 257	10,0	1	Am 268	10,0	
Am 267	10,0		Am 258	10,0	1	Am 269	10,0	
Am 268	10,0		Am 259	10,0	1	Am 270	10,0	
Am 269	10,0		Am 260	10,0	1	Am 271	10,0	
Am 270	10,0		Am 261	10,0	1	Am 272	10,0	
Am 271	10,0		Am 262	10,0	1	Am 273	10,0	
Am 272	10,0		Am 263	10,0	1	Am 274	10,0	
Am 273	10,0		Am 264	10,0	1	Am 275	10,0	
Am 274	10,0		Am 265	10,0	1	Am 276	10,0	
Am 275	10,0		Am 266	10,0	1	Am 277	10,0	
Am 276	10,0							

IV.2 - Exemples d'application

On illustre par quelques exemples, choisis aux différents postes du cycle, l'application de la méthode d'étude et les conséquences pour les évaluations des données nucléaires.

- Exemple 1 : usine de fabrication

✱ Contraintes : protection biologique et débit de dose.

✱ Nuclides prépondérants :
Tl 208 (γ dur 2,6 Mev) Am 241 (γ mou 0,06 Mev)

✱ Sensibilités :
Concentrations en Pu 236 et Pu 241 initiales

✱ Priorités d'évaluation :
Tl 208 : α et β de U 238
 α et β de U 237
et rapport de branchement (U 236 M
U 237 F)

Am 241 : période radioactive du Pu 241
spectre γ de Am 241 et coefficients d'interaction avec la matière.

✱ Incertitudes sur les concentrations :
Pu 236 = 30 % Am 241 = 5 %

- Exemple 2 : réacteur

✱ Contrainte : puissance thermique résiduelle pour des temps courts après arrêt.

✱ Nuclides prépondérants : - P.F à vie courte
- U 239 et Np 239

✱ Données : - rendement de fission : η
- énergie moyenne des β : \bar{E}_β
- énergie γ : \bar{E}_γ

- Exemple 3 : transport réacteur-retraitement

✱ Contraintes : puissance thermique résiduelle
protections biologiques

✱ Sensibilité : P.F (\bar{E}_β , γ) 270 P.F
Actinides (α et neutrons) Cm 242 et
Cm 244
Acier (γ) Co 60

100 % sur intensité γ → environ 2 cm de plomb.
Variation de 200 keV autour de 1 MeV → environ
4 cm de Pb (discretisation plus ou moins fine du
spectre γ).

- Exemple 4 : usine de retraitement

En plus des problèmes de criticité ou de puissance thermique et de protection biologique déjà examinés, on peut noter un problème spécifique dû au procédé.

✱ Concentration en platinoïdes : Pd, Ru, Rh
✱ Données : rendement (γ)
✱ Incertitudes : ~ 15 %

- Exemple 5 : stockage de déchets

Les nuclides importants ont été répertoriés. On peut citer quelques exemples importants :

✱ Produits d'activation des matériaux de structures
Ni 63, Ni 59, Mo 93.
✱ Actinides
✱ Un produit de fission : Ho 166 M
✱ Données : β pour Ni, Actinides et Ho 166 M;

Tableau 1
Produits de fission
Nuclides alpha et gamma

Nuclide	Période (ans)	Importance	Nuclide	Période (ans)	Importance	Nuclide	Période (ans)	Importance
Mo 99	65800	10 E	Am 102	1,9	10 E	Ho 151	66	10 E
Mo 95	10,7		Pu 107	4,15 10 ⁵		Eu 150m	36	
Mo 93	5,5 10 ⁶		Ag 108m	127		Eu 152	13,2	
Mo 90	29,1		Br 121m	15		Eu 154	5,0	
Mo 87	1,3 10 ⁶		Sn 126	100000		Eu 155	4,9	
Mo 81	6000		T 129	1,6 10 ⁷		Ga 146	93	
Mo 78	1,2 10 ⁷		Co 136	2		Gd 150	1,2 10 ⁶	
Mo 70m	16,4		Co 135	2,3 10 ⁶		Tb 157	150	
Mo 64m	10300		Co 137	38		Tb 159	150	
Ta 97	1,6 10 ⁵		Sm 146	7,4 10 ⁷		Sm 150	1,10 ⁷	
Ta 95	1,2 10 ⁶	Sm 147	1,1 10 ¹¹	Ho 163	10			
Ta 90	110000	Sm 148	8,10 ¹⁵	Ho 160m	1200			
Mo 100	1,3	Sm 149	4,10 ¹⁶					

Tableau 2
Produits d'activation

Nuclide	Période (ans)	Importance	Nuclide	Période (ans)	Importance	Nuclide	Période (ans)	Importance
U 23	12,4	100	Am 10	140		Am 10	1400	1000
Am 10	1,6 10 ⁵		Am 42	13		Am 42	100	1000
U 234	1700	100	Pu 13	2,7	100	Am 93	1500	1000
Am 23	1,9	10	Co 58	1,3	100			

IV - Systématique d'étude - Priorités d'évaluation

IV.1 - Systématique d'étude

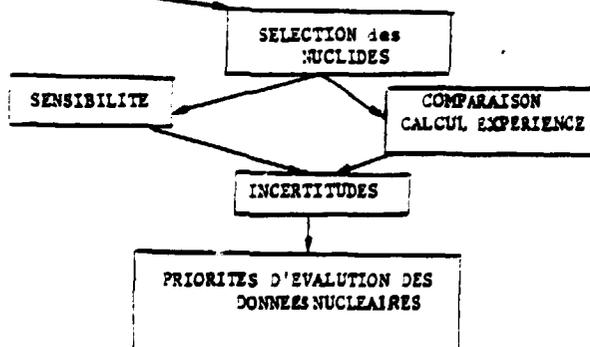
En fonction des contraintes et des grandeurs physiques que l'on doit estimer à chaque poste, on doit définir :

✱ Pour les différents nuclides une importance relative.

✱ Pour chaque nuclide la ou les données nucléaires prépondérantes.

Le schéma ci-dessous résume la systématique d'étude qui permet de définir les importances relatives des différents nuclides et les priorités pour les évaluations des données nucléaires.

IMPORTANCE = F [MASSE, T_{1/2}, CARACT., CONTRAINTES]



V - Conclusion

Nous avons considéré le cycle du combustible des réacteurs à neutrons rapides dans son ensemble et défini la systématique d'étude pour établir les priorités d'évaluation des données nucléaires relatives à l'ensemble des nuclides. L'analyse du bilan actuel des incertitudes et les quelques exemples d'application de la méthode représentatifs d'une étude plus générale permettent de préciser les grandes lignes des études futures dans le domaine des données nucléaires :

* Pour les nuclides "majeurs" U235, U238, Pu239 à Pu242 qui sont importants pour la criticité et la puissance des réacteurs, une précision de 1 % est nécessaire sur les sections efficaces de capture et de fission. Ces nuclides font l'objet d'études particulières par les physiciens des coeurs de réacteur.

* Pour l'ensemble des autres nuclides (Actinides, produits de fission, produits d'activation, on peut se satisfaire d'une précision de l'ordre de 10 % sur les grandeurs physiques qui les caractérisent aux divers postes du cycle hors réacteur ; concentration, puissance thermique, intensité et spectre des rayonnements émis. Les tableaux du paragraphe III et les quelques schémas d'étude de sensibilité permettant de définir les domaines sur lesquels devra porter l'effort.

* Produits de fission à vie très courte ou très longue : rayonnements, énergie émise, sections de capture.

* Actinides importants par leur concentration ou par leur rôle intermédiaire ; en plus de ceux déjà cités ici, on devra faire un effort particulier sur les données nucléaires de ceux à vie très longue ou de numéro atomique supérieur au curium 244.

* Produits d'activation : on peut retenir ici des évaluations de sections efficaces de capture pour la formation des Ni59, Ni63, et du Mo93.