



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.

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.

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

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 nucléides, on arrive à un nombre très important (de l'ordre de 700 nucléides).

- 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 nucléides, 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 nucléides 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 RAPSODIE et PHENIX.

On peut constater que certains nucléides 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 nucléides sont l'objet des études actuelles.

90	92	94	96	98	100
102	104	106	108	110	112
114	116	118	120	122	124
126	128	130	132	134	136
138	140	142	144	146	148
150	152	154	156	158	160
162	164	166	168	170	172
174	176	178	180	182	184
186	188	190	192	194	196
198	200	202	204	206	208
210	212	214	216	218	220
222	224	226	228	230	232
234	236	238	240	242	244
246	248	250	252	254	256
258	260	262	264	266	268
270	272	274	276	278	280
282	284	286	288	290	292
294	296	298	300	302	304
306	308	310	312	314	316
318	320	322	324	326	328
330	332	334	336	338	340
342	344	346	348	350	352
354	356	358	360	362	364
366	368	370	372	374	376
378	380	382	384	386	388
390	392	394	396	398	400
402	404	406	408	410	412
414	416	418	420	422	424
426	428	430	432	434	436
438	440	442	444	446	448
450	452	454	456	458	460
462	464	466	468	470	472
474	476	478	480	482	484
486	488	490	492	494	496
498	500	502	504	506	508
510	512	514	516	518	520
522	524	526	528	530	532
534	536	538	540	542	544
546	548	550	552	554	556
558	560	562	564	566	568
570	572	574	576	578	580
582	584	586	588	590	592
594	596	598	600	602	604
606	608	610	612	614	616
618	620	622	624	626	628
630	632	634	636	638	640
642	644	646	648	650	652
654	656	658	660	662	664
666	668	670	672	674	676
678	680	682	684	686	688
690	692	694	696	698	700
702	704	706	708	710	712
714	716	718	720	722	724
726	728	730	732	734	736
738	740	742	744	746	748
750	752	754	756	758	760
762	764	766	768	770	772
774	776	778	780	782	784
786	788	790	792	794	796
798	800	802	804	806	808
810	812	814	816	818	820
822	824	826	828	830	832
834	836	838	840	842	844
846	848	850	852	854	856
858	860	862	864	866	868
870	872	874	876	878	880
882	884	886	888	890	892
894	896	898	900	902	904
906	908	910	912	914	916
918	920	922	924	926	928
930	932	934	936	938	940
942	944	946	948	950	952
954	956	958	960	962	964
966	968	970	972	974	976
978	980	982	984	986	988
990	992	994	996	998	1000

Tableau 2

Actinides

Nuclide	Période (ans)	Incertitude (%)	Nuclide	Période (ans)	Incertitude (%)	Nuclide	Période (ans)	Incertitude (%)
Pu 239	105		U 238	4.5 x 10 ⁹	± 10	Am 241	700	± 10
U 235	700		U 235	7.0 x 10 ⁸	± 1	Am 243	10.5	± 10
U 238	4.5 x 10 ⁹		Am 240	14000	± 10	Am 244	10.11	± 10
Am 241	433		Am 241	433	± 10	Am 245	800	± 10
U 235	700		Pu 239	1.5 x 10 ⁴	± 10	Am 249	1.5 x 10 ⁵	
U 238	4.5 x 10 ⁹		Pu 239	2.5 x 10 ⁴	± 1	Am 250	1.5 x 10 ⁵	
Pu 239	1.5 x 10 ⁴		Pu 240	655	± 1	Am 254	9000	
Pu 240	655		Pu 241	14.70	± 1	Am 257	1.80	
U 235	700	± 10	Pu 243	4.8 x 10 ⁴	± 1	Am 261	150.0	
U 238	4.5 x 10 ⁹	± 10	Pu 244	8.2 x 10 ⁴	± 10	Am 265	1.5 x 10 ²	
Am 241	433	± 10	Am 241	433	± 1	Am 267	690.0	
U 235	700		Am 243	10.5	± 10			

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 \rightarrow environ 2 cm de plomb.
Variation de 200 keV autour de 1 MeV \rightarrow environ
4 cm de Pb (discrétisation 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 (η)
✱ 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 additionnels au cycle

Nuclide	Période (ans)	Importance en %	Nuclide	Période (ans)	Importance en %	Nuclide	Période (ans)	Importance en %
Mo 99	65800	100 %	Ho 162	2,9	100 %	Ho 151	66	100 %
Mo 95	10,7		Pu 107	4,15 10 ⁵		Eu 150m	36	
Mo 93	5,5 10 ⁶		Ag 108m	127		Eu 152	13,3	
Mo 90	29,1		Br 121m	19		Eu 154	5,0	
Mo 88	1,3 10 ⁶		Br 120	108000		Eu 155	4,9	
Mo 86	1,2 10 ⁷		I 129	1,6 10 ⁷		Ga 146	93	
Mo 84	1,2 10 ⁷		Co 136	2		Ga 150	1,2 10 ⁶	
Mo 82	16,4		Co 135	2,3 10 ⁶		Tb 157	150	
Mo 80	10300		Co 137	30		Tb 160	150	
Ta 97	1,6 10 ⁶		Sr 140	7,4 10 ⁷		Sr 130	1,10 ⁷	
Ta 95	1,2 10 ⁶	Sr 147	1,1 10 ¹¹	Mo 103	10			
Ta 93	110000	Sr 146	8,10 ¹³	Mo 100m	1000			
Mo 100	1,3	Sr 148	4,10 ¹⁴					

Tableau 2
Produits d'activation

Nuclide	Période (ans)	Importance en %	Nuclide	Période (ans)	Importance en %	Nuclide	Période (ans)	Importance en %
U 23	12,4	100	Am 15	100		Mo 10	1000	100
Mo 10	1,6 10 ⁷		Am 42	13		Mo 93	100	100
U 14	1700	100	Pu 53	2,7	100	Mo 93	1000	100
Mo 42	1,9	10	Co 58	1,3	100			

IV - Systématique d'étude - Priorités d'évaluation

IV.1 - Systématique d'étude

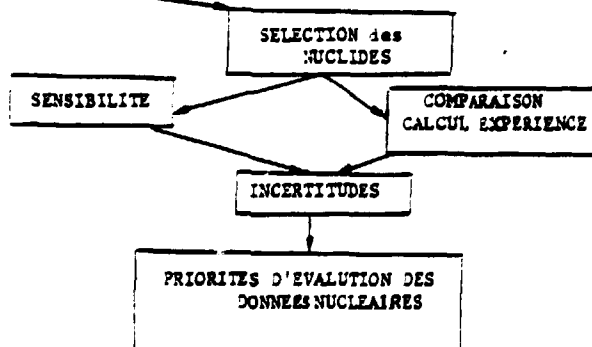
En fonction des contraintes et des grandeurs physiques que l'on doit estimer à chaque poste, on doit définir :

✱ 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.