

institut de physique nucléaire

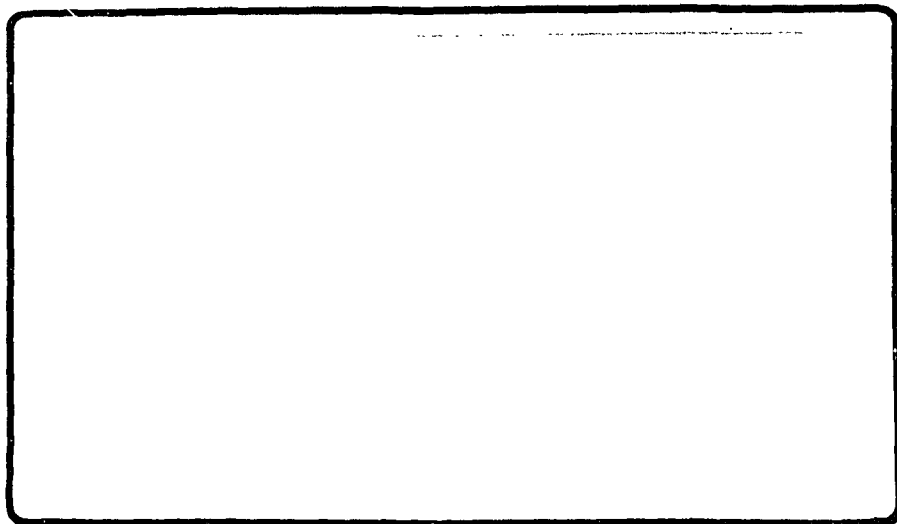
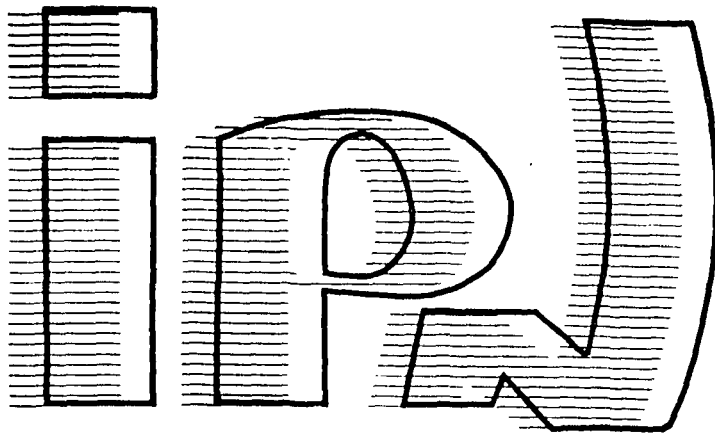
CNRS - IN2P3 UNIVERSITÉ PARIS - SUD

I.P.N. - 91406 ORSAY CEDEX

MML

147

Gestion INIS
Doc. enreg. le : 26/4/95
N° TRN : FR 9 004 114
Destination : I,I+D,D



IPNO DRE 95-07

**IMPACT RADIOLOGIQUE A LONG TERME
DE L'EXTRACTION DU THORIUM**

S. Ménard et J.P. Schapira

ABSTRACT

Like for uranium, thorium extraction produces a certain amount of radioactive wastes, the so called mining residues. Potential long term radiological impact of these residues has been calculated using the recent ICRP-68 ingestion dose factors in connection with the computing code DECAY, developed at Orsay and described in this work. This code solves the well known Bateman's equations which govern the time dependence of a set of coupled radioactive nuclei, as it is the case here for the natural radioactive families.

Monazites will be very likely the minerals to be exploited first, in case of an extensive use of thorium as nuclear fuel. Because monazites contain uranium as well, mining residues will contain not only the descendants of ^{232}Th and a certain proportion of unextracted thorium (taken here to be 5%), but also this uranium, if left in the wastes for economical reasons. One has studied in this respect two typical monazites originated from India and Italy, respectively poor and rich in uranium. In the case of the Italian monazite, uranium is supposed to be extracted at a level of 95%.

If no uranium would be present at all in the mineral, the potential radiotoxicity would strongly decrease in approximately 60 years, at the pace of the 5.8 years period of ^{228}Ra , which becomes the longest-lived radionuclide of the $4n$ radioactive family in the residues. Moreover, there is no risk due to radon exhalation, because of the very short period of ^{220}Rn . For real monazites, such as those studied here, the long term impact is completely governed by the residual uranium (presence of long-lived ^{238}U descendants, ^{230}Th (80 000 years) and/or ^{226}Ra (1600 years)). However, for these two extreme cases studied here, the potential risks remain much smaller (by a factor lying between 20 to 50) than in the usual case of uranium mining. The risk due to radon is also correspondingly reduced by the same factors.

These significant differences between uranium and thorium mining have to be considered in view of some estimated long term real radiological impacts due to uranium residues, which could reach a value of the order of 1 mSv/year, the dose limit recommended for the public by the recent ICRP-60.

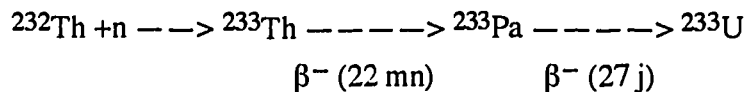
TABLE DES MATIERES

1. Introduction	p. 1
2. Les minerais de thorium	p. 3
2.1. Données sur la composition des minerais	p. 3
2.2. Les déchets radioactifs produits au cours de l'extraction du thorium	p. 4
3. La radiotoxicité à long terme induite par l'exploitation de quelques minerais de monazite	p. 5
3.1. Prise en compte du temps et de l'exhalation du radon	p. 5
3.2. Calcul de la radiotoxicité potentielle	p. 6
3.3. Résultats	p. 7
3.4. Comparaison avec l'extraction de l'uranium	p. 8
4. Normalisation à l'électricité produite	p. 9
5. Conclusion	p. 9
Remerciement	p. 10
Références	p. 11
Figure 1: Evolution de la radiotoxicité potentielle des résidus correspondant à l'extraction de 1 tonne de thorium métal d'un minerai de l'Inde	p. 12
Figure 2: Evolution de la radiotoxicité potentielle des résidus correspondant à l'extraction de 1 tonne de thorium métal d'un minerai de l'Italie	p. 13
Figure 3: Evolution de la radiotoxicité potentielle des résidus correspondant à l'extraction de 1 tonne d'uranium métal	p. 14
Figure 4: Comparaison des radiotoxicités potentielles des résidus de l'extraction d'une tonne d'uranium avec celle d'une tonne de thorium	p. 15
Annexe 1: Les ressources mondiales en thorium	p. 16
Annexe 2: Les 3 familles radioactives naturelles	p. 17
Annexe 3: Périodes et facteurs de dose de la CIPR-68 des radionucléides appartenant aux 3 familles radioactives naturelles	p. 18
Annexe 4: Le programme DECAY	p. 19

IMPACT RADIOLOGIQUE A LONG TERME DE L'EXTRACTION DU THORIUM

1. INTRODUCTION

Le thorium est un radioélément naturel qui peut constituer la base d'un nouveau type de combustible utilisé pour les réacteurs nucléaires de fission. Contrairement à l'uranium naturel, le thorium ne contient aucun isotope fissile suffisamment stable. Cependant, son isotope principal (presqu'à 100% dans la nature) ^{232}Th est fertile et peut fabriquer, par capture d'un neutron suivie de deux émissions β^- , un noyau fissile ^{233}U . Cette propriété permet la mise en oeuvre d'un nouveau cycle thorium-uranium, analogue au cycle classique uranium-plutonium.



L'utilisation du thorium dans les réacteurs nucléaires a fait l'objet de nombreuses études, notamment au Canada et en Inde, et est même considérée dans ce dernier pays, qui possède du thorium et pas d'uranium, comme une option à long terme. L'intérêt du thorium a été examiné à l'occasion notamment de l'exercice international INFCE (International Nuclear Fuel Cycle Evaluation) qui s'est déroulé à la fin des années 70 sous l'impulsion de la nouvelle politique de non-prolifération adoptée par l'Administration Carter aux États-Unis [1]. Il s'agissait à cette époque d'évaluer, sous l'angle de la conservation des ressources et de la non-prolifération, la contribution possible d'un tel combustible à la production d'énergie nucléaire.

Il existe, depuis le début des années 90, un regain d'intérêt pour le thorium, essentiellement en relation avec divers projets de systèmes hybrides, couplant un accélérateur de haute intensité et un réacteur sous-critique. Un des atouts de ces systèmes réside dans leur capacité à transmuter en principe des corps à vie longue produits à l'intérieur des combustibles usés des réacteurs actuels, c'est à dire les actinides (neptunium, plutonium, américium et éventuellement curium) et certains produits de fission à vie longue (^{99}Tc , ^{135}Cs , ^{129}I par exemple). Parmi ces projets, deux au moins proposent le thorium comme combustible. D'une part celui de Los-Alamos [2,3], qui est fondé sur un réacteur thermique à sels fondus, analogue au réacteur MSBR développé dans les années 70 à Oak Ridge. D'autre part un réacteur à neutrons rapides refroidi au

plomb, appelé "Energy Amplifier", est actuellement étudié au CERN par le groupe EET (Energy Emerging Technology) sous la direction de C. Rubbia [4]. L'intérêt du thorium réside ici dans les bonnes performances neutroniques de ^{233}U , notamment en neutrons thermiques, et dans une production très réduite, par rapport au cycle uranium-plutonium, d'actinides transuraniens et notamment de plutonium.

Aussi, le recours au thorium pourrait représenter une option intéressante sous l'angle de l'impact sur l'homme et l'environnement des déchets résultant de sa combustion en réacteur, notamment de ceux à vie longue. Ceci étant, son utilisation dans tel ou tel type de réacteur nécessitera la mise en oeuvre d'un cycle du combustible, dont l'impact radiologique global doit être pris en compte. Il s'agit pour ce faire de déterminer les effets à court et moyen terme résultant des opérations du cycle, sur les travailleurs et le public, puis les effets à long terme liés aux divers types de déchets engendrés. Les principales étapes du cycle qui sont à considérer sont l'extraction du thorium à partir de minerais, la fabrication éventuelle de combustibles solides, le retraitement et le stockage définitif de déchets de haute activité et à vie longue, et ce dans divers scénarios de démarrage de filière (^{233}U n'existe pas à l'état naturel) et de recyclage.

La présente étude porte sur une contribution partielle à une telle évaluation, et se focalise sur les effets radiologiques potentiels à long terme résultant de la première étape, celle de la séparation du thorium à partir de son minerai. S'agissant ici des résidus solides miniers, ces effets sont quantifiés par un indicateur communément utilisé, qui est la radiotoxicité potentielle par ingestion. L'avantage pour cette étude d'une telle approche réside dans la possibilité d'une comparaison entre divers types de minerais, ainsi qu'avec l'extraction de l'uranium, indépendamment de tout scénario normal ou accidentel de retour effectif de la radioactivité à l'homme que l'on doit considérer pour évaluer le risque résiduel. Cette dernière approche est évidemment indispensable, dans un deuxième temps, s'il s'avère que le risque potentiel est jugé important.

Ce travail a été initié dans le cadre d'une collaboration entre des équipes de recherches appartenant à trois laboratoires de l'IN2P3 et le groupe du CERN, dirigé par C. Rubbia, comme partie d'une évaluation plus générale de l'impact à long terme des déchets susceptibles d'être produits par "l'Amplificateur d'Énergie" qui utilise le thorium comme combustible. Cette étude a fait partie du sujet de stage de magistère 2ème année de Stéphanie Ménard [5].

2. LES MINÉRAIS DE THORIUM

2.1. Données sur la composition des minerais

Rappelons que le thorium est assez répandu dans la nature, mais toujours à de faibles concentrations, de l'ordre de 12 g par tonne [6] dans la croûte externe de la terre. Cet élément est un peu moins abondant que le plomb et environ trois fois plus que l'uranium., et intervient en trente cinquième position dans la liste de l'abondance des éléments. Le thorium est réparti d'une manière inégale, les principaux gisements se trouvant en Inde, au Brésil, en Turquie et aux États-Unis (voir annexe 1).

Tab. 1 - Minéraux contenant du thorium comme constituant principal [7]

Minerai	Composition	Teneur en Th (% massique)
Cheralite	$(\text{Th}, \text{Ca}, \text{Ce})(\text{PO}_4, \text{SiO}_4)$	29,5% à 31,5%
Huttonite	ThSiO_4	81,5%
Pilbarite	$\text{ThO}_2\text{UO}_3\text{PbO} \cdot 2\text{SiO}_2, 4\text{H}_2\text{O}$	31%, variable
Thorianite	ThO_2	38,5 % à 93%
Thorite	$\text{Th}(\text{SiO}_4)_x$	7,83% à 58,9%
Thorogummite	$\text{Th}(\text{SiO}_4)_{1-x}(\text{OH})_{4x}$	24% à 58% ou plus

Six minéraux, contenant du thorium comme constituant principal, ont été inventoriés sur terre (voir tableau 1). Parmi ceux-ci, seuls la thorite, la thorogummite (silicates) et la thorianite (dioxyde) sont susceptibles de présenter un intérêt économique.

En dehors de ces six minéraux très riches, la majeure partie du thorium est dispersée en proportion variable et généralement faible, sous forme de solution solide dans d'autres minéraux. Le principal minerai de thorium économiquement exploitable est le phosphate de cérium, la monazite, qui contient des quantités variables de thorium et d'uranium en solution solide. La monazite est essentiellement constituée de phosphate de lanthanides, principalement cérium, lanthane, néodyme et praséodyme (voir tab. 2). La concentration en thorium est habituellement de 9 à 10 % mais certaines monazites australiennes peuvent en contenir jusqu'à 20 % environ. Les compositions de 4 monazites typiques sont données au tableau 2.

On notera que ces minerais sont plus riches en thorium que les minerais d'uranium ne le sont en uranium; en effet les teneurs de ces derniers varient en général entre 0,2% environ à quelques pour-cent seulement .

Tab. 2 - Composition de certaines monazites (% massique) [7,8]

Source minéralogique	UO ₂	ThO ₂	Oxydes de lanthanides	Autres oxydes	P ₂ O ₅
Italie	15,64%	11,34%	35,24%	6,76%	31,02%
Sri Lanka	0,10%	14,32%	53,51%	5,03%	26,84%
Californic	6,95%	4,22%	?	?	?
Inde	0,29% a)	9,80%	?	?	?

a) L'uranium est sous la forme de U₃O₈

La monazite se présente sous l'aspect de sables jaunes ou bruns rouge, sables résultant de l'érosion de roches anciennes, que les eaux ont entraînés (le thorium est environ 1000 fois moins soluble dans l'eau que l'uranium).

2.2. Les déchets radioactifs produits au cours de l'extraction du thorium

La monazite représente la principale source de thorium, et l'on fera l'hypothèse qu'il continuera d'en être ainsi lorsque l'on aura à faire face à un accroissement important de la demande en thorium pour une utilisation nucléaire. Il ne s'agit pas ici de détailler les procédés, assez complexes, qui conduisent à la séparation et à l'élaboration du thorium à un degré de pureté "nucléaire". On remarquera simplement que cette séparation conduit principalement à isoler les terres rares, l'uranium et le thorium.

Le spectre des produits radioactifs constituant les déchets de cette séparation dépendra, d'une part, des performances des différents procédés d'enrichissement en thorium du minerai et de purification des produits résultant, et d'autre part, de la récupération ou non de l'uranium. La proportion de cet élément dans une monazite varie en effet dans une large fourchette selon l'origine du minerai (de 0,1 à 16% dans les exemples indiqués au tab.2). A titre d'exemple, l'uranium du minerai traité aujourd'hui à la Rochelle par Rhône Poulenc pour la production de terres rares, est extrait, le thorium ne l'étant pas. Mais dans un contexte futur d'utilisation importante du thorium, on ne peut exclure, qu'en

dessous d'une certaine teneur, l'uranium soit purement et simplement abandonné dans les déchets pour des raisons économiques.

Aussi, les déchets radioactifs pourraient, au moment de l'extraction du thorium, comprendre, selon les hypothèses mentionnées ci-dessus:

- le thorium non extrait et ses descendants; une perte de l'ordre de 5% est considéré par T.H. Pigford et al. [9], mais des valeurs plus faibles pourraient être envisageables selon les progrès réalisés;

- les descendants du thorium extrait, dont a retiré l'isotope 228 (famille $4n$ du ^{232}Th);

- la totalité de l'uranium et de ses descendants, dont a retiré les isotopes 234 et 230 (famille $4n+2$ de ^{238}U) et 231 et 227 (famille $4n+3$ de ^{235}U) du thorium, si l'uranium est laissé aux déchets;

- l'uranium non extrait et ses descendants, dont a retiré les isotopes 234 et 230 (famille $4n+2$ de ^{238}U) et 231 et 227 (famille $4n+3$ de ^{235}U) du thorium, si l'uranium est en revanche récupéré.

3. LA RADIOTOXICITÉ À LONG TERME INDUITE PAR L'EXPLOITATION DE QUELQUES MINÉRAIS DE MONAZITE

3.1. Prise en compte du temps et de l'exhalation du radon

Selon les hypothèses retenues ci-dessus, l'activité, et donc la radiotoxicité potentielle qui lui est proportionnelle, des descendants des 3 familles radioactives naturelles composant les résidus de l'extraction, change en fonction du temps. En effet l'équilibre séculaire de ces familles, qui conduit à des activités égales à celle de la tête de série, est rompue par l'extraction de tous les isotopes du thorium, et, le cas échéant, de l'uranium.

Il convient, par ailleurs, de tenir compte de l'exhalation du gaz radon dont les descendants peuvent rester piégés avec les résidus solides, ou, au contraire, être dispersés dans l'atmosphère sous forme de poussières ou d'aérosols. Ce dernier cas conduit au "risque radon", qui est dû à l'impact radiologique de ses descendants suite à l'inhalation directe de radon ou de ces poussières et aérosols.

S'agissant du thorium, le ^{220}Rn (voir l'ensemble des 3 familles radioactives naturelles en annexe 2) a une période courte de 55,6 secondes. Aussi décroît-il avant même de pouvoir s'échapper des résidus miniers, de telle sorte que l'ensemble de ses descendants sont

maintenus sur place. Ils sont donc pris en compte pour le calcul de la radiotoxicité des déchets.

La situation est plus complexe dans le cas de l'uranium. Le cas du ^{219}Rn , de période 3,96 secondes et descendant de ^{235}U , est analogue à celui du ^{220}Rn . Par contre, le ^{222}Rn , provenant de la décroissance de ^{238}U , a une période bien plus longue de 3,82 jours et peut, avant décroissance, s'échapper des résidus, en partie ou en totalité: c'est le phénomène d'exhalation du radon. La contribution de ses descendants à la radiotoxicité des déchets sera donc nulle ou totale selon que la totalité du radon s'échappe des résidus ou qu'au contraire y décroisse en totalité. Ces deux situations extrêmes sont considérées dans les résultats ci-dessus, pour tenir compte de la couche de terre ou d'argile qui pourrait être déposée sur ces résidus.

3.2. Calcul de la radiotoxicité potentielle

La radiotoxicité potentielle par ingestion d'un déchet radioactif est égale à la somme des radiotoxicités potentielles de chacun des radionucléides le composant. Celle-ci est le produit d'un facteur de dose F_d par ingestion, exprimé en Sievert par Becquerel (Sv/Bq), par l'activité A de ce radionucléide, exprimé en Becquerel. Le facteur de dose associé à un radionucléide est égal à la dose effective D engagée sur 50 ans par un individu qui aurait ingéré une quantité de ce radionucléide présentant une activité de 1 Bq. On notera que cet indicateur présente l'avantage de ne dépendre en principe que de l'état des connaissances à un moment donné, indépendamment de toute considération réglementaire, comme c'est le cas d'autres indicateurs souvent utilisés dans ce genre d'étude (coefficient de dilution dans l'eau de Hamstra, limite annuelle d'ingestion LAI). Nous avons utilisé les facteurs de dose par ingestion les plus récents, tels qu'ils sont indiqués dans la publication 68 de la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR-68 [10]). Ceux-ci, ainsi que les périodes des radionucléides concernés extraites de la banque de données évaluées de Brookhaven, figurent en annexe 3.

Le calcul de la radiotoxicité potentielle à diverses époques du futur, après extraction d'une tonne de thorium métal, est effectué à l'aide du programme DECAY, développé à l'IPN d'Orsay (annexe 4). A partir d'une composition initiale d'une assemblée de noyaux i , ce programme résout d'une manière exacte, par diagonalisation et inversion de matrice, les équations de Bateman (Eq. 1), qui décrivent l'évolution d'une telle assemblée de noyaux couplés entre eux par filiation radioactive:

$$\frac{dN_i}{dt} = -\lambda_i N_i + \sum_{j \neq i} \lambda_j R_{j \rightarrow i} N_j \quad (1)$$

où N_i représente le nombre de noyaux i à l'instant t , λ_i la constante de désintégration du noyau i , et $R_{j \rightarrow i}$ le rapport d'embranchement du noyau j vers le noyau i .

3.3. Résultats

S'il existait un minerai pur de thorium dont on extrairait la totalité du thorium, la radiotoxicité des résidus miniers deviendrait négligeable au bout d'une soixantaine d'années après extraction, puisque tous les descendants du ^{232}Th ont des périodes courtes. Leur évolution est gouvernée par la décroissance de 5,7 ans de période du ^{228}Ra , qui est la nouvelle tête de série. Après une durée de l'ordre de 60 ans, ce minerai ne présenterait donc qu'un risque tout à fait négligeable pour l'homme. Par ailleurs, en raison de l'absence d'uranium, il n'y aurait aucun risque radon.

La situation se révèle dans la réalité plus complexe. D'abord parce que le rendement d'extraction n'étant pas de 100%, du thorium restera mélangé avec les résidus de celui qui est extrait. Ensuite, parce que les minerais de monazite, source principale de thorium, contiennent de l'uranium et que l'on doit tenir compte des diverses possibilités décrites au §2.2. On doit également prendre en compte la présence du gaz radon conformément à ce qui est discuté au §3.1.

Deux monazites typiques (Inde, Italie), respectivement pauvre et riche en uranium, ont été considérées dans cette étude (voir tab.2). Le minerai d'Italie étant riche en uranium, on a fait l'hypothèse que l'on extrairait l'uranium avec le thorium afin de l'utiliser, alors que pour le minerai d'origine indienne, on a supposé qu'il serait laissé dans les déchets d'exploitation.

Les figures 1 et 2 représentent la radiotoxicité du minerai d'origine, ainsi que l'évolution de celle des résidus, après extraction du thorium métal, et de l'uranium métal pour le cas du minerai d'Italie, en supposant un rendement d'extraction de 95% [9]. Pour comparaison, on a également représenté l'évolution de la radiotoxicité des descendants du ^{232}Th , qui serait représentatif du cas idéal d'un minerai pur de thorium (mais en supposant toujours un rendement d'extraction de 95%).

On observe, pour le minerai de monazite de l'Inde (Fig.1), une fois l'élément thorium extrait, une diminution des doses pour les courbes (2) et (3), diminution due à la

décroissance du très radiotoxique ^{226}Ra qui n'est plus alimenté par la décroissance du ^{230}Th , ce dernier ayant été extrait. A partir de 10 000 ans, l'augmentation de la radiotoxicité correspond à la reconstitution du ^{230}Th et donc à la remise en équilibre séculaire. Que l'on prenne en compte ou non les descendants du ^{222}Rn , la radiotoxicité dépend pour une part non négligeable (selon les diverses époques du futur) de l'uranium, puis du thorium résiduel.

S'agissant du minerai d'Italie (Fig. 2), pour lequel l'uranium a été extrait en même temps que le thorium, l'évolution de la radiotoxicité est gouvernée par la décroissance du ^{226}Ra (voir courbes (2) et (3)), qui devient la tête de série des radionucléides appartenant à la famille naturelle de ^{238}U . Dans ce cas, c'est évidemment l'uranium qui contribue le plus à la radiotoxicité des résidus.

3.4. Comparaison avec l'extraction de l'uranium

On constate, que la radiotoxicité d'un minerai pur d'uranium est environ trois fois plus importante que celle d'un minerai de thorium. Ceci est essentiellement dû au rapport des périodes du ^{232}Th et de ^{238}U . Par ailleurs, la radiotoxicité correspondant à l'extraction d'une tonne d'uranium métal d'un minerai d'uranium a été calculée, à titre de comparaison (Fig. 3). Son évolution est gouvernée par la décroissance du ^{230}Th , de 80 000 ans de période, puis, au-delà de 10^6 ans par la présence de l'uranium résiduel. On observe que la radiotoxicité potentielle des résidus de l'extraction du thorium, quelque soit son origine, reste largement inférieure (facteur de l'ordre de 20 à 50) à celle de l'extraction de l'uranium, du moins jusqu'à des dates très lointaines se situant vers 30 000 ans (voir Fig.4). Au-delà, les radiotoxicités tendent à se rejoindre (voir courbes (1) et (2 bis)).

Les stériles de mine dus à l'exploitation du thorium à partir de monazites typiques présentent donc un risque potentiel très inférieur à celui des résidus de l'extraction de l'uranium, et ce sur une durée très longue (typiquement 100 000 ans). Celle-ci dépend de la teneur en uranium de ces monazites et des rendements d'extraction. Il en est de même du risque radon, directement lié à l'uranium (et non au thorium).

4. NORMALISATION À L'ÉLECTRICITÉ PRODUITE

Nous avons dans cette étude normalisé le risque potentiel à l'extraction d'une tonne de thorium (ou d'uranium). Il faudrait en toute rigueur normaliser ce risque au service rendu, c'est à dire à la quantité d'électricité produite. La quantité d'électricité que l'on peut extraire d'une tonne de thorium (ou d'uranium) dépend principalement de la filière de réacteur dans laquelle ces combustibles sont mis en oeuvre, conjointement ou non, de l'importance de l'auto recyclage des matières fissiles (uranium et plutonium) séparées au retraitement, de l'apport éventuel de matières fissiles extérieures, et évidemment des performances de la filière. Par exemple des progrès significatifs, obtenus sur les taux de combustion et sur le recyclage du plutonium dans les réacteurs à eau ordinaire, ont augmenté permis d'extraire plus d'électricité d'une tonne initiale d'uranium naturel.

On peut faire les remarques générales suivantes, considérant les filières à neutrons thermiques et les filières à neutrons rapides. En régime de quasi équilibre, l'utilisation du thorium en neutron thermique conduit généralement à une moindre consommation qu'avec celle de l'uranium, en raison d'une économie de neutrons plus favorable avec ^{233}U qu'avec ^{235}U , ^{239}Pu ou ^{241}Pu . C'est ainsi que dans la plupart des filières considérées dans la référence [9], une quantité donnée d'uranium naturel peut généralement être remplacée par une quantité plus faible de thorium (ou par des unités de séparation isotopique supplémentaire). Dans le cas des réacteurs à sels fondus au thorium, la consommation en thorium serait nettement plus faible qu'avec des réacteurs à neutrons thermiques à combustibles solides alimentés avec de l'uranium et/ou du thorium [14].

S'agissant des réacteurs à neutrons rapides, les mises en oeuvre des cycles uranium-plutonium ou thorium-uranium sont pratiquement équivalentes (avec une économie de neutrons légèrement plus favorable au premier) et permettent en principe une combustion accrue et équivalente de l'uranium et du thorium.

5. CONCLUSION

Il ressort de ces considérations générales, que l'on peut, en première approximation et en l'absence d'une filière bien précise, effectuer, d'une manière conservatrice, la comparaison uranium/thorium en la rapportant à la même masse. On en conclut à un avantage certain du thorium sur l'uranium en ce qui concerne l'impact radiologique potentiel à long terme provenant des résidus de l'extraction minière. Cet avantage est dû à

une décroissance rapide du risque par ingestion liée à la période de 5,8 ans du ^{228}Ra et à l'absence d'exhalation du gaz radon, liée à la très courte période du ^{220}Rn . Le risque est complètement déterminé par l'uranium présent et par les performances d'extraction du thorium (et éventuellement de l'uranium).

Ces résultats peuvent avoir une certaine importance au regard de l'impact radiologique réel que pourraient présenter à long terme d'anciens sites d'extraction minière de l'uranium (en France, il y a environ 50 millions de tonnes de stériles et résidus[15]). Un tel risque est estimé à partir de scénarios plausibles d'évolution physique du site et d'intrusion humaine. L'impact de tels scénarios pourrait, selon des premières estimations effectuées à l'Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire [15], dépasser 1 mSv par an (limite recommandée par la CIPR-60 pour le public), voire plus en cas d'accident. Une telle valeur est à comparer aux impacts long terme, apparemment plus faibles, des autres activités du cycle nucléaire sur le public.

Contrairement au cas de l'uranium, l'extraction du thorium à partir de minerais peu riche en uranium, imposera des servitudes de surveillance pendant des périodes de temps ne dépassant pas la centaine d'années, une durée qui peut être considérée courte par rapport à celle des sociétés humaines.

REMERCIEMENT

Nous tenons à remercier Mme Monique Roy, de l'Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, pour nous avoir communiqué, avant leur publication, les données de la CIPR-68 relatives aux nouvelles valeurs des facteurs de dose par inhalation et ingestion.

RÉFÉRENCES

- [1] INFCE Summary Volume, AIEA, p. 223, Vienne, mars 1980.
- [2] R. A. Jameson, G. P. Lawrence and C. D. Bowman, Nuclear Instruments and Methods, B68, 474, 1992.
- [3] C. D. Bowman et al., Nuclear Instruments and Methods, A320 (1992), 336-367, 1992.
- [4] F. Carminati et al., Energy Amplifier for cleaner and inexhaustible nuclear energy production driven by a particle beam accelerator, CERN/ISC 93-37 report, 1993.
- [5] S. Ménard, Contribution à l'étude de la radiotoxicité potentielle associée à la mise en oeuvre d'un cycle au thorium, Rapport de stage du magistère de physique 2ème année, Université d'Orsay, 15 avril 1994-31 juillet 1994.
- [6] Actes de la conférence internationale sur l'utilisation de l'énergie atomique à des fins pacifiques, tenue à Genève du 8 au 20 août 1955, volume 4
- [7] Nouveau traité de chimie minérale de Pascal, tome 9, pages 998 à 1003
- [8] L.A. Boatner and B.C. Sales, Radioactive waste form for the future; éditeurs: W. Lutze and R.C. Ewing ; chapter 8; 495-563 (1988)
- [9] T.H. Pigford et C.S. Yang, Thorium fuel-cycle alternatives, EPA 520/6-78-008 report , November 1978.
- [10] Publication 68 de la CIPR (juillet 1994), à paraître.
- [11] F.H. Barthel and F.J. Dahlkamp, Thorium deposits and their availability, IAEA Technical Document 650, Vienne, June 1992.
- [12] Fundamentals of Radiochemistry, J.P. Adloff and R. Guillaumont, CRC Press, Boca Raton, 1993.
- [13] A.G. Elayi and J.P. Schapira, Long-term radiotoxicity of high level wastes and spent fuels produced by light water reactors: impact of burn-up extension and of the use of mixed oxide fuels, Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, 1987, Vol. 8(1), pp. 1-21.
- [14] K. Furukawa et A. Lecocq, Preliminary examination on "the next generation nuclear reactors" in comparison with thorium molten-salt reactor, Tokai University, 23 décembre 1988.
- [15] J.C. Barescut, audition de l'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire par la Commission Nationale d'Evaluation instituée par la loi du 30 décembre 1991, "relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs", Paris, 14 février 1995.

ORIGINE DU MINERAL: INDE

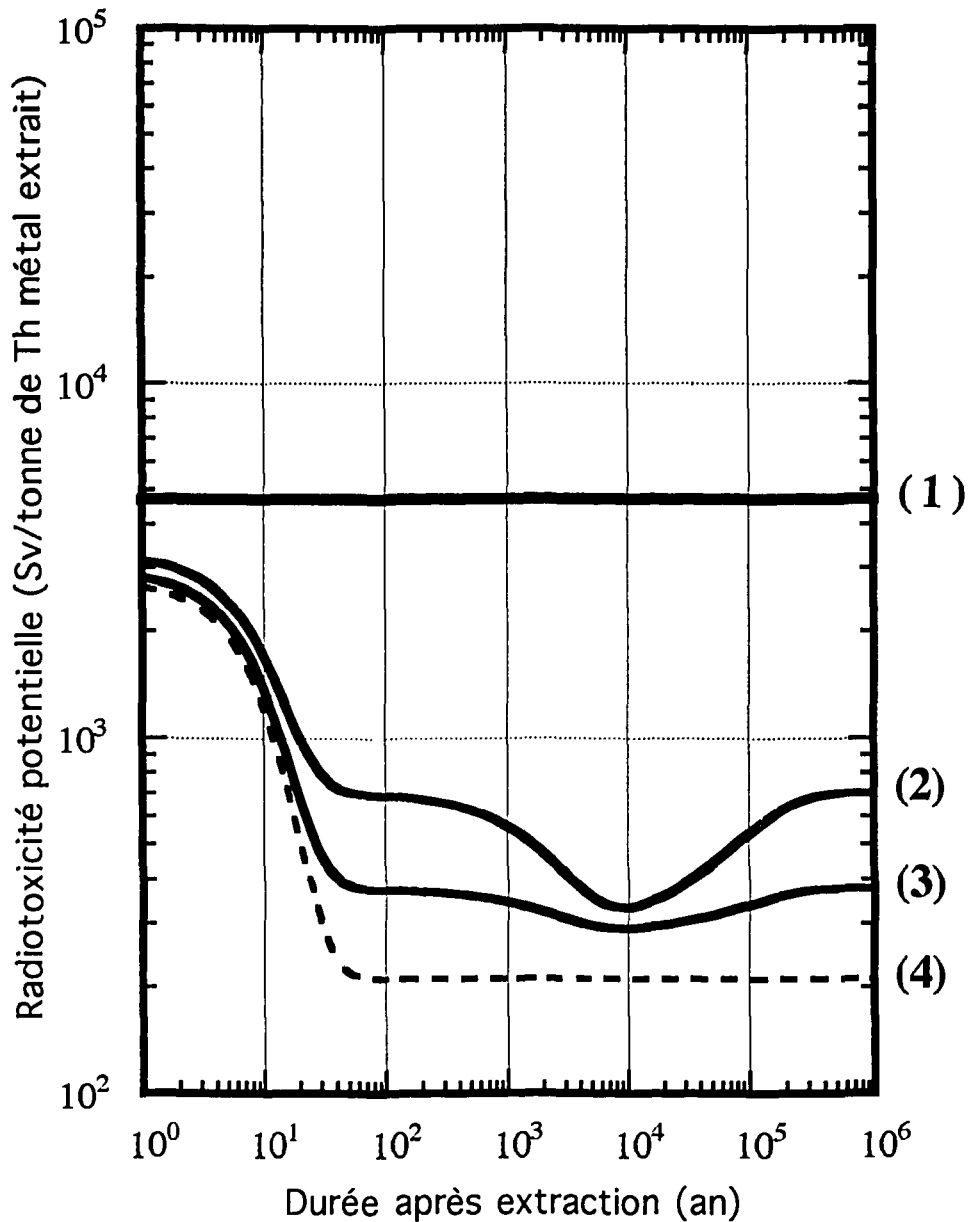


FIGURE 1: Evolution de la radiotoxicité potentielle (dose engagée par ingestion, CIPR-68) des résidus correspondant à l'extraction de 1 tonne de thorium métal d'un minerai de l'Inde, peu riche en uranium (0,29% de U_3O_8 et 9,80% de ThO_2).

Hypothèse: seul le thorium est extrait avec 95% d'efficacité [9]

- courbe (1): radiotoxicité du minerai;
- courbe (2): radiotoxicité des résidus d'extraction, avec fixation totale du ^{222}Rn ;
- courbe (3): radiotoxicité des résidus d'extraction, avec exhalation totale du ^{222}Rn
- courbe (4): radiotoxicité d'un minerai pur de thorium, c'est à dire sans uranium.

ORIGINE DU MINERAL: ITALIE

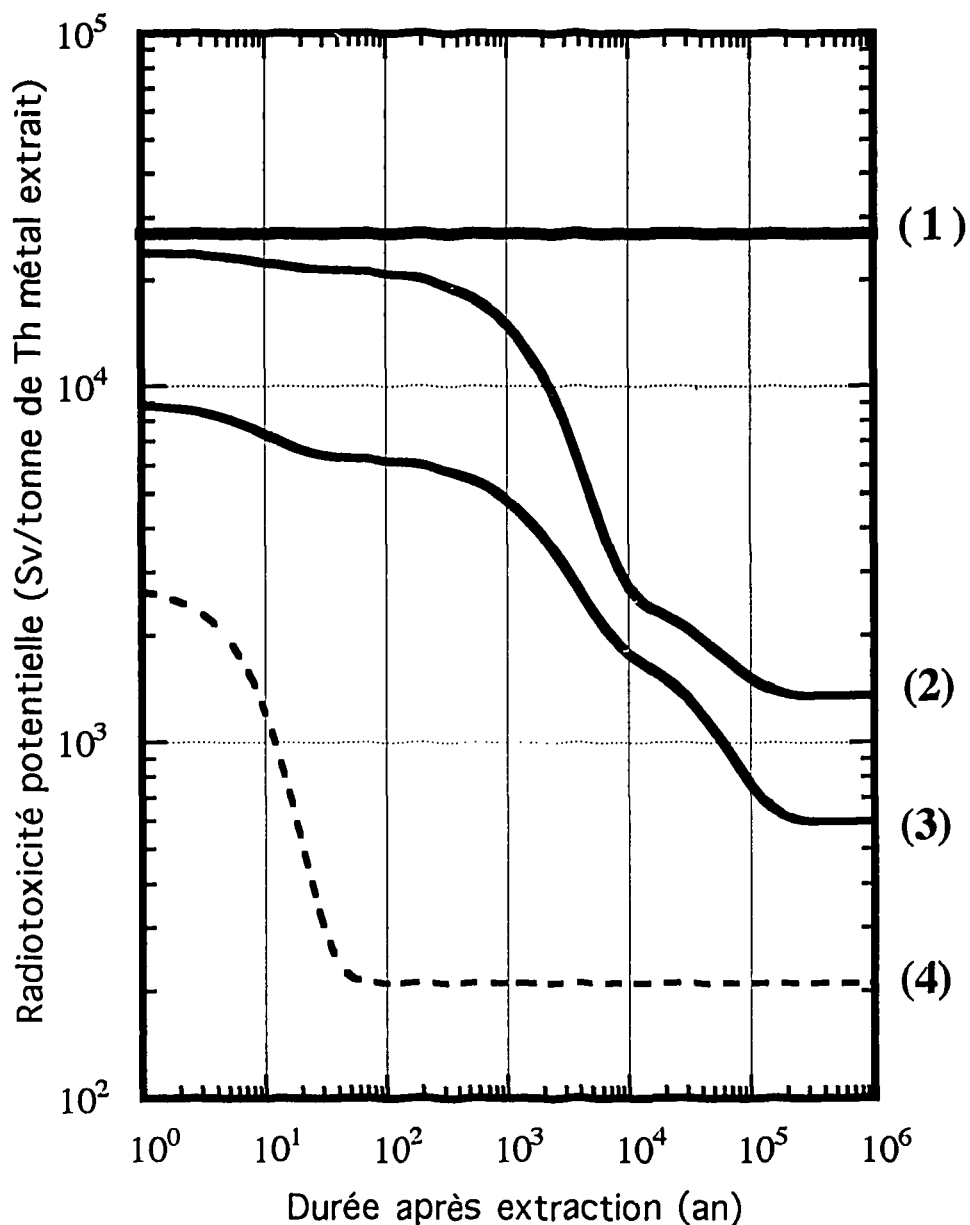


FIGURE 2: Evolution de la radiotoxicité potentielle (dose engagée par ingestion, CIPR-68) des résidus correspondant à l'extraction de 1 tonne de thorium métal d'un minerai de l'Italie, riche en uranium (15,64% de UO_2 et 11,34% de ThO_2).

Hypothèse: le thorium et l'uranium sont extraits avec 95% d'efficacité

- courbe (1): radiotoxicité du minerai;
- courbe (2): radiotoxicité des résidus d'extraction, avec fixation totale du ^{222}Rn ;
- courbe (3): radiotoxicité des résidus d'extraction, avec exhalation totale du ^{222}Rn
- courbe (4): radiotoxicité d'un minerai pur de thorium, c'est à dire sans uranium.

ORIGINE DU MINERAI: URANIUM "PUR"

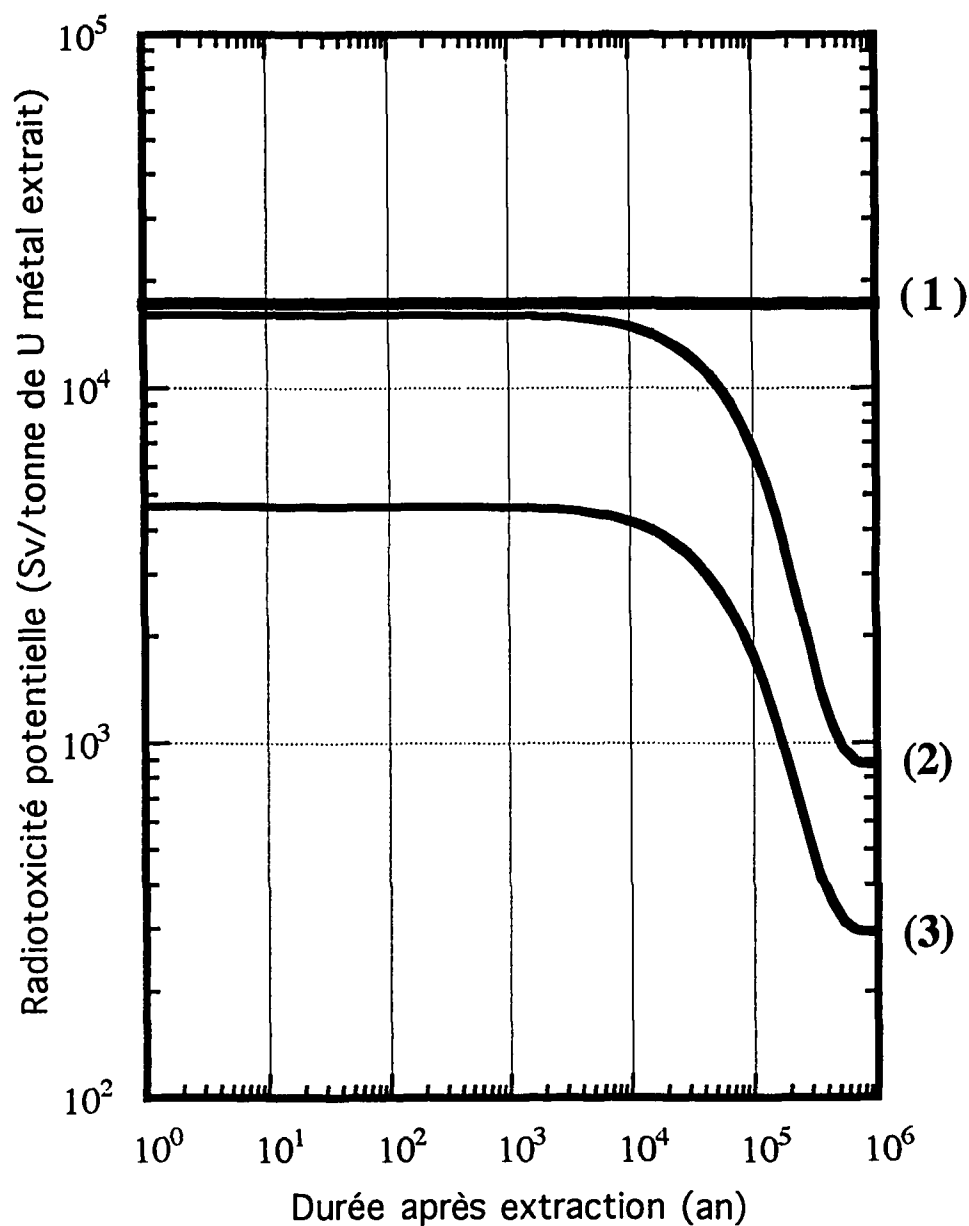


FIGURE 3: Evolution de la radiotoxicité potentielle (dose engagée par ingestion, CIPR-68) des résidus correspondant à l'extraction de 1 tonne d'uranium métal d'un minerai ne contenant que de l'uranium.

Hypothèse: l'uranium est extrait avec 95% d'efficacité

- courbe (1): radiotoxicité du minerai;
- courbe (2): radiotoxicité des résidus d'extraction, avec fixation totale du ^{222}Rn ;
- courbe (3): radiotoxicité des résidus d'extraction, avec exhalation totale du ^{222}Rn

COMPARAISON DE DIVERS TYPES DE STERILES

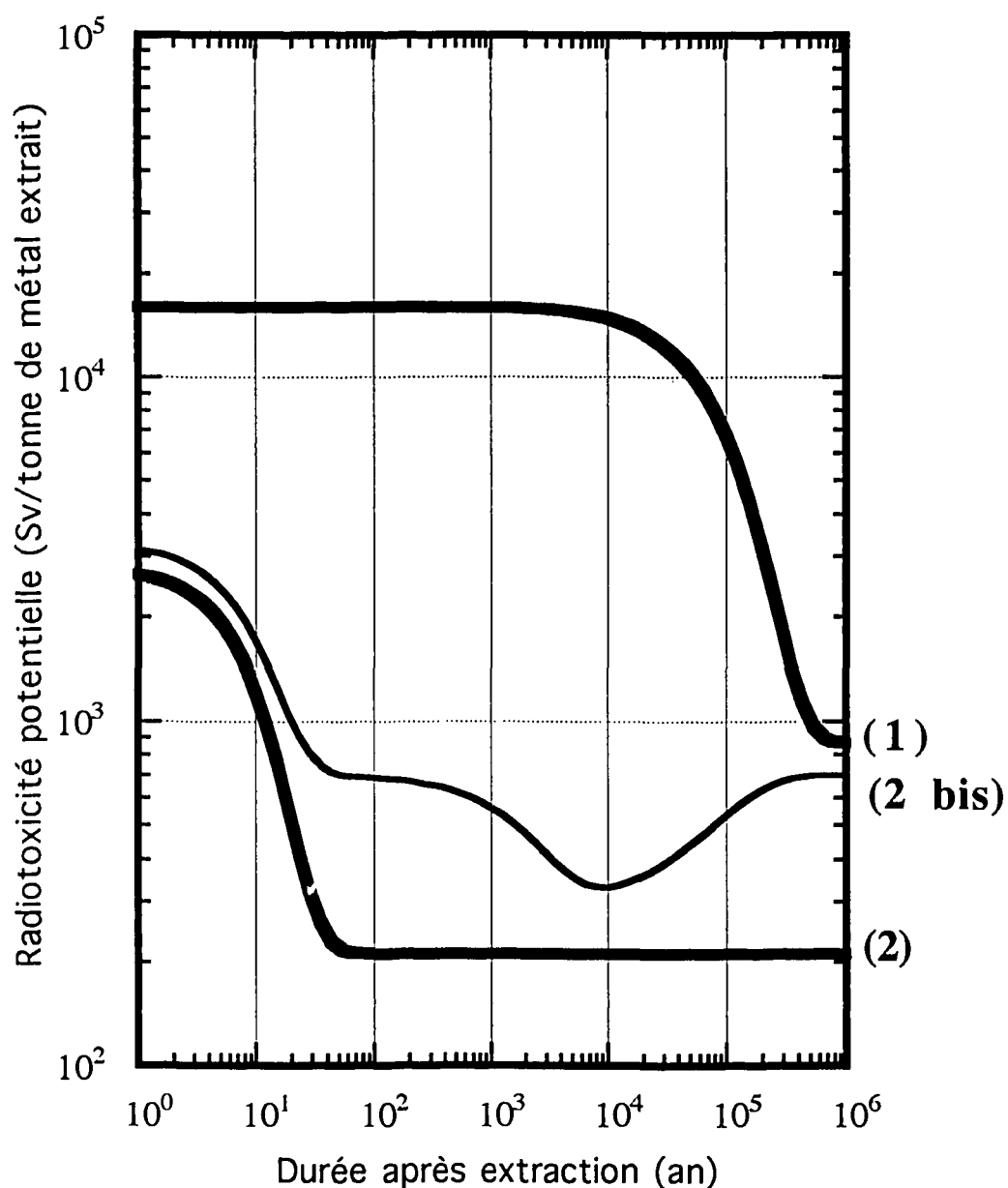


FIGURE 4: Comparaison des radiotoxicités potentielles des résidus de l'extraction d'une tonne d'uranium avec celle d'une tonne de thorium (dose engagée par ingestion, CIPR-68)

Hypothèse: l'uranium et le thorium sont extraits avec 95% d'efficacité

courbe (1): extraction de l'uranium (avec fixation totale du ^{222}Rn);
 courbe (2): extraction du thorium d'un minerai pur de thorium;
 courbe (2 bis): extraction du thorium d'un minerai de thorium, d'origine indienne;

ANNEXE 1: LES RESSOURCES MONDIALES EN THORIUM

Les ressources mondiales en thorium sont moins bien connues à l'heure actuelle que les ressources mondiales en uranium. Le marché du thorium étant peu important, les efforts de prospection dans ce domaine sont en effet restés modestes. La production mondiale annuelle se situe aujourd'hui autour de 400 tonnes de ThO₂.

Les principaux pays (à l'exception des pays de l'Est et de la Chine), disposant de ressources en thorium, figurent au tableau ci-dessous, extrait des données les plus récentes de l'AIEA [11]; elles diffèrent sensiblement (cas du Brésil) des ressources données dans [5].

Tab. 3 - Ressources mondiales en thorium estimées en 1992 [11], pour le monde à économie de marché (en milliers de tonnes)

Pays	RRA	RSE	Total	%
<u>Europe</u>				
Groenland	54	32	86	
Norvège	132	132	264	6,4
Turquie	380	500	880	21,4
Total	566	724	1290	31,4
<u>Amérique</u>				
Brésil	606	700	1306	31,8
Canada	45	128	173	
Etats-Unis	137	295	432	10,5
Total	790	1125	1915	46,6
<u>Afrique</u>				
Egypte	15	280	295	7,2
Niger	?	?	29	
Afrique du Sud	18	?	115	
Total	36	309	479	11,7
<u>Asie</u>				
Inde	319		391	7,8
Total	343	30	403	9,8
<u>Total mondial</u>	1754	2188	4106	100

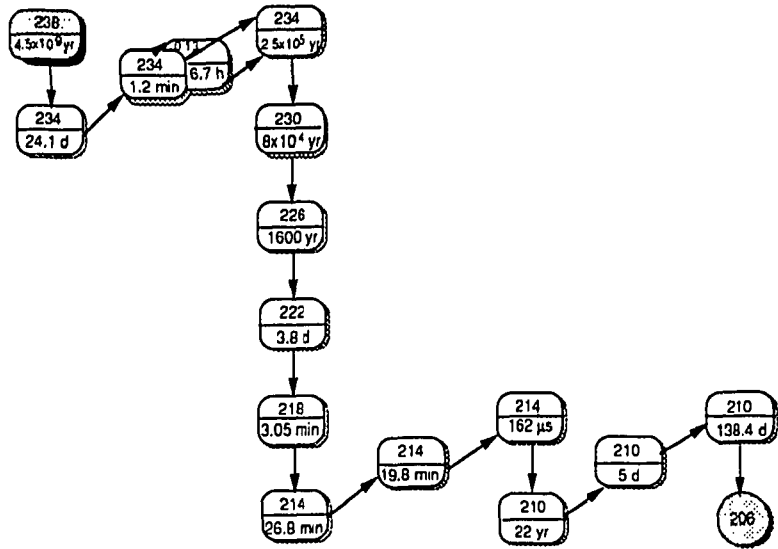
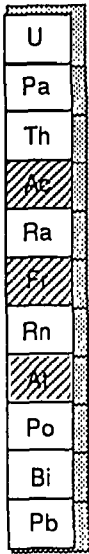
RRA: ressources raisonnablement assurées

RSE: ressources supplémentaires estimées

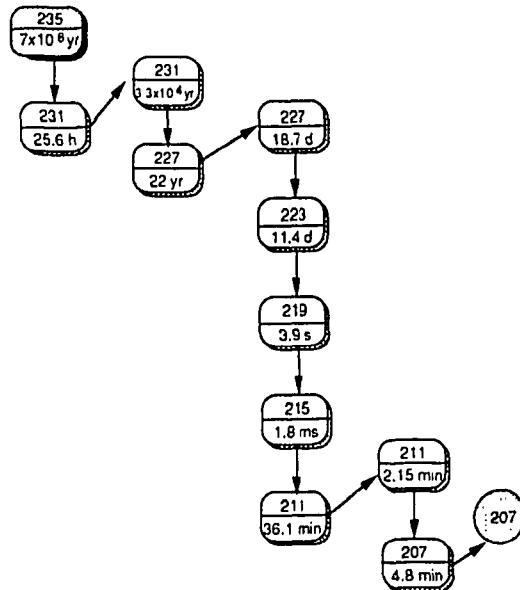
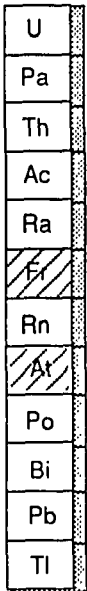
ANNEXE 2:

LES 3 FAMILLES RADIOACTIVES NATURELLES [12]

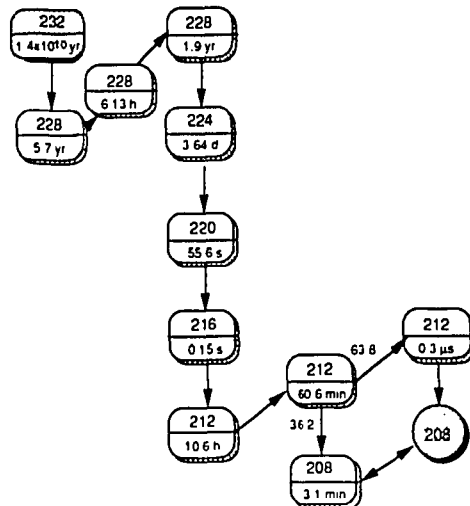
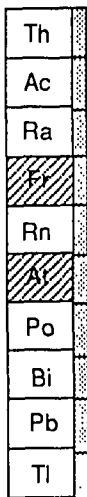
$n + 2$



$n + 3$



$4n$



ANNEXE 3:

PÉRIODES ET FACTEURS DE DOSE DE LA CIPR-68 [10]
DES RADIONUCLÉIDES APPARTENANT AUX 3 FAMILLES
RADIOACTIVES NATURELLES.

Noyau	Période (an)	Facteur de dose (ingestion)(Sv/Bq)
TL-206	0.79890D-05	.000D+00
TL-207	0.90753D-05	.000D+00
TL-208	0.58086D-05	.000D+00
TL-210	0.24734D-05	.000D+00
PB-206	stable	.000D+00
PB-207	stable	.000D+00
PB-208	stable	.000D+00
PB-210	0.22300D+02	.680D-06
PB-211	0.68683D-04	.180D-09
PB-212	0.12146D-02	.590D-08
PB-214	0.50989D-04	.140D-09
BI-210	0.13734D-01	.130D-08
BI-211	0.40715D-05	.000D+00
BI-212	0.11520D-03	.260D-09
BI-214	0.37861D-04	.110D-09
BI-215	0.14460D-06	.000D+00
PO-210	0.37911D+00	.240D-06
PO-211	0.16362D-07	.000D+00
PO-212	0.94812D-14	.000D+00
PO-214	0.52099D-11	.000D+00
PO-215	0.56475D-10	.000D+00
PO-216	0.45979D-08	.000D+00
PO-218	0.58980D-05	.000D+00
AT-218	0.50736D-07	.000D+00
AT-219	0.17757D-07	.000D+00
RN-219	0.12557D-06	.000D+00
RN-220	0.17631D-05	.000D+00
RN-222	0.10475D-01	.000D+00
FR-223	0.41476D-04	.230D-08
RA-223	0.31329D-01	.100D-06
RA-224	0.10027D-01	.650D-07
RA-226	0.16000D+04	.280D-06
RA-228	0.57500D+01	.670D-06
AC-227	0.21773D+02	.110D-05
AC-228	0.70205D-03	.430D-09
TH-227	0.51288D-01	.890D-08
TH-228	0.19131D+01	.700D-07
TH-230	0.75380D+05	.210D-06
TH-231	0.29132D-02	.340D-09
TH-232	0.14050D+11	.230D-06
TH-234	0.66027D-01	.340D-08
PA-231	0.32760D+05	.710D-06
PA-234	0.76484D-03	.510D-09
U -234	0.24500D+06	.490D-07
U -235	0.70380D+09	.460D-07
U -238	0.44680D+10	.440D-07

ANNEXE 4: LE PROGRAMME DECAY

Les équations de Bateman (éq. 1), qui décrivent l'évolution d'une assemblée de noyaux couplés entre eux par filiation radioactive, est un système classique d'équations différentielles linéaires du 1er ordre à coefficients constants:

$$\frac{dN_i}{dt} = -\lambda_i N_i + \sum_{j \neq i} \lambda_j R_{j \rightarrow i} N_j \quad (1)$$

Il existe, à notre connaissance, 3 méthodes principales pour résoudre un tel système:

- par une méthode de type Runge-Kutta, dans laquelle on calcule la solution pas à pas, à partir de l'instant initial $t=0$. Cette méthode, utilisée pour des systèmes d'équations dépourvus de solutions analytiques, n'est pas adaptée à des plages de temps importantes (plusieurs milliers de siècles) généralement considérées dans les calculs de radiotoxicité potentielle à long terme. En effet, la nécessité de prendre un pas en temps largement inférieur à la plus courte des constantes de temps $1/\lambda_j$ intervenant dans le système (1) peut conduire à un nombre de pas en temps prohibitif, et engendrer, dans la pratique, des erreurs de calcul.

- par la méthode classique de transformation de Laplace, qui ramène le système (1) à un système d'équations linéaires. Cette méthode a été par exemple utilisée à l'IPN d'Orsay dans le programme ISODEC [13], à partir d'un algorithme applicable aux chaînes radioactives naturelles et artificielles.

- par la méthode générale de diagonalisation et d'inversion du système (1), qui présente l'avantage d'être générale et généralisable au cas, non traité ici, de l'irradiation. Le système (1) s'écrit sous forme matricielle:

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = A\vec{N} \quad (2)$$

où \vec{N} représente le vecteur colonne des nombres des noyaux et A la matrice des coefficients de (1). Il est facile de voir que $\vec{X}_r e^{\mu_r t}$ est une solution particulière de (2), où \vec{X}_r ($r=1$ à n , n = nombre de noyaux) est un vecteur propre de A associé à la valeur propre μ_r . La solution générale de (2) s'écrit alors:

$$\vec{N} = \sum_{r=1}^n c_r \vec{X}_r e^{\mu_r t} \quad (3)$$

Dans le cas de décroissances radioactives, il est facile de voir que les valeurs propres de (2) sont égales aux constantes radioactives changées de signe:

$$\mu_r = -\lambda_r \quad (4)$$

Cette propriété évidente est due à ce que, pour chaque noyau, aucun descendant figure parmi l'ensemble de ses noyaux ascendants, à l'instar d'un arbre généalogique (ceci n'est plus vrai si l'on introduisait des couplages entre noyaux résultant de réactions nucléaires lors d'irradiation par exemple). Aussi peut on, pour chaque famille radioactive, ranger dans le vecteur \vec{N} les noyaux par ordre descendant (de la tête de série jusqu'au noyau stable final), de telle manière que A soit une matrice triangulaire gauche. Il est alors aisé de voir, en calculant le déterminant caractéristique, que les valeurs propres sont les éléments diagonaux, c'est à dire les constantes radioactives changées de signe. On remarque de plus que la matrice A se décompose en 3 sous matrices irréductibles correspondant chacune aux 3 familles radioactives naturelles.

L'ensemble des noyaux étant complet (on fait figurer dans les équations de Bateman tous les descendants directs de chaque noyau), on a la relation de normalisation suivante:

$$\sum_{j=1}^n R_{i \rightarrow j} = 1 \quad (5)$$

ce qui entraîne (à des fins de vérification) la relation suivante:

$$\sum_{i=1}^n A_{ij} = 0 \quad (6)$$

et donc la relation de conservation évidente:

$$\sum_{i=1}^n N_i = \text{Cte} \quad (7)$$

L'exécution du programme DECAY, basé sur ce formalisme, est très rapide car on peut calculer une fois pour toutes les vecteurs propres \vec{X}_r , chaque calcul se bornant à résoudre le système (3) par rapport aux constantes c_r . Le calcul des vecteurs propres et la résolution de (3) sont effectués à l'aide de la librairie NAG double précision, implantée sur le VAX 6000-510 de l'IPN d'Orsay. Le calcul de l'inventaire des noyaux est alors immédiat à n'importe quelle époque du futur avec la précision requise.

On a incorporé dans ce programme des routines permettant le calcul de grandeurs dérivées du nombre de noyaux, comme les activités, les masses, les doses de rayonnement γ et les radiotoxicités potentielles. Par ailleurs, il est possible d'introduire des "ruptures d'inventaire" à des dates définies, en vue de simuler des opérations de séparation chimique (retraitement), avec la possibilité de suivre dans le temps, et de la même manière, les matières ainsi séparées.

Le programme DECAY pourrait être étendu au cas de l'irradiation. Dans ce cas les familles sont couplées entre elles, et les valeurs propres sont alors distinctes des nouvelles constantes radioactives pour tenir compte de la présence de flux d'irradiation.