



RT	SPRC		04-178	0	C-5H64H	A-NSCEN-01-01		1/87
NATURE	SERVICE	LABORATOIRE	NUMÉRO DOC.	INDICE	IDENT. UNITÉ	ÉLÉMENT D'OTP	CLASSEMENT UNITÉ	PAGE

Rapport Technique

TITRE : La faisabilité scientifique de la transmutation des déchets à vie longue.

AUTEUR(S) : A. ZAETTA, F. VARAINE, Ch. CHABERT, E. DUPONT, J.F. LEBRAT, J. TOMMASI

RESUME : Ce rapport présente les résultats des travaux menés par le CEA au Département d'Etude des Réacteurs/Service de Physique des Réacteurs et du Cycle sur "La faisabilité scientifique de la transmutation des déchets à vie longue", dans le cadre des recherches de l'Axe 1 de la loi de 1991.

Une première partie, sur la base de l'analyse des sections efficaces, traite des performances de transmutation des déchets à vie longue (actinides mineurs et produits de fission) en fonction du spectre neutronique, indépendamment du type de système transmuteur envisagé.

L'avantage intrinsèque du spectre à neutrons rapides tant du point de vue du bilan neutronique, et des taux de transmutation obtenus que de la moindre production d'isotopes supérieurs est mis en évidence. Les limitations de chargement en actinides mineurs de l'ordre de 1 à 2 % en REP et de l'ordre de 3 à 5 % en RNR, liées à la physique du cœur, sont justifiées.

Les conséquences sur le cycle du combustible en terme de puissance résiduelle et de sources (neutron et gamma) sont précisées avec comme graduation en terme de pénalités : neptunium < américium < curium.

Afin de limiter à un niveau acceptable la dégradation des performances de transmutation et l'impact sur les paramètres de fonctionnement et de sûreté des réacteurs, les facteurs minimums de séparation des lanthanides par rapport aux actinides mineurs lors des opérations de traitement du combustible sont, pour un rapport initial Lanthanides/Actinides de 20 issu d'un combustible UOX, les suivants :

- environ 300, pour les options de recyclage en REP

- environ 50, pour les options de recyclage en RNR

Les conclusions tirées de cette étape de faisabilité scientifique soutiennent les choix d'options retenus dans les études de faisabilité technique de la transmutation, qui font l'objet d'un rapport technique spécifique.

Une deuxième partie aborde les aspects de méthodologie de calcul.

Les mesures et évaluations des données nucléaires réalisées spécifiquement sur les déchets à vie longue, qui représentent une composante essentielle vis-à-vis de la qualité et de la pertinence des études de transmutation, sont décrites.

Les différents programmes de qualification : analytique, physique et globale permettent de conclure que la transmutation des déchets radioactifs à vie longue par des neutrons est basée sur une physique bien maîtrisée, qu'il s'agisse du champ neutronique d'un réacteur à fission classique ou du champ neutronique d'un milieu multiplicateur sous-critique alimenté par une source externe.

Les modèles et les données nucléaires utilisés pour les calculs nécessiteront une validation détaillée, pour garantir la fiabilité d'un projet de réalisation. Cependant, ces mêmes modèles et données permettent aujourd'hui d'effectuer des calculs d'orientation, dont les résultats et les tendances sont tout à fait pertinents et crédibles.

MOTS CLES : LOI 1991, DECHETS A VIE LONGUE, TRANSMUTATION, NEUTRONIQUE

	Auteurs	Vérificateur	A.Q.	Emetteur
Nom et visa	F. VARAINE A. ZAETTA	R. JACQMIN	A. BERNARD	A. ZAETTA
Date	24-01-2005	25-01-2005	26-01-2005	26.01.2005

En l'absence d'accord ou de contrat, la diffusion des informations contenues dans ce document auprès d'un organisme tiers extérieur au CEA est soumise à l'accord du Chef de Département.

Cadre de réalisation du document.

DDIN/REDNOC/NSCEN
Rapport Loi 1991

CLASSIFICATION

DR	CC	CD	SD	sans
				X

**DEN****DER****RT – SPRC/04-178****0****2/87**

RÉFÉRENCE

INDICE

PAGE

Indice	OBJET DES RÉVISIONS	DATE	RÉFÉRENCE NATURE – SERVICE – LABO – NUMÉRO DOC
0	Emission initiale		RT-SPRC-04-178

SOMMAIRE

Première partie

1.	Introduction.....	4
2.	Les bases physiques de la transmutation.....	5
3.	Caractéristiques neutroniques des actinides.	7
4.	Bilan en neutrons.	11
5.	Efficacité globale de transmutation en réacteurs.....	13
6.	La physique du cœur.....	21
7.	Incidence du mode de recyclage des actinides.	30
8.	Conséquences sur les grandeurs physiques du cycle du combustible.....	31
9.	Présence de lanthanides dans les actinides recyclés.....	32
10.	Les produits de fission à vie longue.....	33

Deuxième partie

11.	Simulation : démarche et motivation.....	36
12.	Les méthodes de calcul.	37
13.	Les données nucléaires pour la transmutation.	44
14.	La validation des données nucléaires.	51
15.	Effet des incertitudes des données nucléaires sur les paramètres d'intérêt pour la transmutation.....	55
16.	La qualification physique pour le calcul des systèmes hybrides Interprétation de l'expérience MUSE-4.	58
17.	La qualification globale sur des expériences d'irradiation.....	63
18.	Conclusion.	66
	Références thématiques.	69
	Annexe.....	77

1. – INTRODUCTION

L'objectif de ce document est de dresser le bilan des recherches menées pour établir la "faisabilité scientifique de la transmutation". Il s'agit principalement de décrire les phénomènes physiques mis en jeu lors des processus de transmutation des déchets à vie longue et d'en évaluer les performances élémentaires.

Le principe de la transmutation consiste à éliminer les radionucléides à vie longue, en transformant leurs noyaux en noyaux non radioactifs ou à vie plus courte.

Cette transformation est réalisable en bombardant les matières à transmuter par des particules élémentaires comme les photons, les protons ou les neutrons. L'utilisation de photons n'est pas retenue compte tenu du rendement très faible de l'interaction photon-noyau. La transmutation par interaction directe de protons est handicapée par le fait qu'elle nécessite des protons de haute énergie pour vaincre la force de répulsion (entre deux charges électriques du même signe) qui s'oppose à leur rapprochement du noyau. Neutre électriquement, le neutron possède des propriétés plus favorables pour la transmutation. Il est d'autre part présent et disponible en grande quantité dans les réacteurs nucléaires ; il est à ce titre remarquable de constater que la meilleure voie de recyclage des radionucléides est de les réinjecter dans une installation du même type que celle qui les a créés.

La possibilité de cette transmutation nucléaire à l'aide de neutrons était acquise dès avant la loi de 1991. Les études ont été conduites dans le but de déterminer les domaines d'énergie des neutrons les plus appropriés pour la transmutation des actinides mineurs (américium, curium et neptunium) et des produits de fission (iode, césium, technétium) et d'évaluer de façon approfondie les possibilités d'un recyclage en réacteur nucléaire de ces éléments.

Sur la base de l'analyse des sections efficaces, les performances de transmutation des déchets à vie longue en fonction du spectre neutronique, indépendamment du type de système transmuteur, sont évaluées.

Les conséquences du recyclage des déchets, tant du point de vue de la physique du cœur que de l'aspect cycle du combustible sont précisées.

En conclusion, les options de transmutation privilégiées selon l'élément considéré sont proposées.

Pour évaluer par simulation les capacités de transmutation des réacteurs nucléaires, sont utilisés des logiciels de calcul reproduisant les phénomènes physiques se déroulant dans le cœur. Ces logiciels de calcul neutronique font appel à trois grands sous-ensembles dont la qualité conditionne le niveau d'incertitude à affecter aux résultats des calculs :

- des « bibliothèques de données », constituées à partir de grands fichiers internationaux de données nucléaires incluant les sections efficaces,
- des programmes ou codes de calcul intégrant divers modèles physiques et numériques,
- des expériences de qualification.

A partir des outils de calcul existants, développés et qualifiés pour les applications aux réacteurs classiques, des développements et extensions ont été réalisés sur chacun de ces sous-ensembles pour couvrir les spécificités des réacteurs transmutateurs de déchets.

Les nombreuses mesures nucléaires intéressant la transmutation réalisées au cours de ces dernières années, la plupart dans le cadre de collaborations impliquant le CEA, le CNRS, des universitaires, ou dans le cadre de projets internationaux, sont présentées.

Enfin, les différents programmes de qualification réalisés, de l'approche analytique jusqu'au niveau global, sont précisés.

2. LES BASES PHYSIQUES DE LA TRANSMUTATION.

Le principe de la transmutation appliquée au traitement des déchets nucléaires consiste à modifier les noyaux des éléments à vie longue afin de transformer les isotopes concernés en des corps stables ou à durée de vie nettement plus courte ou présentant une radiotoxicité moindre.

Pour ce faire, il est nécessaire de bombarder les noyaux considérés par des particules élémentaires. Plusieurs voies ont été explorées, utilisant respectivement les photons, les protons et les neutrons.

2.1. L'UTILISATION DE PHOTONS : UN RENDEMENT TROP FAIBLE.

En bombardant une cible avec un faisceau d'électrons fournis par un accélérateur, il est possible d'obtenir par effet *Bremsstrahlung* des photons qui peuvent donner lieu à des réactions (γ , χn), c'est-à-dire que sous l'effet du rayonnement gamma incident χ neutrons sont éjectés du noyau. Appliquées à des corps trop riches en neutrons et de ce fait instables comme certains produits de fission (strontium 90, césium 137...), ces réactions aboutissent en général à des corps stables. Néanmoins, compte tenu de leur rendement très faible et du très haut niveau de courant d'électrons nécessaire, qui reste aujourd'hui hors d'atteinte, cette voie n'est pas retenue.

2.2. UNE SOLUTION : PROTONS ET SPALLATION.

L'interaction proton-noyau induit une réaction complexe, appelée spallation qui conduit à la fragmentation du noyau et à la libération d'un certain nombre de particules, dont des neutrons de haute énergie. La transmutation par interaction directe des protons n'est pas rentable, car elle nécessite pour surmonter la barrière coulombienne des protons de très haute énergie (1 à 2 GeV) pour lesquels l'énergie dépensée pour leur production est supérieure à celle qui est récupérée lors du processus qui a conduit à la génération du déchet... En revanche, la transmutation indirecte, en utilisant les neutrons de haute énergie produits lors de la spallation (au nombre d'une trentaine environ, suivant la nature de la cible et l'énergie du proton incident) permet d'améliorer très sensiblement les performances. C'est cette voie qui est à la base des concepts des réacteurs dits hybrides couplant un cœur sous-critique et un accélérateur de protons de haute intensité.

2.3. LE MEILLEUR CHOIX : LES NEUTRONS.

De par l'absence de charge électrique, le neutron est de loin la particule qui satisfait au mieux les critères recherchés. Il est d'autre part "naturellement" présent et disponible en grande quantité dans les réacteurs nucléaires où ils sont produits et assurent le maintien de la réaction en chaîne et produisent ainsi de l'énergie.

L'interaction neutron-noyau conduit principalement à deux types de réactions, la réaction de capture du neutron par le noyau cible et la réaction de fission du noyau. Pour les produits de fission, la capture permet en général de générer, après transformations successives, un corps stable. L'exemple typique est celui du technétium 99 (210000 ans de période) qui par capture neutronique se transforme en technétium 100 de période radioactive très courte (15,8 secondes) aboutissant par désintégration β^- au ruthénium 100 stable (voir figure 1).

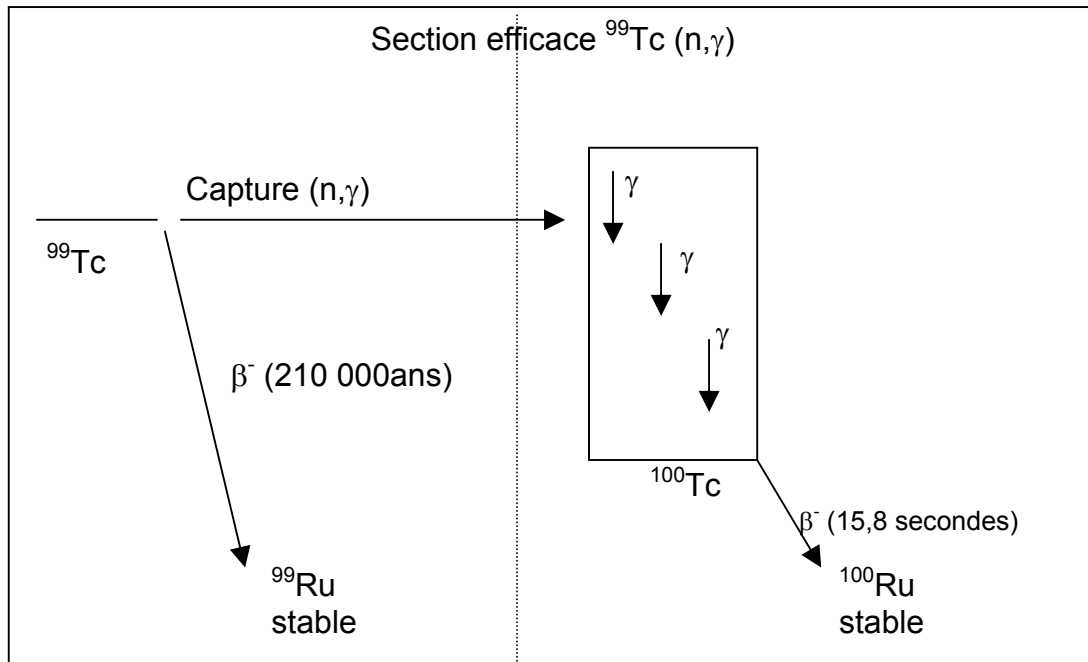


Figure 1 : Principe de la transmutation du technétium 99

Pour les actinides mineurs, cette réaction de capture est à éviter car elle conduit à générer d'autres actinides et donc ne fait que déplacer le problème.

A titre d'exemple, l'Américium 241, de période radioactive 433 ans, se transforme majoritairement, sous irradiation par capture neutronique, en Am 242, qui lui-même devient très rapidement et en majorité, par désintégration β^- , du Cm 242. Ce Cm 242 a une période radioactive de 163 jours.

On pourrait donc penser en première analyse que ce processus de transformation d'un élément à vie longue, l'Am 241, en un élément à vie courte, le Cm 242 est une « bonne » opération.

En fait le Cm 242, se transforme naturellement par désintégration alpha en Pu 238, de période radioactive plus élevée ($T = 88$ ans) et ainsi de suite jusqu'au plomb, comme l'indique la chaîne d'évolution naturelle présentée en annexe.

La comparaison des évolutions de la radiotoxicité en fonction du temps de l'Am 241 et du Cm 242 présentées dans les figures ci-dessous montre que l'opération n'est pas du tout, au contraire, bénéficiaire

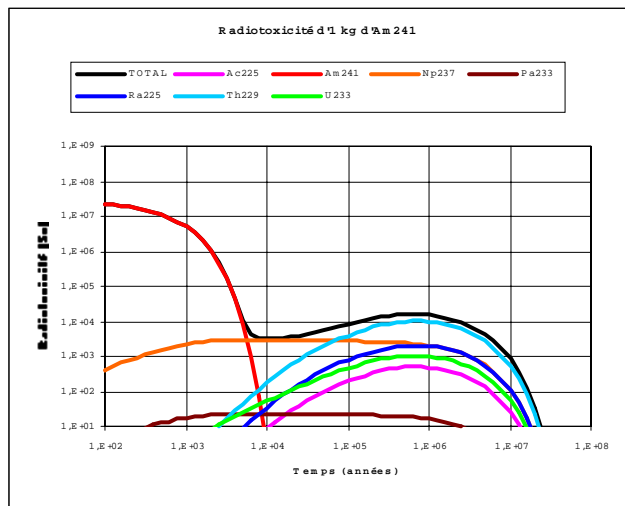


Figure n° 2.A : Evolution de la radiotoxicité d'1 kg d'Am241

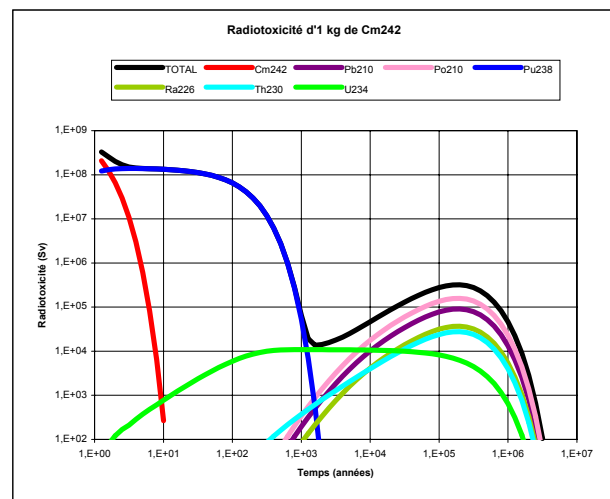


Figure n° 2.B : Evolution de la radiotoxicité d'1 kg de Cm242

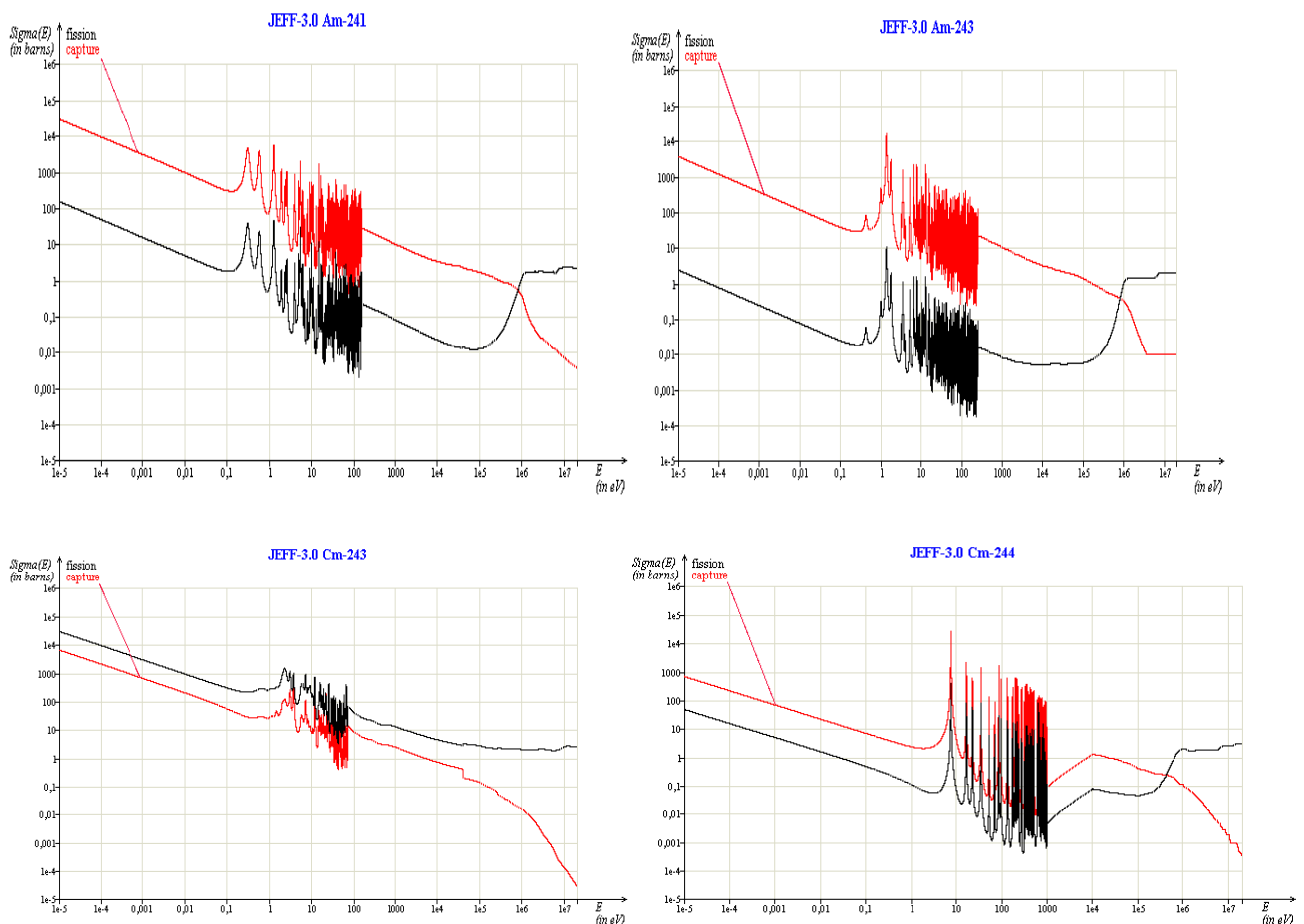
Par contre avec la fission (seulement pour les noyaux lourds), le noyau se scinde, généralement, sous l'action du neutron incident en deux fragments, les produits de fission, qui pour la plupart ont une période radioactive courte les amenant à des corps stables.

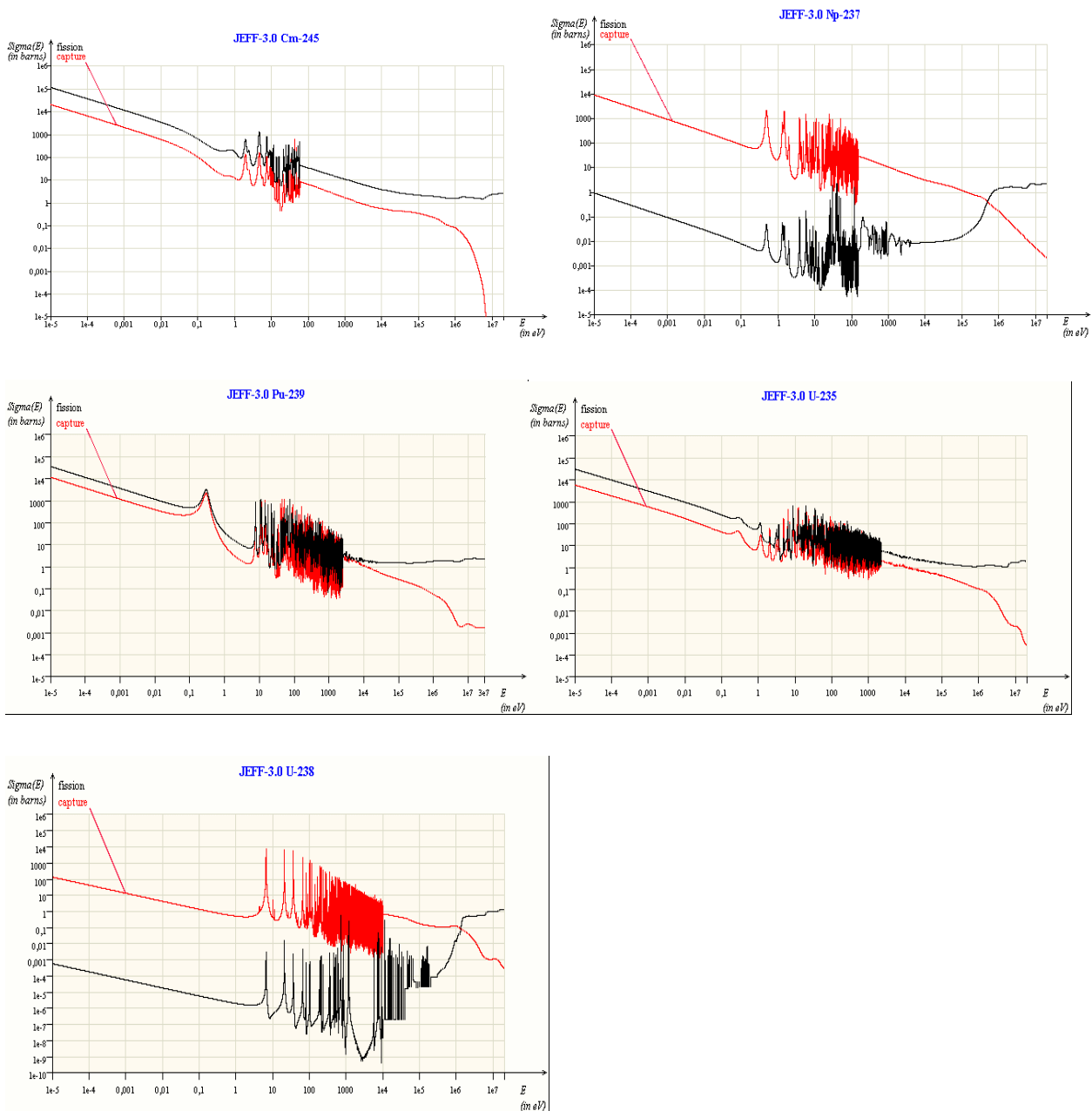
En moyenne, les noyaux provenant d'une fission subissent quatre décroissances radioactives, de période n'excédant pas généralement quelques années, avant de devenir stables. Leur activité et leur radiotoxicité associées ont pratiquement totalement disparu au bout de 200 ans.

C'est bien évidemment cette voie qu'il faut favoriser pour la destruction des actinides, car d'une part la fission conduit donc à des résidus à vie courte puis stables, moins radiotoxiques à long terme que l'actinide détruit, et d'autre part la fission produit des neutrons supplémentaires utilisables pour détruire d'autres déchets ou participer au maintien de la réaction en chaîne tout en produisant de l'énergie.

3. CARACTERISTIQUES NEUTRONIQUES DES ACTINIDES.

La capacité à obtenir un processus de transmutation efficace des actinides dépend donc de la compétition entre les deux réactions de fission et de capture neutronique. La probabilité d'occurrence de chaque réaction est caractérisée par la section efficace de l'isotope considéré. L'analyse de l'allure des sections efficaces correspondantes en fonction de l'énergie du neutron incident est à ce titre essentielle. Ces données, pour les principaux actinides mineurs, extraites de la bibliothèque européenne de données nucléaires JEFF3.0, sont présentées dans la figure 3 suivante :





- Dans la zone thermique (énergie inférieure à 0,1 eV)
 - ❖ Les isotopes 241 et 243 de l'Américium sont très peu fissiles. Les probabilités de capture neutronique sont 100 à 1000 fois supérieures à celles de fission. Il en est de même pour le Np 237. L'isotope pair du Curium, le Cm244, présente également le même comportement, le rapport capture/fission étant plus faible (facteur 10 environ).
Ces isotopes sont dits capturants.
 - A titre de comparaison, les sections efficaces de l'U238 sont présentées sur la même figure. Elles se révèlent être sensiblement inférieures en valeurs absolues à celles des actinides mineurs. Le remplacement de l'Uranium par ces actinides mineurs tendra donc à augmenter le taux d'absorption en zone thermique et donc réduire le niveau de flux neutronique dans cette zone.

- ❖ Les isotopes impairs du Curium présentent des niveaux de capture et de fission plus proches. Les probabilités de fission sont 5 à 10 fois supérieures à celles de capture. Les allures des courbes sont très voisines, en forme à celles de l'U235. Les valeurs absolues de la section de fission se révèlent légèrement supérieures à celles du Pu 239.

Ces isotopes sont dits fissiles.

- Dans la zone épithermique (énergie au-delà de 1 eV) on constate un comportement globalement similaire, si ce n'est une réduction des rapports capture/fission.
- En spectre rapide, dans la zone des résonances et au-delà, la différenciation pour les isotopes capturant entre les probabilités de capture et de fission reste marquée jusqu'au seuil de fission à des énergies de l'ordre du MeV, mais globalement le ratio capture/fission s'en trouve nettement diminué.

Ces constatations se retrouvent quantifiées dans le tableau 1 où sont indiquées les valeurs de sections efficaces moyennes intégrées sur les spectres de neutrons représentatifs définis comme la répartition en énergie de la population neutronique présente dans le réacteur : un spectre « thermique » REP avec un combustible UO₂, un spectre « épithermique » REP avec un combustible MOX et un spectre de réacteur à neutrons rapides. Ces différents spectres sont présentés dans la figure 4 ci-dessous :

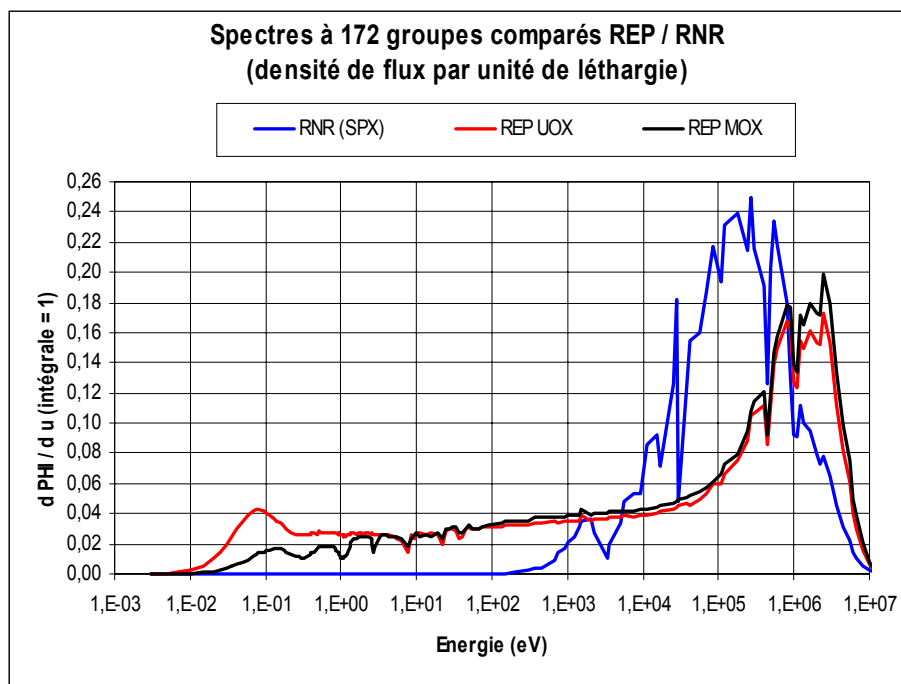


Figure 4 :spectres comparés REP et RNR

Isotope	Réacteur à neutrons lents (REP)			Réacteur à neutrons épithermiques (REP - MOX)			Réacteurs à neutrons rapides (RNR)		
	σ_f	σ_c	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$	σ_f	σ_c	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$	σ_f	σ_c	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$
²³⁵ U	38,8	8,7	0,22	12.6	4.2	0,3	1,98	0,57	0,29
²³⁸ U	0,103	0,86	8,3	0.124	0.8	6,5	0,04	0,30	7,5
²³⁸ Pu	2,4	27,7	12	1.9	8	4,2	1,1	0,58	0,53
²³⁹ Pu	102	58,7	0,6	21.7	12.2	0,6	1,86	0,56	0,3
				0.7	24.6	35,1	0,36	0,57	1,6
				28.5	9	0,3	2,49	0,47	0,19
				0.5	12.3	24,6	0,24	0,44	1,8
	—	—		0.6	18	30	0,32	1,7	5,3
	134	13,6	0,1	38.5	4	0,1	3,6	0,2	0,05
	—	—		0.8	35.6	44,5	0,27	2,0	7,4
							3,2	0,6	0,19
	595	137	0,23	126.6	27.5	0,2	3,3	0,6	0,18
	—	—		0.5	31.7	63,4	0,21	1,8	8,6
				0.96	3.45	3,6	0,58	1,0	1,7
	88	14	0,16	43.1	7.32	0,2	7,2	1,0	0,14
²⁴⁴ Cm	1,0	16	16	1	13.1	13,1	0,42	0,6	1,4
²⁴⁵ Cm	116	17	0,15	33.9	5.4	0,2	5,1	0,9	0,18

Tableau 1 : Sections efficaces des actinides et rapport σ_c / σ_f

De cette analyse élémentaire, il ressort les points suivants :

❖ Pour les actinides Np, Am et Cm244 :

- en REP, où la zone neutronique thermique est privilégiée, ces isotopes se comportent comme des poisons neutroniques. Ils pénalisent le bilan neutronique et se transmutent essentiellement en un autre actinide.

- en RNR, le rapport capture/fission est réduit d'un facteur 5 à 10 quand on passe d'un spectre REP (thermique ou épithermique) à celui d'un RNR. Ces derniers sont donc plus efficaces pour transmuter les actinides mineurs par fission directe.

❖ Pour les isotopes Cm243 et 245, les ratios capture/fission sont similaires en REP et en RNR. Ils se transmutent majoritairement en produits de fission à vie courte.

En conclusion :

- le spectre rapide permet de minimiser les réactions de capture "parasites" et favorise les réactions de fission pour l'ensemble des actinides, ce qui lui confère son caractère "d'omnivore".

- en spectre thermique, les actinides mineurs subissent essentiellement la capture neutronique mis à part le Curium 243 et 245.

Cette analyse reste élémentaire dans la mesure où elle repose sur uniquement l'impact de la première interaction neutronique. Cependant elle met en évidence l'avantage intrinsèque du spectre à neutrons rapides. Il est nécessaire d'examiner l'influence des réactions successives au cours de l'irradiation en réacteurs, pour avoir une réelle évaluation de l'efficacité globale de la transmutation.

Une première approche théorique est de considérer le nombre de neutrons nécessaires pour transformer un isotope initial (et tous les isotopes produits par réactions successives à partir de cet isotope initial) en isotopes stables ou produits de fission.

4. BILAN EN NEUTRONS.

Une méthode d'évaluation du bilan neutronique lors de la transmutation complète de tel ou tel type de noyau a été développée au CEA, afin de quantifier le potentiel de transmutation des différents types de réacteurs à fission, critiques ou sous-critiques, couplés à une source de neutrons. Cette méthode est basée sur le principe simple suivant :

Dans un flux neutronique donné (niveau et spectre du flux), on suit le devenir d'un noyau initial de l'espèce choisie à travers toutes ses filiations possibles sous irradiation, une fission représentant la fin d'une branche de filiations.

Chacune de ces filiations est pondérée par une probabilité d'occurrence qui dépend, par sa position dans l'arbre des filiations issu du noyau initial, des sections efficaces de capture et de fission, elles-mêmes fonctions du spectre neutronique choisi, et des ordres de grandeur respectifs des constantes de décroissance (fixées par la nature) et du niveau de flux.

Enfin, on compte à chaque étape les neutrons consommés ou produits, une capture comptant pour une consommation de 1 neutron et une fission pour la production de $(\nu-1)$ neutrons si ν est le nombre moyen de neutrons émis par fission du noyau considéré. Ces valeurs sont pondérées par les différentes probabilités obtenues précédemment, puis sommées avec les signes adéquats sur l'ensemble des filiations possibles pour donner une valeur globale D de consommation de neutrons pour une fission complète du noyau initial et de ses descendants sous irradiation.

La convention de signe est que $D > 0$ correspond à une consommation de neutrons lors du processus de transmutation, $D < 0$ à une production de neutrons.

On peut appliquer ces considérations à des compositions isotopiques déterminées, représentatives d'un type de réacteur. La condition de faisabilité de la transmutation s'écrit alors: $S \geq D_{\text{comb}} + D_{\text{PF}} + C + L$, S étant la source externe de neutrons ($S=0$ dans un réacteur critique), D_{comb} la consommation de neutrons dans le combustible, D_{PF} par les produits de fission, C par les captures parasites dans les matériaux de structure, et L les fuites de neutrons hors du réacteur. Toutes ces quantités sont exprimées ici en neutrons par fission dans le réacteur.

Puisqu'on a $D_{\text{PF}} > 0$, $C > 0$ et $L > 0$, une condition nécessaire de faisabilité de la transmutation dans un réacteur critique est que D_{comb} soit nettement négatif (gain de neutrons). Comme l'ensemble fuites + captures parasites consomme de l'ordre de 0.3 neutrons par fission dans la plupart des réacteurs, il faudrait même avoir $D_{\text{comb}} \ll -0.3$. On peut aussi définir un « surplus de neutrons » $G = - (D_{\text{comb}} + L + C) \approx - (D_{\text{comb}} + 0.3)$. Les limitations de cette méthode sont principalement que :

- les noyaux sont supposés irradiés dans le même spectre tout au long de leur vie, alors qu'ils peuvent changer d'environnement,
- les noyaux à vie relativement courte (tels que ^{233}Pa , ^{238}Np , ^{239}Np , ^{242}Cm) sont supposés à l'équilibre, alors qu'ils décroissent, lors des arrêts, sur des noyaux fissiles.
- le principe théorique de l'approche suppose une irradiation quasi infinie.

Mais ces limitations sont mineures face à l'avantage de pouvoir comparer d'une manière rapide et quantitative les capacités neutroniques de systèmes très différents à assurer la transmutation de différents types de noyaux.

Le tableau suivant donne les valeurs de D pour des noyaux isolés et pour une composition isotopique type (Cf. tableau A.1 de l'annexe), dans des environnements (spectres et niveaux de flux) variés :

Spectre Niveau de flux	rapide (RNR) 10 ¹⁵ n/cm ² /s	REP N4 UOX		très thermalisé 10 ¹⁶ n/cm ² /s
		10 ¹⁴ n/cm ² /s	10 ¹⁶ n/cm ² /s	
²³² Th	-0.38	-0.20	+1.22	+1.14
²³⁵ U	-0.88	-0.62	-0.71	-0.85
²³⁸ U	-0.62	+0.07	+0.05	+0.01
²³⁸ Pu	-1.36	+0.13	+0.00	-0.13
²³⁹ Pu	-1.46	-0.72	-0.85	-1.07
²⁴⁰ Pu	-0.96	+0.29	-0.06	+0.14
²⁴¹ Pu	-1.24	-0.70	-1.06	-0.86
²⁴² Pu	-0.44	+1.24	+0.51	+1.12
²³⁷ Np	-0.59	+1.08	+0.48	-0.46
²⁴¹ Am	-0.62	+1.07	-0.02	-0.54
^{242m} Am	-1.36	+0.11	-1.00	-1.53
²⁴³ Am	-0.60	+0.29	-0.45	+0.21
²⁴³ Cm	-2.13	-1.89	-2.07	-1.63
²⁴⁴ Cm	-1.39	-0.68	-1.32	-0.48
²⁴⁵ Cm	-2.51	-2.31	-2.26	-1.37
Pu REP std	-1.24	-0.32	-0.57	-0.58
AM REP std	-0.64	+0.90	+0.12	-0.41
Pu+AM REP std	-1.18	-0.20	-0.50	-0.56

Tableau 2 - Quelques valeurs de D (en neutrons par fission)
D>0 Consommation de neutrons, D<0 production de neutrons

On constate que dans les spectres rapides les transuraniens, pris isolément, sont tous des producteurs nets de neutrons au cours de leur irradiation, ce qui n'est pas le cas en spectre thermalisé, même en combinant un haut niveau de flux à un spectre très thermalisé (²⁴⁰Pu, ²⁴²Pu et ²⁴³Am y restent des consommateurs nets de neutrons). L'influence du niveau de flux se fait le plus sentir lorsque des noyaux à vie suffisamment courte pour que leur décroissance radioactive entre en compétition avec leur disparition sous flux sont présents dans les chaînes d'évolution; comme par exemple pour:

- ²³²Th (n,γ) ²³³Th (β⁻) ²³³Pa (β⁻) ²³³U, avec une période de 27 jours pour le ²³³Pa
- ²³⁷Np (n,γ) ²³⁸Np (β⁻) ²³⁸Pu, avec une période de 2.3 jours pour le ²³⁸Np
- ²³⁸U (n,γ) ²³⁹U (β⁻) ²³⁹Np (β⁻) ²³⁹Pu, avec une période de 2.6 jours pour le ²³⁹Np.

La comparaison des valeurs de D pour l'²³⁸U et le ²³²Th montre que le ²³²Th présente un bilan neutronique meilleur que celui de l'²³⁸U dans un spectre et un niveau de flux typiques d'un REP actuel, et moins bon en spectre rapide.

L'ensemble des transuraniens (Pu+AM) est nettement producteur de neutrons dans un spectre rapide, par contre en spectre thermique, on ne peut espérer de gain appréciable de neutrons ($D < -0.3$) que pour des niveaux de flux élevés et des spectres très thermalisés. Le recyclage indéfini en REP des transuraniens, avec des niveaux de flux et de thermalisation voisins de ceux d'aujourd'hui, demanderait un apport de neutrons, soit par un enrichissement accru en ^{235}U (ce qui ne pourrait se faire que pendant une durée limitée) soit par une source externe. La même conclusion vaut pour les actinides mineurs, avec un niveau d'enrichissement ou de source externe accru.

.Pour les PF, la définition de D est un peu différente puisqu'ils ne fissionnent pas, D sera sensiblement le nombre de captures nécessaires pour transformer le PFVL en isotope stable d'un autre élément chimique (pour permettre une séparation aisée) avec quelques corrections de deuxième ordre dues à la compétition entre captures et décroissance. Le paramètre D s'avère être sensiblement voisin entre REP et RNR. Si l'on considère l'ensemble des éléments de PF à vie longue, D est de l'ordre de + 2,5. Si l'on considère uniquement les isotopes à vie longue des PF, la valeur de D est d'environ + 0,9. Une transmutation efficace de ces noyaux demanderait au moins une utilisation intelligente des surplus de neutrons qui peuvent être tirés de la transmutation des Pu+AM, voire le recours à des sources externes de neutrons (systèmes hybrides).

Comme on le voit, les réacteurs à neutrons rapides présentent les caractéristiques les plus favorables (besoins en neutrons, donc en réactivité) pour la transmutation des transuraniens, et en particulier des actinides mineurs. Naturellement, cela ne préjuge pas des difficultés qui pourront être rencontrées par ailleurs: impact sur les paramètres de sûreté du cœur, sur les postes du cycle du combustible, efficacité en termes de réduction de l'inventaire radiotoxique ou d'autres critères encore. Ces questions seront traitées dans la suite de ce document.

5. – EFFICACITE GLOBALE DE TRANSMUTATION EN REACTEURS.

Pour une durée d'irradiation standard en réacteurs, de type REP et RNR, les taux de disparition des éléments considérés, exprimés en pour cent de la masse présente initialement, sont indiqués dans le tableau 3 suivant. Les taux de fission, intégrés sur la durée d'irradiation, sont également indiqués. Ces taux de fission intègrent les contributions à la fission, non seulement de l'isotope père présent initialement, mais également celles des isotopes fils produits au cours de l'irradiation.

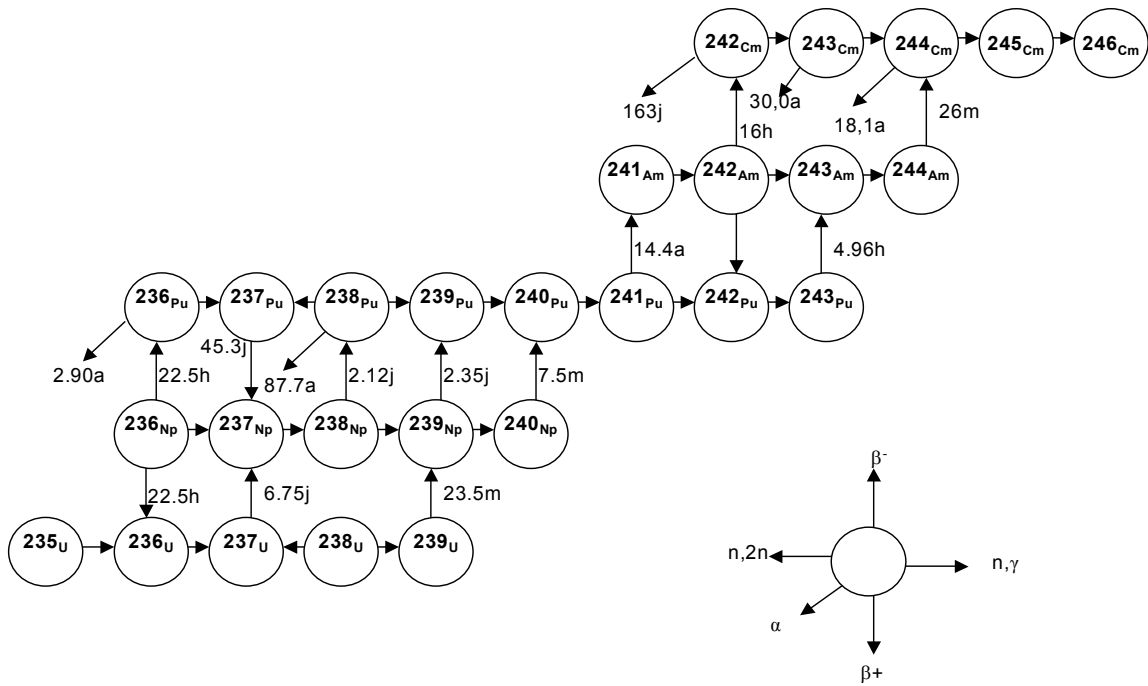
	REP MOX 60 Gwj/t Flux = $2.5 \cdot 10^{14}$ n/cm ² /s Durée irradiation = 1500 JEPN		RNR EFR 140 Gwj/t Flux = $3.4 \cdot 10^{15}$ n/cm ² /s Durée irradiation = 1700 JEPN	
	Taux de disparition (%)	Taux de fission (%)	Taux de disparition (%)	Taux de fission (%)
Np237	46	4	63	24
Am241	70	10	69	24
Am243	65	6	63	15
Cm244	44	16	50	27

Tableau 3 : taux de disparition et de fission pour des irradiations élémentaires.

De l'analyse de ces résultats, il ressort les points principaux :

- dans les conditions standard d'irradiation en réacteurs, il n'est pas possible d'atteindre une disparition complète des éléments considérés en une seule passe d'irradiation. Il est nécessaire de procéder à un multi-recyclage.
- de par les contributions des isotopes fissiles produits au cours de l'irradiation, les rapports intégrés sur la durée d'irradiation des taux de fission sur les taux de disparition, sont augmentés, comparés aux mêmes rapports relatifs au seul isotope initial.
- les taux de fission obtenus en RNR sont supérieurs, dans un rapport 2 à 6 à ceux obtenus en REP.
- en REP, la transmutation des éléments considérés se faisant essentiellement par captures successives, la production d'éléments supérieurs va en être très nettement accentuée.

Les principales voies d'évolution sous irradiation des transuraniens hors fission, sont indiquées dans le schéma suivant :



Pour une disparition par fission de l'isotope initial (ou d'un de ses descendants), il est intéressant de quantifier le taux de production des autres isotopes créés selon la chaîne d'évolution indiquée ci-dessus.

Ces taux, définis comme le rapport entre la quantité des isotopes produits divisée par le nombre de fission, obtenus pour les durées d'irradiation standard en REP et RNR, sont précisés dans le tableau suivant. Ainsi à titre d'exemple, pour la disparition par fission d'un isotope de Np237, il est produit plus de 9 isotopes de Pu238 en spectre thermique.

Noyau père	REP MOX 60 Gwj/t Flux = $2.5 \cdot 10^{14}$ n/cm ² /s Durée irradiation = 1500 JEPN	RNR EFR 140 Gwj/t Flux = $3.4 \cdot 10^{15}$ n/cm ² /s Durée irradiation = 1700 JEPN
	Taux de production	Taux de production
Np237	9,2 Pu238 0,9 Pu239	1,4 Pu238 0,2 Pu239
Am241	4,3 Pu238 0,8 Pu242	1,2 Pu238 0,3 Pu242
Am243	7,6 Cm244 1,4 Cm245 0,6 Pu240	2,6 Cm244 0,3 Cm245 0,3 Pu240
Cm244	1,1 Cm245 0,5 Pu240	0,4 Cm245 0,4 Pu240

*Tableau 4 : Taux de production pour 1 disparition par fission
(cumulée sur le noyau père et ses descendants)*

- Le Np237 se transforme préférentiellement en Pu238, de par la décroissance très rapide du Np238 produit par capture neutronique.
- L'Am241 suit un schéma similaire qui conduit principalement à la production de Cm242 et de Pu242, après décroissance de l'Am242 produit par capture neutronique. Le Cm242 ainsi produit génère à son tour du Pu238.
- L'Am243 se transforme essentiellement en Cm244 qui génère du Cm245 par capture neutronique et du Pu240 par décroissance alpha (pour respectivement 2/3 - 1/3 en spectre thermique et pour moitié-moitié en spectre rapide).

La production de Cm245 à partir de la transmutation de l'Am243 et du Cm244 se révèle donc entre trois et cinq fois plus importante en spectre thermique qu'en rapide.

Un autre indicateur de la comparaison de l'efficacité de la transmutation selon le spectre est le rapport des masses de ²⁴⁸Cm produites par l'évolution de l'américium en spectres neutroniques REP et à neutrons rapides qui met en évidence l'accumulation d'isotopes de nombre de masse élevé dans les conditions de spectre thermique ou épi-thermique des REP. Ce constat se transpose aux éléments de nombre de masse plus élevé comme le berkélium ou le californium formés au cours de la transmutation des actinides mineurs (Am, Cm).

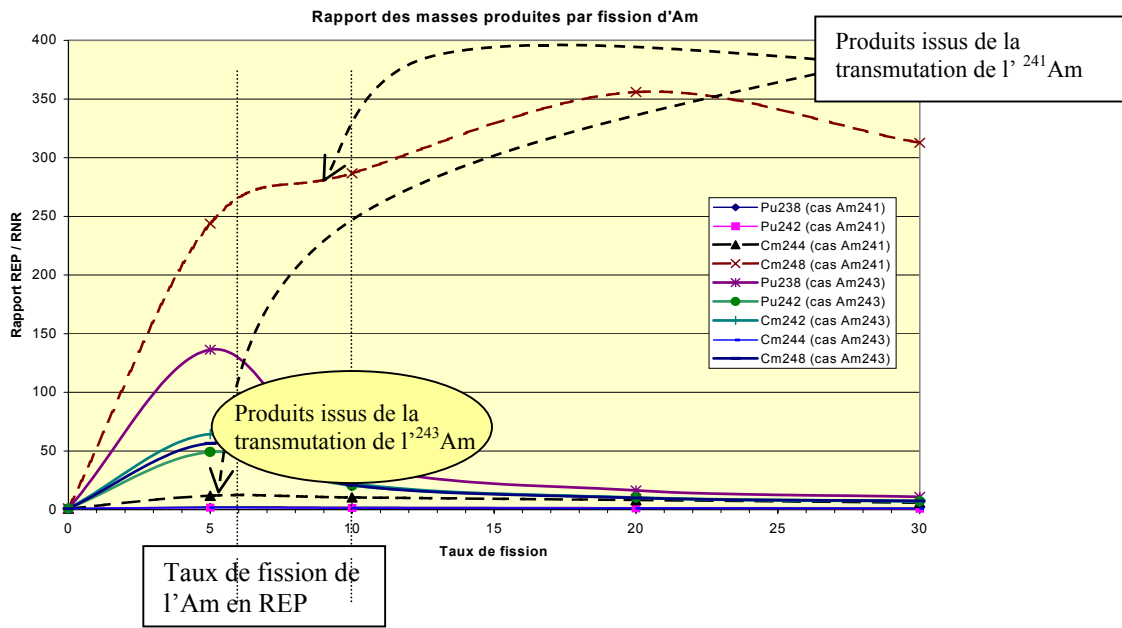
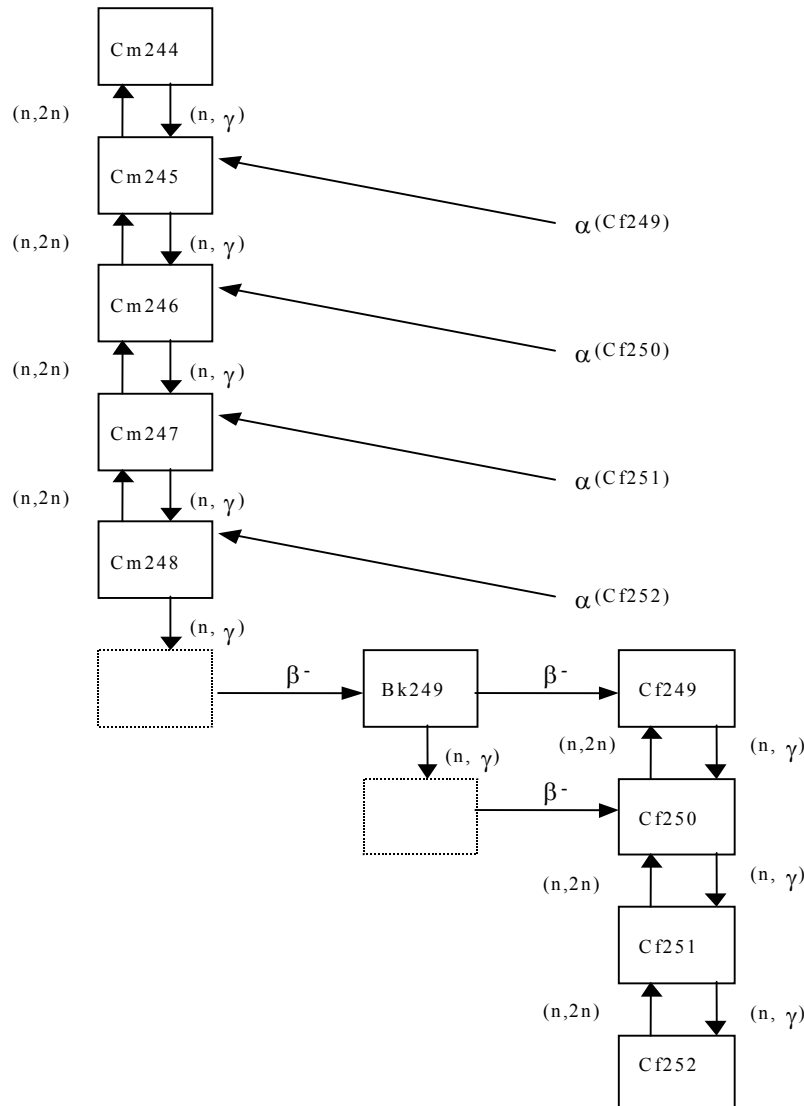


Figure 6 : Rapport des masses (spectre thermique/rapide) des actinides principaux issus de la transmutation du ^{241}Am ou ^{243}Am .

A partir des isotopes supérieurs du Curium, sont générés du Berkélium et du Californium, selon la chaîne d'évolution indiquée ci-dessous :



Les figures ci-dessous illustrent l'évolution des inventaires en Californium 252. L'évolution de l'inventaire en Cm248 est analogue. Les inventaires cumulés présentent un écart de plus de 3 décades entre le recyclage en REP et en RNR (x2000 à dix recyclages).

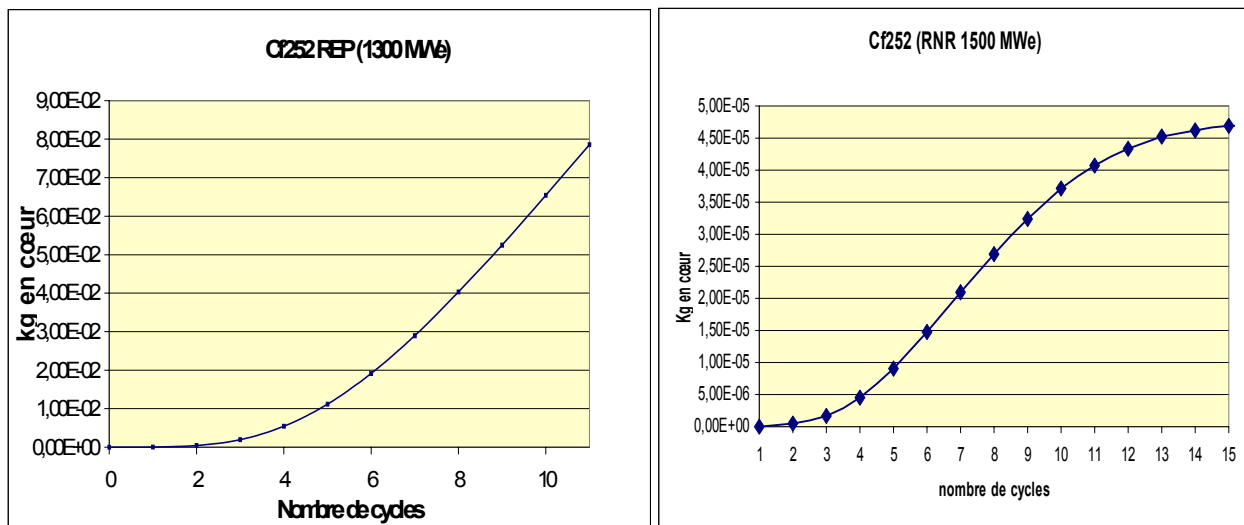


Figure 8 : Evolution des masses de Cf 252 dans le coeur

Ces isotopes, en particulier le Cf 252 (Cf Annexe) sont de très forts émetteurs de neutrons et conditionnent par conséquent les dispositions de radioprotection, et l'adaptation des procédés pour le traitement des combustibles usés et la refabrication du combustible à recycler. A titre d'illustration le tableau 5 suivant indique en relatif par rapport au combustible MOX standard, l'incidence d'un recyclage global des actinides, y compris Bk et Cf, dans un système à neutrons rapides et dans un REP 100 % MOX.


	Neutrons rapides	REP 100 % MOX
Activité	1.2	0.4
Puissance α	1.9	3.0
Puissance β	1.5	0.5
Puissance γ	-	3.4
Source neutronique	3.7	7920

Tableau 5 : incidence du recyclage global des actinides (Pu et actinides mineurs) sur les principaux paramètres dimensionnants pour le cycle du combustible : augmentation en relatif à un combustible MOX standard

Référence REP : combustible MOX à 12% Pu

Référence RNR : combustible EFR MOX (20% Pu)

Ces caractéristiques physiques permettent d'envisager la transmutation des actinides mineurs dans les systèmes à neutrons rapides avec un recyclage intégral des actinides sans accumulation d'isotopes supérieurs, leur concentration tendant vers un équilibre. Ce mode de transmutation n'est pas transposable aux réacteurs à eau pour lesquels il est indispensable de séparer et de ne pas recycler le curium pour éviter l'accumulation constante d'isotopes supérieurs et les incidences sur les opérations du cycle du combustible.

	DEN	DER	RT – SPRC/04-178	0	18/87
			REFERENCE	INDICE	PAGE

Ainsi, les performances de transmutation dans les conditions standard d'irradiation en réacteurs mettent en relief :

- ❖ La nécessité de procéder à un multirecyclage des actinides, de par les performances limitées en terme de taux de fission au cours d'une seule passe d'irradiation
- ❖ La production d'isotopes supérieurs (Cm et au-delà), en spectre thermique, particulièrement pénalisants pour les opérations du cycle du combustible

5.1 CONCEPT DE CIBLE A SPECTRE NEUTRONIQUE LOCALEMENT MODERE EN RNR.

Pour pallier aux difficultés précédemment mentionnées, est-il possible de concevoir un concept de transmutation permettant d'atteindre en un seul passage en réacteur un taux de fission supérieur à 90 % ?

Cela permettrait de mettre directement aux déchets le résidu de transmutation, sans nécessité d'un recyclage et ainsi la production d'isotopes supérieurs ne pénaliserait pas les opérations du cycle du combustible (traitement et re-fabrication du combustible).

Pour atteindre des taux de fission élevés, il faut accélérer le processus de transformation des isotopes capturants en des isotopes fissiles.

Pour ce faire, il faut privilégier un haut niveau de flux neutronique associé à des sections efficaces élevées. Le concept de cibles placées dans des assemblages à spectre neutronique localement modéré en RNR peut répondre à ces besoins :

- Le flux neutronique est très important, supérieur à 10^{15} n/cm²s.
- La thermalisation locale du spectre neutronique est possible grâce à l'introduction d'un matériau modérateur.

Les performances de ce concept sont illustrées sur la figure de la page suivante qui indique l'évolution des compositions isotopiques d'une telle cible, chargée en Am placée au centre du cœur de PHENIX, en fonction de la durée d'irradiation.

On montre qu'un taux de transmutation de quasi 100% de l'Américium est atteint très rapidement (vers 500 JEPN) et que globalement un taux de fission supérieur à 90% est obtenu pour des durées d'irradiation respectant les limites technologiques de tenue de l'assemblage.

Cible d'Américium en spectre modéré placée dans PHENIX :

- Evolution des compositions
- Evolution du taux de transmutation Am et du taux de fission global

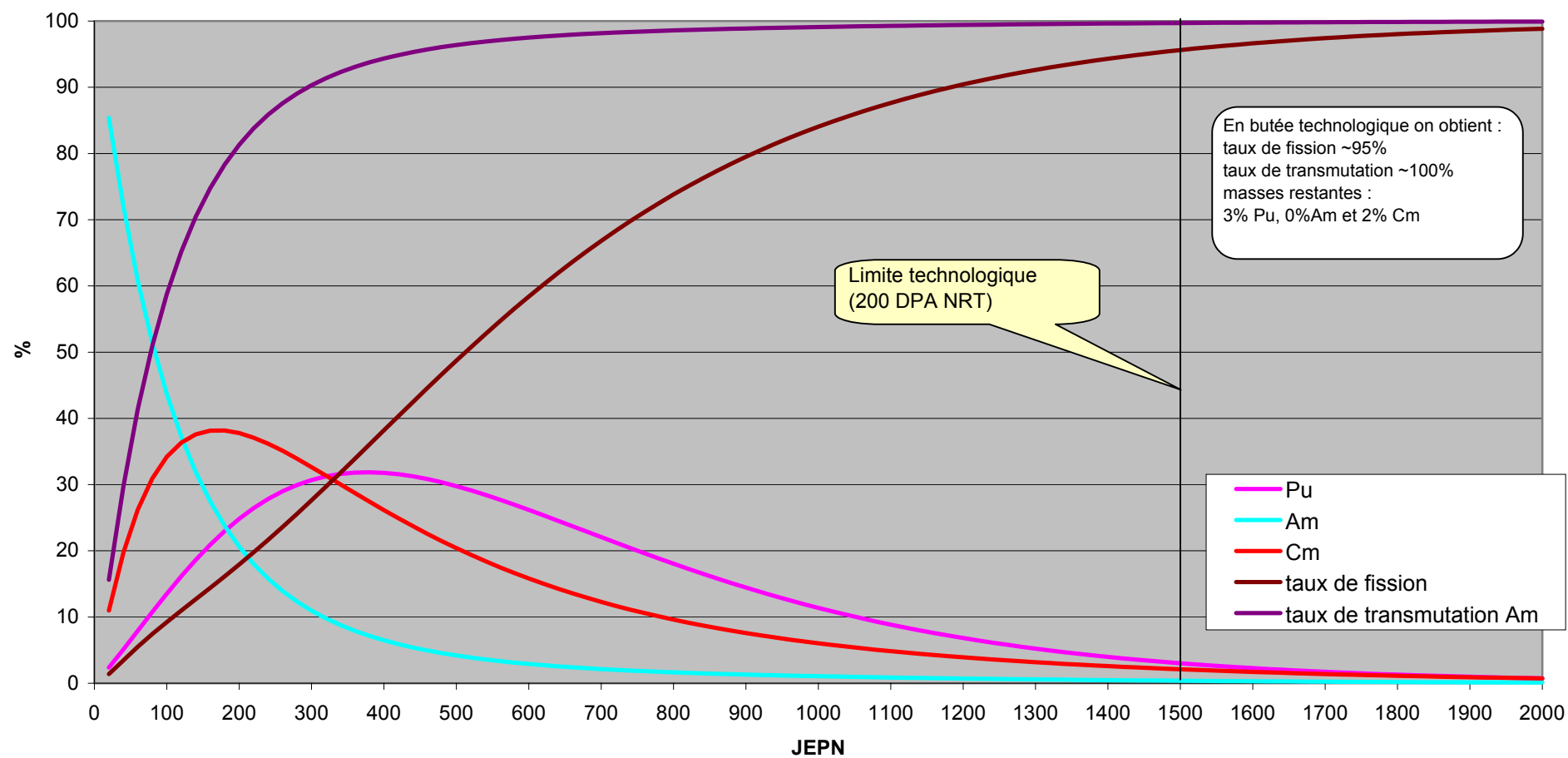
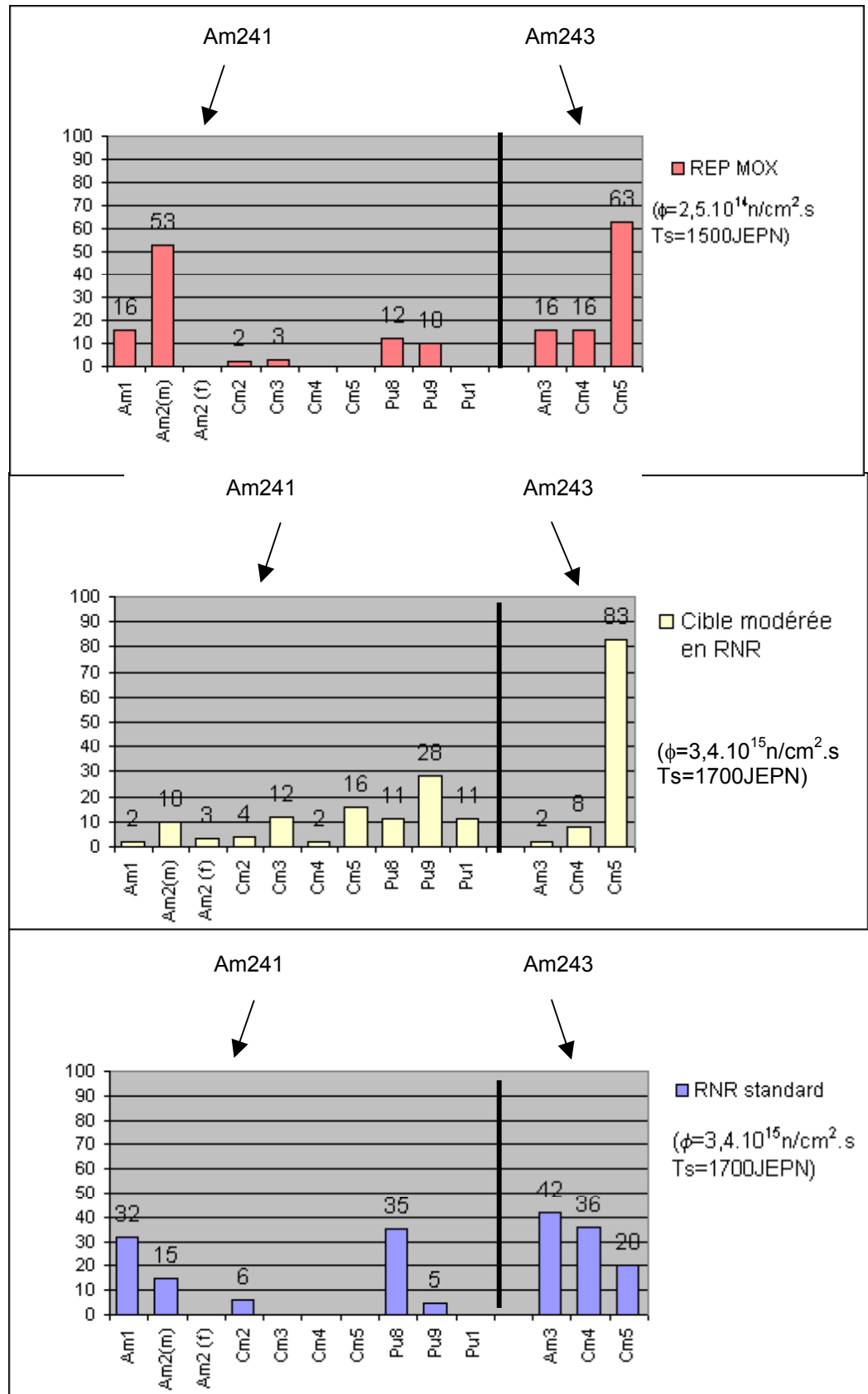


Figure 9

L'analyse des contributions respectives des différents isotopes au nombre total de fissions permet de mieux apprécier la cinétique de transmutation dans les cibles modérées par comparaison à celles s'exerçant en irradiation standard REP et RNR.

Ces contributions pour respectivement l'Am241 et l'Am243 sont présentées dans les histogrammes suivants, elles correspondent pour les cas REP et RNR aux résultats du tableau n°3 :

Contributions relatives au nombre total de fissions durant l'irradiation.



- pour l'Am241 : la voie préférentielle d'évolution sous irradiation correspond à la transmutation de l'Am241 en Am242^f (à 90 %) qui se désintègre très rapidement (période de 16h) en Cm242, qui lui-même produit majoritairement, par désintégration alpha du Pu238 et du Cm243 par capture neutronique.

La voie secondaire de capture de l'Am241 produit, à hauteur de 10 %, de l'Am242^m, qui est très fissile (section efficace de fission de 125 barns en spectre thermique REP MOX).

La fluence (produit du flux neutronique par la durée d'irradiation) atteinte en une seule passe d'irradiation en REP MOX ne permet pas de transmuter de manière quantitative l'Am241 vers les isotopes fortement fissiles du Plutonium et du Curium.

Les fissions restent cantonnées, en nombre réduit, principalement sur l'Am242^m.

En cible modérée, où règne un spectre neutronique voisin de celui en REP MOX l'accroissement d'un facteur 10 de niveau de flux neutronique permet d'accélérer le processus de transmutation.

Le Pu238 a le temps de se transmuter en Pu239 et au-delà. La contribution du Pu239 à la fission devient prépondérante, celle du Pu241 devient non négligeable. Globalement, le Plutonium assure 50 % des fissions.

On constate également que ce haut niveau de flux permet un accroissement sensible de la production de Cm243 à partir du Cm242, en compétition avec la décroissance naturelle du Cm242 vers le Pu238 avec une période de 163 jours. Cet accroissement contribue à augmenter notablement la contribution à la fission du Curium 243 et 245, à la hauteur d'environ 30 % du total.

L'effet d'augmentation du niveau de flux neutronique se retrouve également sur la contribution à la fission de l'Am242^f qui, malgré la compétition avec la désintégration naturelle de période 16 heures, atteint 3 % du total.

En RNR, la compétition entre capture et fission étant beaucoup plus resserrée, la cinétique de transmutation reste beaucoup plus limitée, l'essentiel des fissions se faisant en début de chaîne sur l'Am241 et le Pu238, soulignant de nouveau son efficacité à limiter la production des isotopes supérieurs.

- Pour l'Am243, le processus est plus simple il se transmute essentiellement en Cm244, lui-même produisant le Cm245 très fissile. L'augmentation du flux neutronique en cible modérée permet d'accélérer le processus de transmutation de l'Am243 en Curium 245 et d'assurer très efficacement sa fission à près de 85 % du total.

En RNR, les fissions provoquées directement sur l'Am243 et le Cm244 restent majoritaires, la contribution du Curium 245 n'atteignant que 20 %.

6. LA PHYSIQUE DU CŒUR.

La principale limitation à l'introduction d'actinides mineurs en réacteur de type REP ou RNR est liée à leur impact direct et à l'impact de leurs descendants par transmutation sur les coefficients de réactivité et cinétiques du cœur.

6.1. LIMITATIONS SUR LE CHARGEMENT D'ACTINIDES MINEURS EN RNR.

Les études neutroniques conduisent à situer comme suit les teneurs maximales en actinides mineurs admissibles en systèmes à neutrons rapides à caloporteur sodium pour garder des valeurs acceptables (Cf. figure 11) des effets de réactivité liés à la vidange sodium, à l'effet Doppler (température du combustible), et aux paramètres de cinétique (fraction de neutrons retardés) :

De l'ordre de 3 % des noyaux lourds du combustible pour les cœurs de grande taille du type de Super Phénix ou EFR ;

De l'ordre de 5 % des noyaux lourds du combustible pour les cœurs de petite taille du type PRISM ou Phénix.

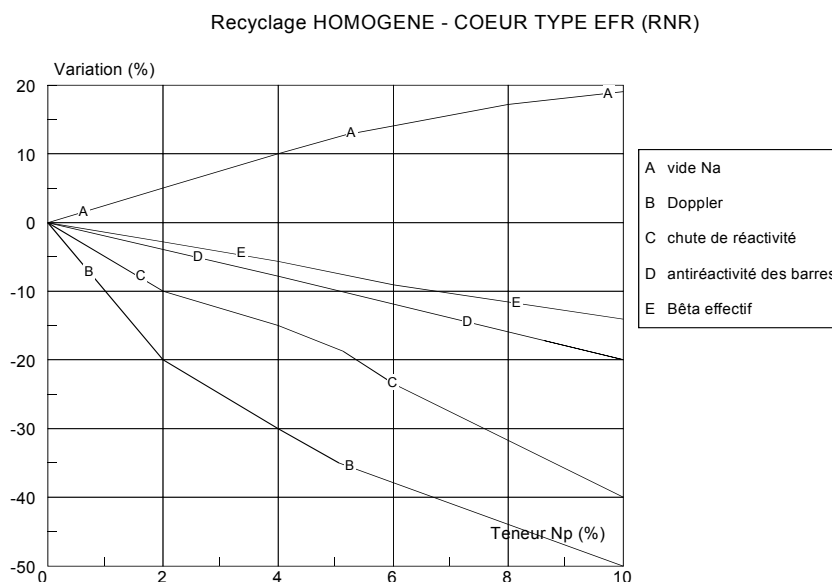


Figure 11 : Variation relative des coefficients de réactivité (température combustible, anti-réactivité des barres et vidange du caloporteur) en fonction de la fraction en actinides mineurs dans le combustible

L'impact du neptunium et de l'américium étant comparables, et celui du curium inférieur, les effets de réactivité indiqués ci-dessus sont aussi représentatifs d'un recyclage global de tous les actinides.

6.1.1. L'EFFET DE VIDANGE DU SODIUM.

L'effet en réactivité lié à la disparition du caloporteur sodium est le résultat de deux composantes antagonistes.

La disparition du sodium, qui a un pouvoir modérateur, induit de ce fait un durcissement du spectre neutronique (augmentation de l'énergie moyenne des neutrons) et facilite la fuite des neutrons vers l'extérieur du cœur.

Le durcissement du spectre se traduit en général par un effet en réactivité positif qui est la résultante des différentes variations des sections efficaces de capture, fission et de

diffusion en fonction de la variation du spectre. Cette composante est appelée centrale ou de spectre.

L'augmentation de l'effet de fuites se traduit, elle, par un effet en réactivité négatif.

Les sections de capture du Np et de l'Am se révèlent nettement plus importantes d'un facteur 6 à 7 à celle de l'U238 (Cf. chapitre 3). La présence dans le cœur du réacteur de quantités d'actinides de type Np ou Am en lieu et place de l'Uranium va donc conduire, lors de la vidange du sodium, à une réduction plus marquée des captures neutroniques.

Les autres contributions à la composante centrale restant, au premier ordre, identiques, de même que la composante de fuites qui est peu modifiée, la résultante est un effet en réactivité positif amplifié en présence de Np, Am dans le cœur comme il est indiqué sur la figure précédente.

Pour les systèmes à neutrons rapides, le passage d'un caloporteur métallique liquide (Na) à un caloporteur gaz (Gas Fast Reactor (GFR)) permet d'éliminer la contrainte sur la teneur en actinides mineurs liée à l'effet de vidange, et de s'en tenir aux limites propres des paramètres de cinétique et de l'effet Doppler. Dans ce cas, cette teneur pourrait être portée à 5%, cette limite étant alors liée principalement à la conception du combustible et au relâchement d'hélium induit par la radioactivité α des constituants du combustible.

Teneur en A.M. dans le Combustible (recyclage homogène)	Cas SFR (EFR) Caloporteur sodium	Cas GFR Caloporteur hélium
0 % A.M.	1.8/2.7 %	0.2/0.24 %
2.5 % A.M.	2.2 / 2.9 %	0.24 / 0.26 %
5 % A.M.	2.4 / 3 %	0.27 / 0.28 %

Tableau 6 : Effet de vidange caloporteur (début de Vie/Fin de Vie) en % de réactivité.

6.1.2. L'EFFET DOPPLER.

Un certain nombre d'effets de température interviennent dans les réacteurs : les variations de réactivité associées aux variations de températures créent des contre-réactions et modifient la cinétique. L'un de ces effets, sans doute le plus important en terme de stabilité du système et donc de sûreté est relatif à la variation de l'absorption résonnante du combustible. Comme il est lié à un problème de vitesse relative entre les neutrons et les noyaux résonnants qui présentent une agitation thermique d'autant plus forte que la température du combustible est élevée, cet effet est appelé « effet Doppler ».

Si l'on tient compte, lors de l'interaction neutron-noyau, de la (faible) vitesse du noyau-cible au moment de l'impact, on modifie – très légèrement – la vitesse relative du neutron par rapport au noyau, c'est-à-dire la vitesse dans le centre de masse. La section efficace qui est fonction de la vitesse relative est donc modifiée. Si la section efficace varie lentement, cette modification est minime et sans aucun doute négligeable ; mais, si l'on se trouve au voisinage d'un pic de résonance, cette faible modification de la vitesse relative peut conduire à une modification très appréciable de la section efficace.

La figure suivante, montre l'incidence de l'effet Doppler pour la première et la principale résonance de l'uranium 238.

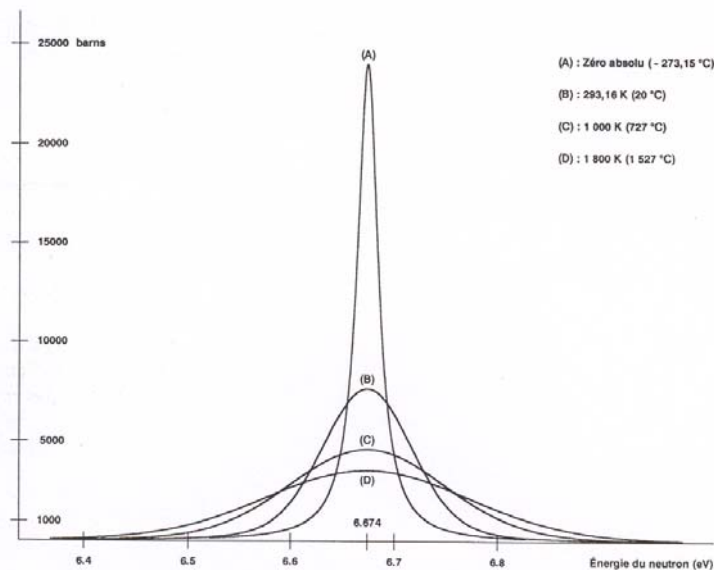


Figure 12 : Elargissement par effet Doppler de la grande résonance de l'uranium 238.

On notera deux caractéristiques essentielles : la résonance s'élargit ; le pic s'abaisse. On peut démontrer que cela se fait à intégrale de résonance (aire sous la courbe) constante. Cela pourrait laisser penser que ces deux modifications à intégrale constante ne causeraient guère d'effet neutronique : mais cela est faux : à cause de l'élargissement de la résonance, et même à intégrale constante, l'intervalle en énergie sur lequel la probabilité de capture excède notablement celle de transfert par diffusion à plus basse énergie (hors de la résonance), ce qui se traduit par une absorption accrue des neutrons dont l'énergie se situe dans cet intervalle élargi.

Ainsi, l'effet Doppler conduit à une augmentation de l'absorption résonnante ; en particulier, à une augmentation de la capture résonnante par l'uranium 238 (capture sans fission) donc à une diminution du facteur de multiplication : c'est la raison pour laquelle le coefficient de l'effet Doppler est en pratique négatif.

En RNR, compte tenu de la distribution des neutrons en fonction de l'énergie (Cf figure n° 4) la contribution à l'effet Doppler se fait essentiellement dans la zone de 100 eV à 10 000 eV avec un pic autour de 1 keV.

En comparant l'allure des sections efficaces de capture du Np et de l'Am à celle de l'U238, (Cf. figure 3), on constate deux choses :

- le domaine des résonances de l'U238 est très large de 10eV à 10 000 eV, ceux du Np et Am sont beaucoup plus limités de 1 à 100 eV. Ainsi la contribution du Np ou de l'Am à l'effet Doppler est très faible car la zone de leurs résonances est trop basse en énergie là où la densité neutronique en RNR est quasi-nulle.
- l'amplitude des sections d'absorption du Np et Am est plus importante sur ce domaine énergétique que celle de l'U238.

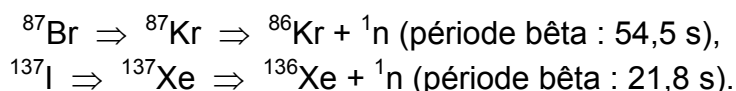
En conséquence, le remplacement d'U238 par du Np ou de l'Am va réduire la densité neutronique dans la zone d'énergie d'intérêt et donc de facto réduire l'effet Doppler de l'U238.

Au total, le cumul des deux effets conduit à réduire la valeur de l'effet Doppler.

6.1.3. LA PROPORTION DE NEUTRONS RETARDES (OU BETA EFFECTIF).

Outre les neutrons prompts, quelques neutrons sont émis de façon retardée par rapport à la fission. Ils jouent un rôle fondamental dans la cinétique des réacteurs. En effet, leur émission peut être décalée par rapport à la fission d'un laps de temps d'ordre de grandeur compris entre la seconde et la minute, c'est-à-dire très long devant la durée de vie des neutrons prompts qui, elle, est de l'ordre de la microseconde.

Il existe une centaine de processus d'émission de neutrons retardés, tous similaires : une décroissance bêta-moins d'un fragment de fission suivie d'une émission neutronique (possible si le noyau obtenu après la décroissance bêta a une énergie d'excitation supérieure à l'énergie de séparation d'un neutron). Le délai entre la fission et l'émission du neutron est dû à la décroissance bêta car l'émission neutronique, si elle se produit ensuite (la désexcitation peut aussi se faire par émission gamma), est quasiment instantanée. Exemples :



Les neutrons retardés sont émis à une énergie un peu plus faible (0,2 à 0,6 MeV) que les neutrons prompts (2 MeV en moyenne).

Les deux voies conduisant aux retards les plus longs correspondent aux deux exemples précédents. Les autres, une centaine de processus similaires, sont, en pratique, regroupées en quatre autres « pseudo-chaînes » (soit, au total, six groupes de neutrons retardés) dont les caractéristiques sont ajustées à partir de résultats de mesures.

Pour un noyau fissile donné, chaque groupe i de neutrons retardés est caractérisé par la proportion β_i , des neutrons retardés de ce groupe parmi l'ensemble des neutrons émis par fission (prompts et retardés), exprimée, en pratique, en pcm.

La proportion totale de neutrons retardés, appelée bêta effectif, est la somme des β_i pondérée par l'importance des neutrons.

Pour un spectre à neutrons rapides, les valeurs de ce β_{eff} pour les différents isotopes d'intérêt sont indiqués dans le tableau ci-après.

Isotopes	β effectif en pcm
^{235}U	670
^{238}U	1680
^{239}Pu	220
^{240}Pu	270
^{241}Pu	490
^{242}Pu	640
^{237}Np	440
^{241}Am	110
^{243}Am	250
^{244}Cm	100
^{245}Cm	130

Tableau 7 : Valeurs des β effectif par isotope pour un spectre neutronique de RNR

Le remplacement d'U238 par du Np ou de l'Am va donc réduire le β_{eff} global du cœur qui est le résultat de la pondération des β_{eff} par la contribution à la fission de l'isotope considéré.

Cette diminution déjà sensible pour des teneurs limitée en actinides mineurs, va être notablement amplifiée pour les cœurs chargés massivement en actinides mineurs, qui peuvent atteindre des valeurs extrêmement basses de l'ordre de 150 à 200 pcm.

L'intérêt des systèmes sous-critiques alimentés par une source externe de neutrons produits par un accélérateur de protons (ADS) réside principalement sur cet aspect.

La réduction conjointe du Doppler et du Bêta effectif associée à une augmentation de l'effet de vidange limite à quelques % la teneur maximale admissible d'actinides mineurs dans le cœur des réacteurs critiques. La marge de sous-criticité offerte par les ADS permet de s'accommoder de pénalités plus importantes sur ces coefficients de réactivité et donc d'accepter des chargements en actinides mineurs plus importants (plusieurs dizaines de %).

6.1.4. LA CHUTE DE REACTIVITE.

L'évolution de la composition isotopique du combustible au cours de l'irradiation en réacteur se traduit par une variation de la réactivité qui se décompose en deux termes :

- ❖ L'un dû uniquement aux variations de la composition isotopique en noyaux lourds du combustible,
- ❖ L'autre dû uniquement aux produits de fission

Le premier peut être positif ou négatif, il dépend du gain de régénération du combustible, traduisant la capacité du cœur à produire plus ou moins d'isotopes fissiles que ceux consommés.

Le second est toujours négatif, de par le caractère uniquement capturant des produits de fission.

Le remplacement de l'uranium 238 par du Np ou de l'Am, tend à augmenter le gain de régénération interne (associé au cœur) et donc réduit la perte ou la chute de réactivité au cours de l'irradiation, ce qui est un effet favorable.

6.1.5. L'ANTIREACTIVITE DES BARRES DE COMMANDE.

Les barres de commande assurent le contrôle de la réactivité du cœur. Ces barres assurent une triple fonction :

- de sûreté : assurer une situation sûre à l'arrêt
- de pilotage : pour optimiser la distribution de puissance dans le cœur
- de compensation : vis-à-vis de la perte de réactivité due à l'évolution isotopique au cours de l'irradiation et aux variations de réactivité liées à la montée en température et en puissance.

Elles sont constituées de matières très absorbantes, typiquement du carbure de bore (B_4C), qui capture les neutrons essentiellement à basse énergie.

L'introduction d'actinides mineurs en lieu et place d'Uranium 238 va avoir tendance, comme on l'a vu, à durcir le spectre neutronique, en augmentant la valeur moyenne de l'énergie des neutrons, d'où une réduction de l'efficacité des barres.

6.2. – LIMITATIONS SUR LE CHARGEMENT D'ACTINIDES MINEURS EN REP.

Les études neutroniques conduisent à situer comme suit les teneurs maximales en actinides mineurs admissibles en REP pour garder des valeurs acceptables aux coefficients de réactivité (température et densité du modérateur, température du combustible, efficacité du bore soluble) :

- Moins de 1 % pour les rapports de modération inférieurs à 2 ;
- De l'ordre de 1 % pour les rapports de modération de 2, et de 2 % à 3,5 % pour les rapports de modération de 3 à 4, avec un combustible MOX (cf. figure ci-dessous).

D'autre part, l'introduction des actinides nécessite une augmentation de l'enrichissement en ^{235}U ou de la teneur en Pu pour maintenir la même gestion que celle du combustible de référence UO_2 . Ces valeurs d'enrichissement ou de teneur dépendent, au deuxième ordre, de la composition isotopique des différents actinides.

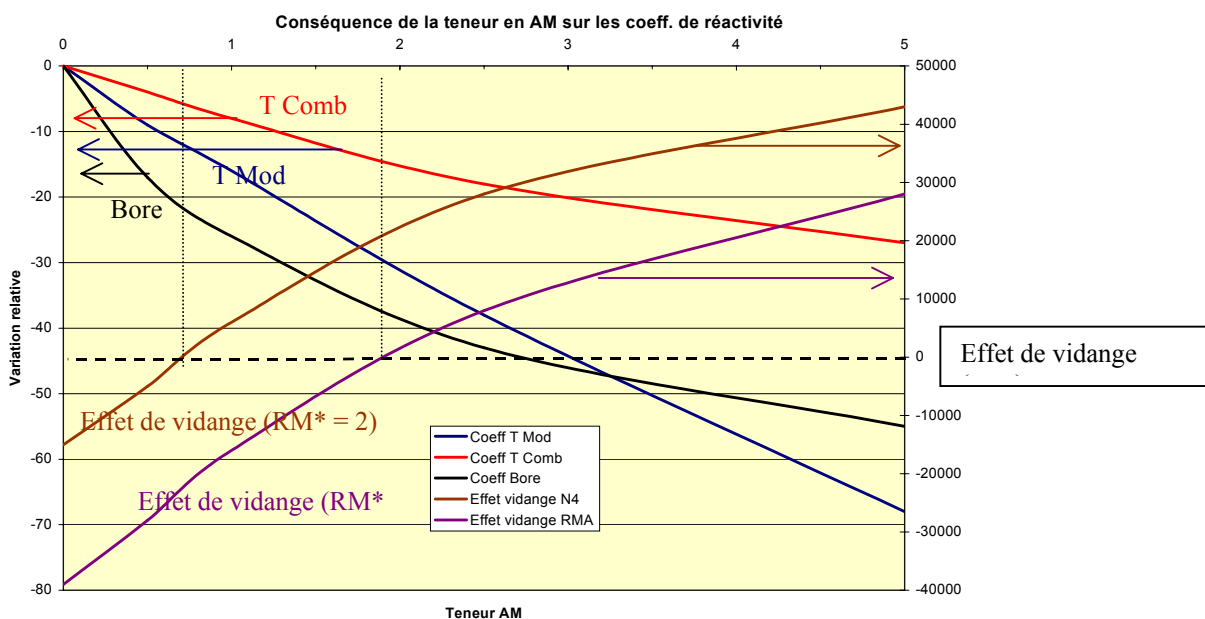


Figure 13 : Variation relative (en %) des coefficients de réactivité (température modérateur et combustible, effet du bore) en fonction de la fraction (en %) en Actinides Mineurs dans le combustible.

* RM : Rapport de modération V_m/V_f : standard = 2 et RMA = 3.

T Comb : coefficient de réactivité lié à l'effet de température du combustible.

T Mod : coefficient de réactivité lié à l'effet de température et de densité du modérateur.

Bore : coefficient de réactivité lié à l'efficacité du bore soluble.

Une réduction en amplitude des coefficients de température ou de l'efficacité du bore indique une baisse des effets de contre-réaction. L'effet de vidange en réactivité doit rester négatif, imposant une teneur maximale en actinides mineurs de l'ordre de 0,8 % dans un combustible MOX pour un rapport de modération de 2 ou de 1,9 % pour un rapport de modération de 3.

Globalement, l'introduction des actinides mineurs en REP a pour principal effet la diminution de l'effet de contre-réaction lié à la vidange du caloporteur et la baisse de l'efficacité du bore (moyen de contrôle).

6.2.1. IMPACT SUR LA PHYSIQUE DU CŒUR DES REACTEURS A EAU PRESSURISEE.

Le caractère particulièrement absorbant des actinides mineurs entraîne des conséquences sur les caractéristiques physiques du cœur des réacteurs à eau pressurisée dû à leur introduction.

De manière générale, on observe :

- une réduction de la perte de réactivité sur le cycle,
- une dégradation des coefficients de température et de l'efficacité du bore,
- une augmentation de l'effet en réactivité lié à la vidange du caloporteur.

Dans un spectre de réacteur REP, plusieurs actinides mineurs se comportent comme des « poisons » consommateurs de neutrons. C'est le cas des Np^{237} , Am^{241} , Am^{243} . Leur introduction dans un cœur REP va nécessiter de surenrichir le combustible pour maintenir une longueur de cycle constante, ce qui est particulièrement pénalisant économiquement

dans le cas d'un combustible UO_2 . Par contre, l'ajout de Curium n'a pas cette conséquence négative sur l'enrichissement du combustible grâce à l'isotope Cm^{245} fissile dans le domaine thermique ($\sigma_{\text{f therm}} = 2132$ barns).

6.2.1.1. LES COEFFICIENTS DE TEMPERATURE.

La présence d'actinides mineurs conduit à un léger impact sur le coefficient de température du combustible. Ce coefficient est lié à l'effet Doppler qui traduit l'augmentation de la largeur des résonances des noyaux lourds entraînant une capture plus importante des neutrons lors de l'élévation de la température du combustible. C'est l'effet le plus immédiat suite à une perturbation des conditions de fonctionnement. Il est dû principalement à la présence d' U^{238} dans le combustible UO_2 .

Le coefficient de température modérateur tient compte de la présence accrue du bore en début de cycle et de son absence en fin de cycle. La variation de la température du modérateur entraîne la variation de sa densité et c'est principalement le changement de densité donc d'atomes de modérateur qui conduit la variation de réactivité. La variation de la densité du modérateur modifie les captures dans le modérateur, les captures dans le bore soluble, les probabilités de fuite des neutrons et le ralentissement des neutrons hors du combustible. Pour satisfaire la sûreté de l'installation, le coefficient de température modérateur, tout comme les autres coefficients de réactivité, doit être négatif.

Le Np^{237} possède de nombreuses résonances (0.6eV, 1.5eV, 4eV, 6eV) pour des énergies inférieures à la première résonance de l' U^{238} (soit 6.7eV). Ainsi, dans le cas de la transmutation en REP du Np^{237} , la variation de réactivité associée au durcissement du spectre lors du changement de température et de densité du modérateur sera plus importante que pour le cas de référence car les captures dans les résonances thermiques sont plus sensibles au durcissement du spectre.

Les nombreuses résonances de l' Am^{241} et Am^{243} vont également modifier le coefficient de température modérateur en cas de recyclage de l'Américium. Celui-ci va même être encore plus faible, en valeur absolue, que pour le cas Neptunium car les résonances dans le domaine des énergies thermiques sont plus importantes avec l'Américium qu'avec le Neptunium. Ainsi les captures dans les résonances diminuent lorsque le spectre se durcit de façon plus sensible avec l'Américium.

6.2.1.2. L' EFFET DE VIDANGE DU CALOPORTEUR.

Pour les options de recyclage du plutonium et des actinides mineurs, la physique du cœur impose donc certaines limites. L'une des principales est celle liée à l'effet de vidange. Au cours de la vidange, le spectre se durcit. Dans les domaines d'énergies thermiques et des résonances résolues, le flux est quasi nul et se concentre dans un domaine de 10keV à 1MeV. Ainsi, disparaissent toutes les contributions de captures dans les résonances thermiques et épithermiques des isotopes pairs du Plutonium, ceci explique par exemple, les contributions positives des Pu^{240} et Pu^{242} . Pour l' U^{238} , la contribution est négative en terme de capture car cet isotope présente une section de capture relativement constante en moyenne quel que soit le domaine d'énergie pour des situations vidangées ou non vidangées. Ainsi, en relatif dans le bilan neutronique, ses captures continuent à jouer un rôle important pour les situations vidangées.

Pour le Pu^{239} , les termes de production et d'absorption diminuent de par le déplacement du spectre lors de la vidange. Cette compétition de deux effets opposés explique le comportement particulier de cet isotope lors de ce type de situation. La diminution du terme d'absorption l'emporte pour des vidanges totales avec une teneur en Pu supérieure à 10%.

Pour le Pu^{240} , l'effet est positif à la fois pour le terme d'absorption et de production. Cet isotope est très sensible au changement de spectre, son rapport σ_a/σ_f variant de 250 pour un REP UO_2 à 40 pour un REP MOX et à 1.6 pour un RNR. La contribution d'un tel isotope ne peut qu'être positive.

Pour le Pu^{241} , le comportement est similaire à celui du Pu^{239} de par une diminution du terme de production et d'absorption. Toutefois, même pour de fortes vidanges, sa contribution reste négative.

Pour le Pu^{242} , son comportement est similaire à celui du Pu^{240} . Ainsi lors du durcissement du spectre, le rapport σ_a/σ_f varie de 60 en REP UO_2 à 23 en REP MOX et à 3 en RNR.

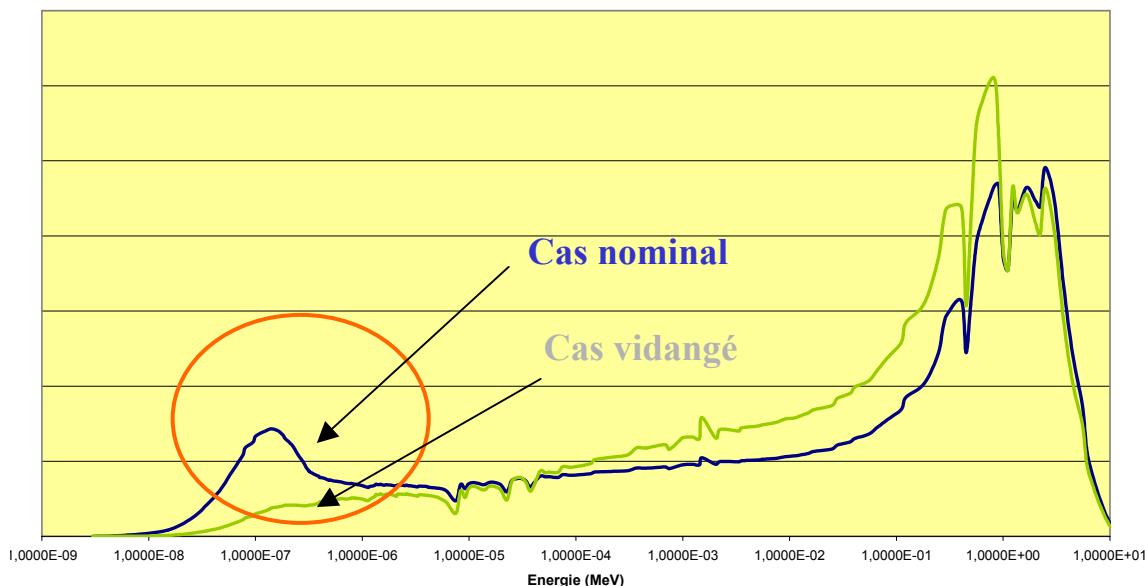


Figure 14 : Spectre neutronique régnant dans un assemblage REP en situation normale et vidangée (30 % H_2O nominale).

La présence d'Américium dans l'assemblage a un effet déstabilisant sur l'effet en réactivité que pourrait avoir une vidange totale du modérateur. L'origine de cet effet est que la capture de l'Am est importante et a lieu essentiellement dans une gamme d'énergie allant d'environ 0.1eV à quelques eV. Lorsque le modérateur disparaît, il n'y a presque plus de neutrons dans cette gamme d'énergie et ainsi la capture de l'Am diminue de façon très importante. C'est un effet similaire à celui caractéristique du Pu^{240} et de sa résonance à 1eV.

7. INCIDENCE DU MODE DE RECYCLAGE DES ACTINIDES.

Si les actinides sont recyclés en mode homogène (répartis dans tout le combustible), le chargement initial dans le cœur est limité par les critères sur les coefficients de cinétique et de réactivité :

- en REP, principalement l'efficacité du bore soluble et le coefficient de vidange, et
- en système à neutrons rapides, l'effet Doppler et le coefficient de vidange.

Ces contraintes limitent les performances de transmutation.

Si les actinides sont recyclés en mode hétérogène, sous la forme de cibles introduites dans le cœur, les neutrons sont alors fournis par le combustible standard environnant. Les performances de transmutation sont alors limitées par le nombre de cibles acceptables en réacteur, ce qui conduit à des limites assez proches des masses d'actinides mineurs admissibles en mode homogène, ou à des limites inférieures en cas de recyclage sous forme d'assemblages modérés.

8. CONSEQUENCES SUR LES GRANDEURS PHYSIQUES DU CYCLE DU COMBUSTIBLE.

Il ne s'agit pas ici de considérer l'ensemble du cycle du combustible mais seulement de déterminer les grandeurs (activité, sources, puissance à l'entrée et à la sortie du réacteur) qui peuvent avoir une influence sur les possibilités et les modalités de fabrication, de manutention et de retraitement des assemblages combustibles ou des cibles contenant les éléments à transmuter. Ceci conditionne le mode de recyclage, voire la possibilité de recycler certains éléments. Le tableau suivant présente les valeurs de puissance résiduelle d'activité, de débit de dose γ à 1 m de la source ainsi que la source neutronique pour différents combustibles « théoriques » de RNR chargés d'une même masse d'actinides mineurs. Ces valeurs sont présentées en relatif par rapport au combustible oxyde d'un cœur d'EFR, *European Fast Reactor*.

Teneur en actinides	2,5 % Np	2,5 % Am	2,5 % Cm
Fabrication			
Puissance	X 1	X 4	X 12
Dose γ	X 4	X 80	X 500
Source neutron	X 1	X 2	X 1700
Retraitement			
Puissance	X 2	X 3	X 6
Dose γ	X 1	X 1	X 1
Source neutron	X 1	X 4	X 8

Variation relative
par rapport au
combustible
MOX de
référence EFR

Tableau 8 : Conséquences sur les grandeurs physiques du cycle du combustible.

On constate que les variations les plus importantes apparaissent à l'étape de la fabrication. En effet, après irradiation, la contribution des isotopes lourds est masquée par la contribution prépondérante des produits de fission. On observe des variations significatives uniquement pour la puissance résiduelle qui est augmentée de près d'un facteur 2 dans le cas d'un combustible avec 2,5 % de neptunium et d'un facteur 3 ou 6 pour un combustible à base d'américium ou de curium. De même la source de neutrons est augmentée d'un facteur 4 à 8 pour les cas des combustibles chargés en américium et en curium.

En ce qui concerne le combustible neuf, l'ajout de neptunium à concurrence de 2,5 % de la masse des isotopes lourds ne modifie pas les niveaux de puissance, d'activité ou de source. Seuls le débit de dose γ est majoré d'un facteur 4 environ à cause de la présence du protactinium 233 (en équilibre avec le neptunium 237) émetteur d'un rayon γ dur d'environ 300 keV.

Pour le combustible chargé en américium, la forte augmentation de la source γ et du débit de dose associé (facteur 80) est due principalement à la contribution du neptunium 239 en équilibre avec son père l'américium 243.

Avec l'introduction de curium, les conséquences sont nettement plus accentuées, le débit de source est augmenté de près d'un facteur 500 à cause des contributions du curium 243 et du curium 244 forts émetteurs de rayons γ durs. L'augmentation de la source neutronique est encore plus conséquente (facteur 1700) principalement à cause de la fission spontanée du curium 244.

Ainsi, si le recyclage en mode homogène du neptunium apparaît tout à fait envisageable, les conséquences sur les sources γ et principalement neutron dues à l'introduction de curium rendent son recyclage en réacteur extrêmement difficile.

Pour l'américium, la situation est intermédiaire. Son recyclage en mode homogène nécessiterait un développement important des technologies actuelles et en particulier nécessiterait une chaîne de fabrication blindée. La voie hétérogène permettrait d'éviter de dégrader les caractéristiques du combustible standard en concentrant les problèmes sur un flux de matière réduit.

9. PRESENCE DE LANTHANIDES DANS LES ACTINIDES RECYCLES.

Américium, curium et lanthanides (ces derniers font partie des produits de fission) ont des propriétés chimiques voisines et se retrouvent mélangés à la valence (III) dans les rejets du procédé PUREX actuel. Des procédés efficaces de séparation de l'américium du curium, et de séparation actinides/lanthanides sont en cours de mise au point. Il est néanmoins nécessaire d'évaluer l'impact sur la transmutation de l'américium ou du curium de la présence en plus ou moins grande quantité de lanthanides parmi les noyaux à transmuter.

Les proportions respectives d'actinides (An) et de lanthanides (Ln) dans le combustible irradié dépendent des noyaux principalement fissionnés et du niveau de production d'actinides mineurs du cœur. Les proportions de lanthanides/actinides présents dans le combustible irradié REP UO₂ et MOX sont indiqués dans le tableau suivant :

Combustible	Am (%)	Cm (%)	Ln (%)	Ln/An
REP UO ₂	4.3	0.4	95.3	≈ 20
REP MOX	29.7	5.0	65.3	≈ 2

Tableau 9 : Proportions lanthanides /Actinides

Des études ont consisté à examiner la variation des performances de transmutation avec le « facteur de séparation » (FS) défini comme le rapport des proportions Ln/An avant et après séparation des actinides et des lanthanides. Par exemple, pour un combustible REP UO₂, si la séparation fait passer les proportions Ln/An de 20 à 2 on aura un facteur de séparation de 10. Ces études ont porté sur les recyclages homogène et hétérogène, en REP et en RNR. Les résultats donnés ci-dessous valent pour une proportion Ln/An initiale de 20 (typique d'un combustible irradié REP UO₂) ; dans le cas d'un combustible MOX irradié, il faudrait diviser les facteurs de séparation obtenus par dix.

Pour le recyclage homogène en REP, des facteurs de séparation de l'ordre de 300 permettent de limiter la dégradation des performances de transmutation à environ 10% ; les coefficients de réactivité sont peu modifiés. En recyclage hétérogène en REP, les facteurs de séparation dépendent de la possibilité de considérer les lanthanides comme matrice support des actinides ou pas ; selon le cas, le facteur de séparation peut varier de 10 à 300. Il a été montré qu'une séparation chimique des lanthanides les plus capturants (Sm, Nd, Eu, Gd) modifie peu ces valeurs.

Pour le recyclage homogène en RNR, un facteur de séparation supérieur ou égal à 50 est nécessaire pour n'apporter que peu de pénalités sur les réactivités de vidange et Doppler ou sur le taux de transmutation, à cycle d'irradiation identique. Cela correspond à un rapport massique Ln/An de 0.4. En (multi)recyclage hétérogène dans une couronne d'assemblages placés en périphérie du cœur, l'influence sur des paramètres tels que la réactivité de vidange ou la réactivité Doppler est faible de toute façon et le principal critère de choix est ici la moindre dégradation possible des performances de transmutation. On trouve qu'un facteur de séparation d'au moins 25 (soit Ln/An = 0.8) est nécessaire si les lanthanides ne peuvent pas jouer le rôle de matrice inerte, et d'au moins 10 (soit Ln/An = 2) sinon.

Dans tous les cas, ces facteurs de séparation apparaissent accessibles avec les nouveaux procédés de séparation actuellement en développement (Cf. document « faisabilité technique de la séparation poussée »).

10. LES PRODUITS DE FISSION A VIE LONGUE.

La destruction en réacteur des produits de fission à vie longue sélectionnés (Technétium 99, iode 129 et césium 135) pose de nombreux problèmes :

- ce sont de purs consommateurs de neutrons,
- leurs sections efficaces de capture (et donc les vitesses de transmutation) sont faibles en spectre rapide (<0.5 barns) et en spectre thermique (quelques barns au plus),
- ils sont minoritaires (mis à part le 99 Tc) par rapport aux isotopes stables ou à vie moyenne de l'élément produit en réacteur, comme l'indique le tableau suivant,
- La forme chimique pouvant être introduite en réacteur n'est pas forcément l'élément pur (spécialement pour les corps facilement fusibles ou volatils, comme l'iode et le césium).

Les problèmes cités sont susceptibles de diverses solutions.

Pour le premier point, les réacteurs hybrides sont plus adaptés à la transmutation des PFVL, grâce à leur source externe de neutrons mais ce gain est limité par l'intensité maximale acceptable du faisceau. Dans un réacteur critique, la destruction des PFVL ne peut qu'utiliser les surplus de neutrons dégagés par la fission des actinides. Le tableau suivant donne une idée du nombre de neutrons par fission nécessaires pour équilibrer production et consommation (pour un niveau de flux standard).

Isotope	Période (ans)	Production (kg/Twe)	
		Isotope	Élément
99 Tc	2.1 10 ⁵	3.2	3.2
129 I	1.6 10 ⁷	0.66	0.8
135 Cs	2.3 10 ⁶	1.4	14.0

Tableau 10 :Productions typiques de PFVL (REP UOX 33 GWj/t)

	Consommation neutrons/transmutation	Production noyaux/fission	Equilibre neutrons/fission
⁹⁹ Tc	1.01	0.055	0.056
¹²⁹ I	1.008	0.009	0.009
I	1.01	0.011	0.011
¹³⁵ Cs	1.002	0.017	0.017
Cs	0.58	0.13	0.075

Tableau 11 : Nombre de neutrons par fission à consacrer à la transmutation des PFVL pour équilibrer production et consommation (C8, F13)

Ainsi, il faudrait environ 0.082 neutrons par fission pour transmuter ⁹⁹Tc + ¹²⁹I + ¹³⁵Cs seuls, mais environ 0.14 pour les transmuter à partir des éléments correspondants. La disponibilité idéale en neutrons, en supposant un parc de réacteurs en spectre rapide recyclant Pu + Am et en comptant environ 0.3 neutron par fission perdu en captures parasites et en fuites, est d'environ 0.6. A la vue de ces valeurs, il faudrait consacrer environ 15 % des réacteurs du parc à la transmutation de ⁹⁹Tc + ¹²⁹I + ¹³⁵Cs seuls, et environ 25 % du parc à leur transmutation à partir des éléments correspondants.

La discussion théorique qui précède ne prend pas en compte le fait que les vitesses de transmutation en réacteur doivent être à l'échelle humaine, et de toute façon bien plus rapides que la décroissance radioactive naturelle des produits à transmuter. Un classement a été effectué, portant sur la « période de transmutation » $T_t = \frac{\ln 2}{\sigma\phi}$, qui doit être très

inférieure à la période de décroissance naturelle $T_{1/2}$, mais aussi à l'échelle humaine (si T_t est de l'ordre de 1000 ans, par exemple, vaut-il vraiment la peine d'engager la transmutation ?). T_t a été estimée en utilisant des valeurs standard de sections efficaces et de flux pour des REP et des RNR. Le résultat de l'étude est que ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ¹³⁵Cs sont clairement transmutables.

Dans un REP, la transmutation de PFVL demande un surplus de neutrons qui doit être obtenu par un enrichissement plus élevé en ²³⁵U pour maintenir la longueur du cycle. Par exemple si l'on dispose 2 % de ⁹⁹Tc en mode homogène dans un REP, l'enrichissement passe de 3.5 à 5.0 %, la quantité transmutée est de l'ordre de 10 kg/Twhe et la proportion de REP chargés en technétium dans le parc de l'ordre de 30 % ; en mode hétérogène, à raison de 8 aiguilles par assemblage, l'enrichissement est de 4.5 %, la masse transmutée 5 kg/Twhe, et la fraction du parc d'environ 50 %. Pour l'iode en mode hétérogène (même modalités), on aurait un enrichissement de 3.9 %, une masse transmutée de 2 kg/Twhe et une fraction du parc de 30 %.

En RNR, on peut ici aussi disposer les PFVL à transmuter dans des assemblages modérés, placés dans le cœur ou à sa périphérie : on bénéficie à la fois d'une source neutronique importante et de sections efficaces plus élevées. Les calculs ont été faits explicitement pour le technétium, l'iode et le césium. Cependant, il faut voir qu'ici la motivation pour la modération n'est pas de pouvoir arriver à un mono recyclage, les produits de transmutation de la plupart des PFVL étant stables et donc infiniment moins gênants que le curium, mais

simplement a augmenter la capacité massique de transmutation pour un endommagement donné des structures (pris là aussi à 200 dpa NRT Fe). Un optimum entre pertes et taux de transmutation peut être trouvé de ce point de vue pour des taux de transmutation variant entre 40 et 60 % selon le noyau à transmuter. Cela permet aussi d'avoir un niveau cumulé de pertes au retraitement limité. Ces considérations ont été appliquées à quelques scénarios et permettent effectivement d'équilibrer productions et consommations de ^{99}Tc et ^{129}I sur le parc.

Le problème lié à la présence d'autres isotopes du même élément que le PFVL à transmuter (spécialement pour le césium, les captures sur le ^{133}Cs et le ^{134}Cs étant susceptibles de régénérer au moins en partie le ^{135}Cs à vie longue) pourrait être réglé en ayant recours à une (coûteuse ?) séparation isotopique en milieu actif, ou en acceptant une augmentation importante du nombre de neutrons (et du temps d'irradiation) requis pour une performance de transmutation fixée du noyau à vie longue. A titre d'exemple, le cas du césium a été étudié en cibles modérées dans une RNR : sans séparation isotopique, on recrée au moins autant de ^{135}Cs qu'on en détruit, et il faut atteindre une proportion $^{135}\text{Cs}/\text{Cs}$ de l'ordre de 70 % pour aboutir à des capacités massiques de transmutations raisonnables.

Le dernier point (forme chimique) introduisant encore des captures parasites, sa discussion va dans le même sens : augmentation importante du nombre de neutrons et du temps d'irradiation requis.

En résumé, la destruction des PFVL en REP ou RNR apparaît réalisable pour le technétium et l'iode. Le cas du césium, obligerait à recours à une séparation isotopique poussée.

11. SIMULATION : DEMARCHE ET MOTIVATION.

De manière générale, les études neutroniques des cœurs incinérateurs de déchets ou de systèmes hybrides s'appuient sur des logiciels développés et qualifiés pour les réacteurs nucléaires classiques, auxquels il a été nécessaire d'apporter un certain nombre de compléments ou extensions, notamment en termes de données nucléaires, méthodes ou procédures de calcul, et validation-qualification. Des développements spécifiques ont notamment été nécessaires pour tenir compte de la présence dans ces systèmes innovants de certains noyaux en fortes concentrations (alors que ces mêmes noyaux n'interviennent que mineurement dans les systèmes classiques), des interactions neutron-noyau ou proton-noyau à des énergies supérieures comprises entre 20 et 200 MeV, de présence de « cibles » de spallation ou de dispositifs spéciaux de transmutation, etc.

De nombreuses mesures nucléaires intéressant la transmutation ont été réalisées au cours de ces dernières années, la plupart dans le cadre de collaborations impliquant le CEA, le CNRS/IN2P3, des universitaires, ou dans le cadre de projets internationaux (HINDAS, n_TOF_ADS, groupes de travail de l'OCDE). Certaines de ces mesures ont été converties en fichiers évalués qui sont proposés pour intégration dans le fichier européen JEFF-3.1 en 2005. D'autres mesures seront réalisées dans le cadre des programmes européens à venir (FP6 – EUROTRANS/NUDATRA) ou internationaux (JEFF-3.1).

S'agissant des codes de calcul, des extensions ont été réalisées à partir des logiciels existants. En particulier, de nouveaux modèles théoriques permettant de décrire le processus de cascade intranucléaire dans les cibles de spallation ou de produire des évaluations au-delà du domaine des résonances ont été développés et mis en œuvre. En ce qui concerne les codes de transport des neutrons, des développements ont également été nécessaires pour calculer des grandeurs spécifiques telles que l'efficacité relative de la source de neutrons de spallation. De nouvelles procédures de calcul de sensibilité, spécifiques aux systèmes sous-critiques, ont été mises au point. Des validations numériques ont été effectuées sur des benchmarks, en collaboration avec d'autres groupes internationaux.

En complément à ces développements, des expériences intégrales de qualification en réacteur ont été effectuées ou sont en cours afin de valider le comportement d'ensemble des codes de calcul associés aux bibliothèques de données nucléaires. Il s'agit en particulier des irradiations d'échantillons d'isotopes purs PROFIL-R et PROFIL-M dans PHENIX, du programme COSMO en soutien au concept de cibles à spectre modéré et des mesures de fission d'actinides dans les cœurs MUSE de l'installation MASURCA, et des futures oscillations d'actinides du programme OSMOSE dans le réacteur MINERVE. Conformément à la démarche de validation-qualification mise en œuvre depuis une quinzaine d'années au CEA, on s'est efforcé, chaque fois que c'était possible, de décomposer systèmes et calculs globaux en sous-ensembles dans lesquels les phénomènes physiques peuvent être analysés séparément, avec évaluation des différentes sources d'erreur.

Les expériences MUSE dans MASURCA ont notamment permis d'étudier les questions physiques suivantes :

- effets de la source de neutrons par rapport aux neutrons de fission,
- distribution en énergie et en espace des neutrons, variations près de la source, hétérogénéités, pic de puissance, streaming,
- évaluation et contrôle de la réactivité, niveau de sous-criticité.

Les chapitres suivants abordent plus en détail ces différents aspects.

12 - LES METHODES DE CALCUL.

Le principal objectif des logiciels de neutronique est de pouvoir calculer le cheminement dans l'espace, l'énergie et le temps des neutrons présents dans le réacteur et les réactions du système face à la variation de cette population.

L'équation de base, dite de Boltzmann, décrivant l'évolution de cette population neutronique et plus précisément le flux neutronique est une équation de conservation, établissant le bilan de la variation du nombre de neutrons dans l'intervalle élémentaire de chacune des variables.

Pour les cas stationnaires, une expression de l'équation de Boltzmann est la suivante :

$$\Omega \text{ grad } \phi(E, r, \Omega) + \sigma_t(E, r) \phi(E, r, \Omega) = \int \sigma_s(E' \rightarrow E, \Omega' \rightarrow \Omega, r) \phi(E', \Omega', r) dE' d\Omega' + S(E, r, \Omega)$$

avec $\phi(E, r, \Omega)$ = flux neutronique dépendant de l'énergie (E) de l'espace (r) et de la direction (Ω) du neutron.

Le premier terme représente la composante de fuite, c'est à dire tous les neutrons qui sortent de l'élément de volume considéré.

Le deuxième terme représente la composante de disparition. Les neutrons peuvent disparaître par absorption (principalement par capture + fission) ou par choc qui modifie leur énergie et leur direction.

La somme de ces probabilités se retrouve dans le terme σ_t (section efficace totale).

Le troisième terme est relatif au nombre de neutrons, initialement d'énergie (E') et de direction (Ω') arrivant dans l'intervalle (E, Ω) après un choc élastique ou inélastique. Cette probabilité de choc est caractérisée par une section de diffusion (ou scattering d'où σ_s).

Enfin, le quatrième terme représente le terme de source qui cumule la production par réaction de fission et par réaction spontanée (plus la source externe dans le cas des systèmes hybrides).

Cette équation de Boltzmann n'a pas de solutions analytiques sauf pour des cas académiques.

Deux classes de solutions numériques sont envisageables :

- Monte Carlo (méthode stochastique de référence)
- Méthode déterministes avec discrétisation des variables (ces méthodes sont les plus utilisées pour les calculs de projets).

12.1. CARACTERISTIQUES DE LA METHODE DE MONTE CARLO.

Dans la résolution de problèmes numériques, adopter une approche de type Monte Carlo a en général plusieurs avantages. D'abord il s'agit d'une méthode qui se prête très bien à l'intuition. Cela signifie qu'elle est généralement simple à comprendre (e.g. proche de l'intuition physique dans le cas d'une simulation) et donc aussi à mettre en œuvre. D'autre part, c'est une méthode certes d'application générale mais applicable en particulier à des problèmes de géométrie complexe. Un autre aspect rend le Monte Carlo attrayant : la

possibilité de s'affranchir d'approximation résultant de discrétisations spatiale ou énergétique (par rapport aux méthodes déterministes).

Les techniques d'intégrations numériques se caractérisent par l'approximation de l'intégrale recherchée par une somme pondérée (poids A_i) des valeurs de la fonction considérée en un nombre de points (nœuds x_i) donné (formule de quadrature), ce qui donne pour une fonction f dans un espace de dimension d :

$$\int_{R^d} f(x) dx = \sum_{i=1}^n A_i f(x_i) + E[f]$$

Où $E[f]$ représente l'erreur associée à la quadrature choisie. L'effort de calcul est proportionnel au nombre de nœuds n utilisés, correspondant à une subdivision par coordonnée d'une facteur $n^{1/d}$. On en déduit que $E[f] \propto n^{-\eta/d}$, où η est un paramètre dont la valeur dépend de la quadrature retenue (e.g. pour une règle du trapèze, $\eta = 2$). Ainsi lorsque la dimension augmente, l'effort de calcul pour faire diminuer l'erreur doit être de plus en plus important. Pour une intégration Monte Carlo, on aurait $E[f] \propto n^{-1/2}$ et donc indépendance de l'évolution de l'erreur par rapport à la dimension. Le Monte Carlo se révèle ainsi avantageux (en terme de vitesse de convergence) dès que $d \geq 2\eta$. Il faut noter que la convergence en $n^{-1/2}$, typique des méthodes Monte Carlo, est particulièrement lente en pratique. Néanmoins, les techniques de réduction de variance et la puissance des ordinateurs actuels en liaison avec une parallélisation des algorithmes naturelle, atténuent très notablement ce problème. Un autre aspect rend le Monte Carlo attrayant : la possibilité de s'affranchir de discrétisations spatiale ou énergétique (par rapport aux méthodes déterministes) et, de plus, de pouvoir traiter, sans que cela soit beaucoup plus complexe, des géométries tridimensionnelles.

12.1.1. DEFINITION DE LA METHODE

La méthode de Monte Carlo peut se décomposer en différentes étapes :

- construire un processus statistique que l'on appelle jeu
- attribuer une valeur numérique score à une certaine réalisation du jeu
- calculer une moyenne de ces scores et une dispersion statistique (écart-type) permettant d'estimer la précision obtenue sur la moyenne.

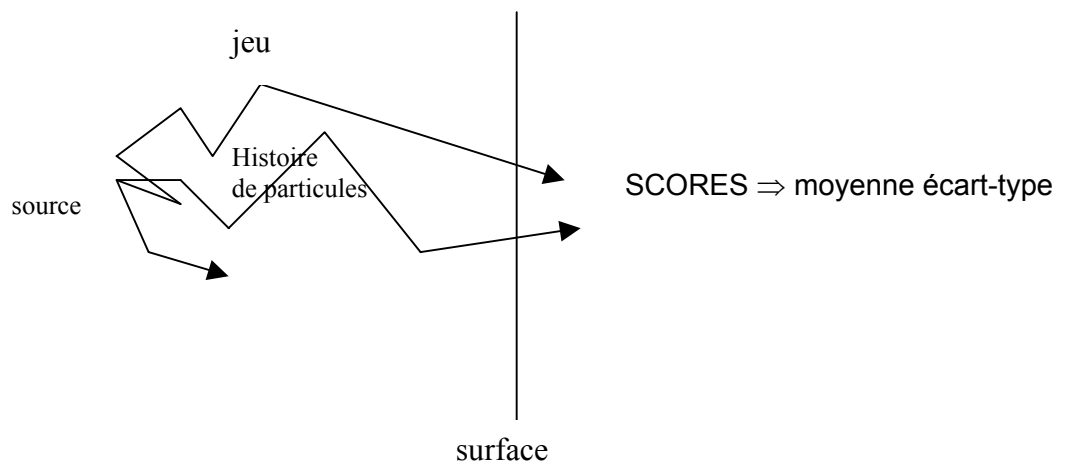


Figure 15 : Un exemple d'application de la méthode

Sur la figure ci-dessus, le jeu consiste en la réalisation de trajectoires de particules et le score est de 1 à chaque fois qu'une particule traverse la surface. On peut alors calculer la moyenne du nombre de particules détectées (ayant traversé la surface).

Dans le cadre du transport de particules, l'utilisation d'une méthode de Monte Carlo pour estimer des quantités physiques telles que flux, taux de réaction ou facteur de multiplication repose sur la simulation d'histoires de particules dans la matière. Une histoire commence par la naissance de la particule (émission à partir d'une source) et se termine par sa mort (absorption, fuite).

12.1.2. LES CODES DE CALCUL.

Les codes de calcul, mettant en œuvre la méthode de Monte Carlo, pour la résolution des problèmes en physique des réacteurs sont principalement les logiciels MCNP et TRIPOLI.

12.2. METHODES DETERMINISTES.

L'équation de Boltzmann est résolue numériquement en appliquant la discrétisation des variables :

$$\begin{array}{l}
 E, r, \Omega \rightarrow E_i, r_j, \Omega_k \\
 i = 1 \dots I \\
 j = 1 \dots J \\
 k = 1 \dots K
 \end{array}
 \left. \vphantom{\begin{array}{l} E, r, \Omega \rightarrow E_i, r_j, \Omega_k \\ i = 1 \dots I \\ j = 1 \dots J \\ k = 1 \dots K \end{array}} \right\} I \times J \times K \text{ Variables}$$

La fonction $\Phi(E, r, \Omega)$ devient un vecteur $\underline{\Phi}$ (Φ_{ijk}), où la composante Φ_{ijk} est la valeur moyenne du flux dans l'élément $\Delta E_i \Delta r_j \Delta \Omega_k$

L'équation de Boltzmann peut se réécrire donc de façon discrétisée (en forme matricielle) :

$$\underline{A} \underline{\Phi} = \underline{F} \underline{\Phi}
 \left. \vphantom{\underline{A} \underline{\Phi} = \underline{F} \underline{\Phi}} \right\}
 \begin{array}{l}
 \underline{A} : \text{opération de « disparition »} \\
 \underline{F} : \text{opération de « production »}
 \end{array}$$

Formellement on cherche une solution du type (vecteur propre) :

$$\underline{\Phi} = \underline{A}^{-1} \underline{F} \underline{\Phi}$$

Différentes approximations sont utilisées dans l'opération de discrétisation en angle et espace :

- Méthodes aux Ordonnées discrètes.
- Méthodes Nodales
- Etc.

Ces approximations conduisent à des systèmes d'équations, résolus par des méthodes itératives, avec techniques d'accélération adaptées au type de matrice obtenu pour A et F.

Un problème majeur est représenté par la variation en énergie des sections efficaces $\sigma(E)$ (cf chapitre 3).

Dans les matrices A et F, il faut introduire des valeurs moyennes ou « effectives » sur des « groupes » d'énergie ΔE_i :

$$\sigma_{\text{eff}}^i = \frac{\int_{\Delta E_i} \sigma(E)\Phi(E)dE}{\int_{\Delta E_i} \Phi(E)dE}$$

Cette opération nécessite une évaluation préalable et approchée de $\Phi(E)$.

Cette opération est accomplie dans les codes dit de « cellule », où on résout l'équation de Boltzmann dans sa forme intégrale.

Avec Φ et σ , on peut construire des taux de réaction (de transmutation) instantanés avec des densités nucléaires N_j à un instant $t = t_0$. Puisque, les densités nucléaires sous irradiation évoluent dans le temps, les valeurs $N_j(t)$ sont solutions du système d'équations.

$$\frac{dN_j(t)}{dt} = N_j(t)(-\sigma_{aj}\Phi - \lambda_j) + \sum_{K \neq J} (\sigma_{pk}^j + \lambda_k^j)N_k(t)$$

$j = 1 \dots$ Nombre total de nucléides en jeu

12.2.1. LES CODES DE CALCUL DETERMINISTES.

A partir des méthodes indiquées succinctement au paragraphe précédent, on construit des codes, ou, mieux, des « systèmes » de codes, utilisés dans les calculs des études de transmutation, et à partir desquels on a obtenu les valeurs numériques données dans les chapitres précédents. Ici on mentionnera seulement à titre d'exemple le système de codes de neutroniques pour les RNR, ERANOS/ECCO (figure16.1), le système de code REP, CRONOS/APOLLO (fig.16.2) et le système de codes pour le cycle (toutes filières), DARWIN (figure16.3).

En pratique, les calculs sont faits en deux étapes :

- 1) Calcul de l'assemblage.
- 2) Calcul de cœur.

En ce qui concerne 1), il est fait avec une résolution numérique aussi exacte que possible de l'équation de Boltzmann. Ce calcul sert à simplifier le problème (homogénéisation, etc...).

En ce qui concerne 2), il est fait avec le modèle ainsi simplifié.

L'étape 1) est réalisée avec les codes APOLLO ou ECCO.

L'étape 2) est réalisée avec les codes CRONOS ou ERANOS.

Une démarche d'unification de l'ensemble des ces codes, basé sur une même architecture et un même modèle de données est en cours (Projet DESCARTES).

Ce nouveau système s'intégrera dans une plate forme de simulation encore plus large, qui accueillera des systèmes de calcul cohérents pour les autres disciplines, telles que la thermohydraulique (projet Neptune) et le combustible (projet Pléiades) de la physique des réacteurs.

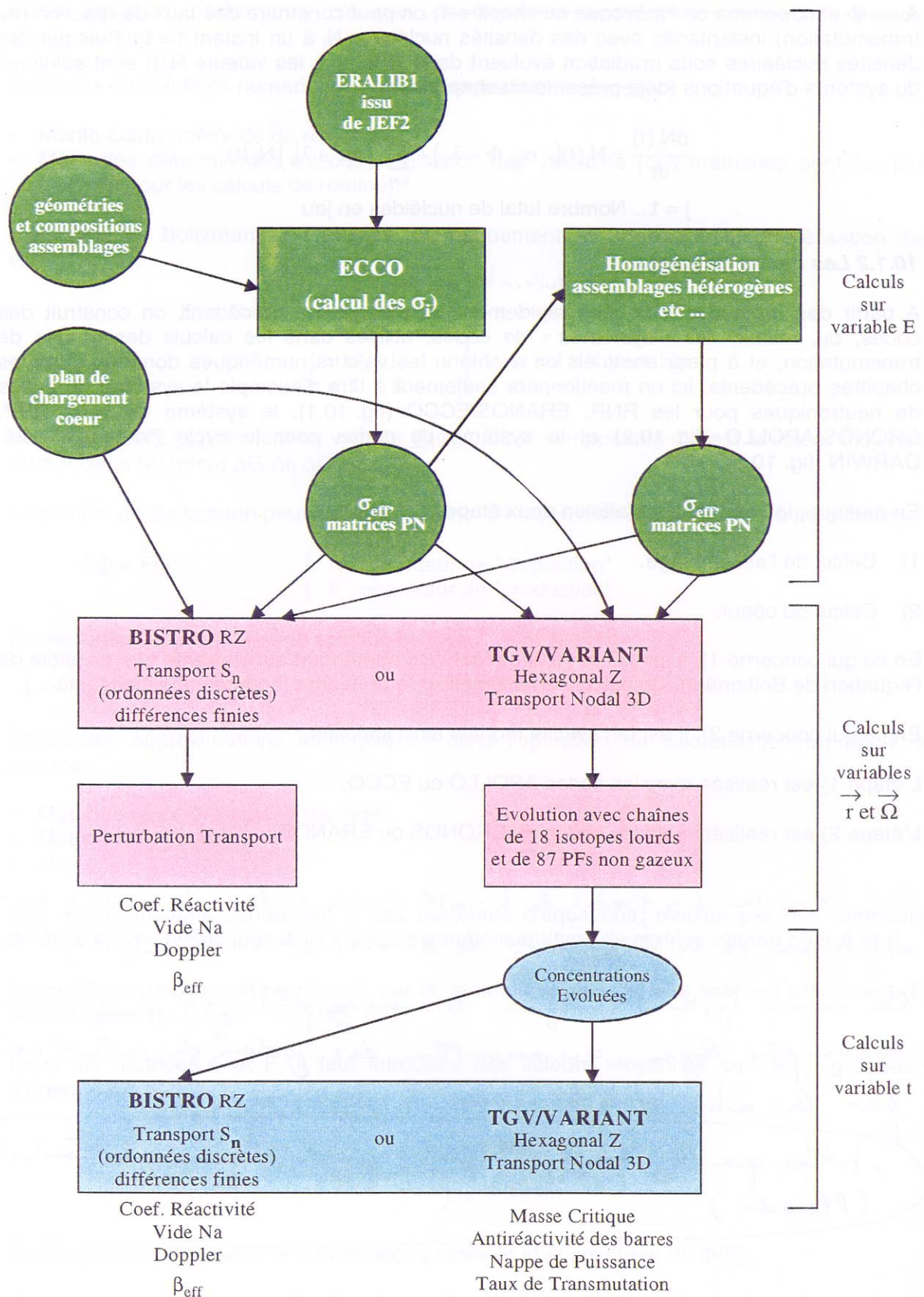


Figure 16.1 : Schéma de calcul de référence d'ERANOS

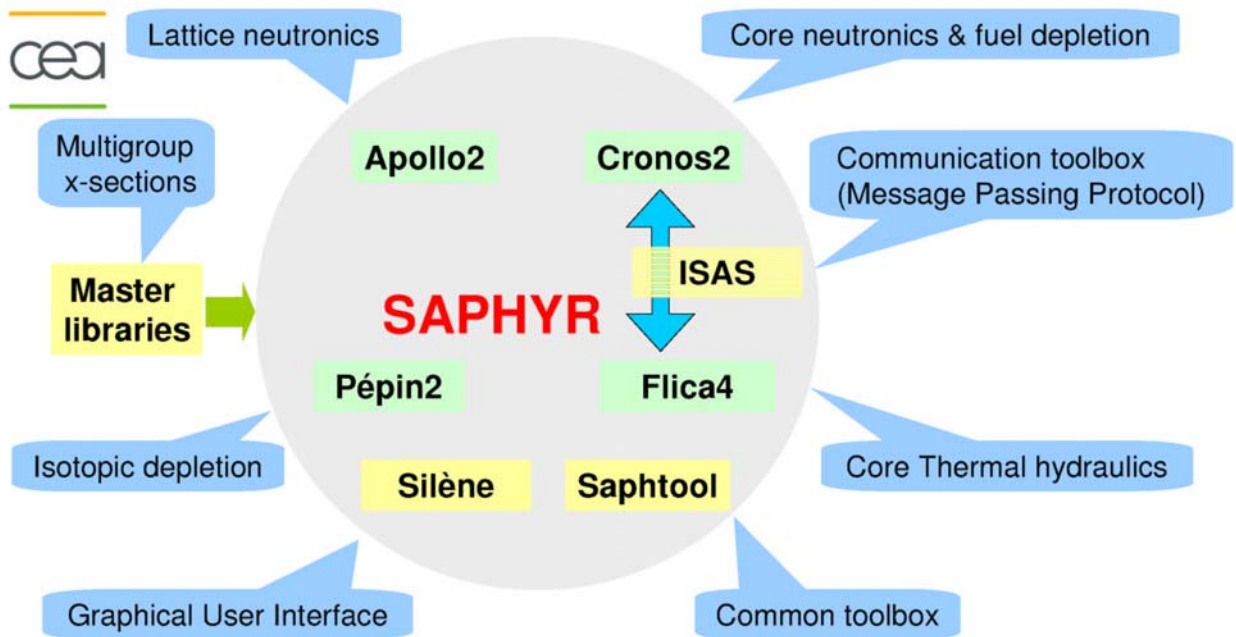


Figure 16.2 : Le système SAPHYR(APOLLO/CRONOS)

Schéma de principe du formulaire DARWIN

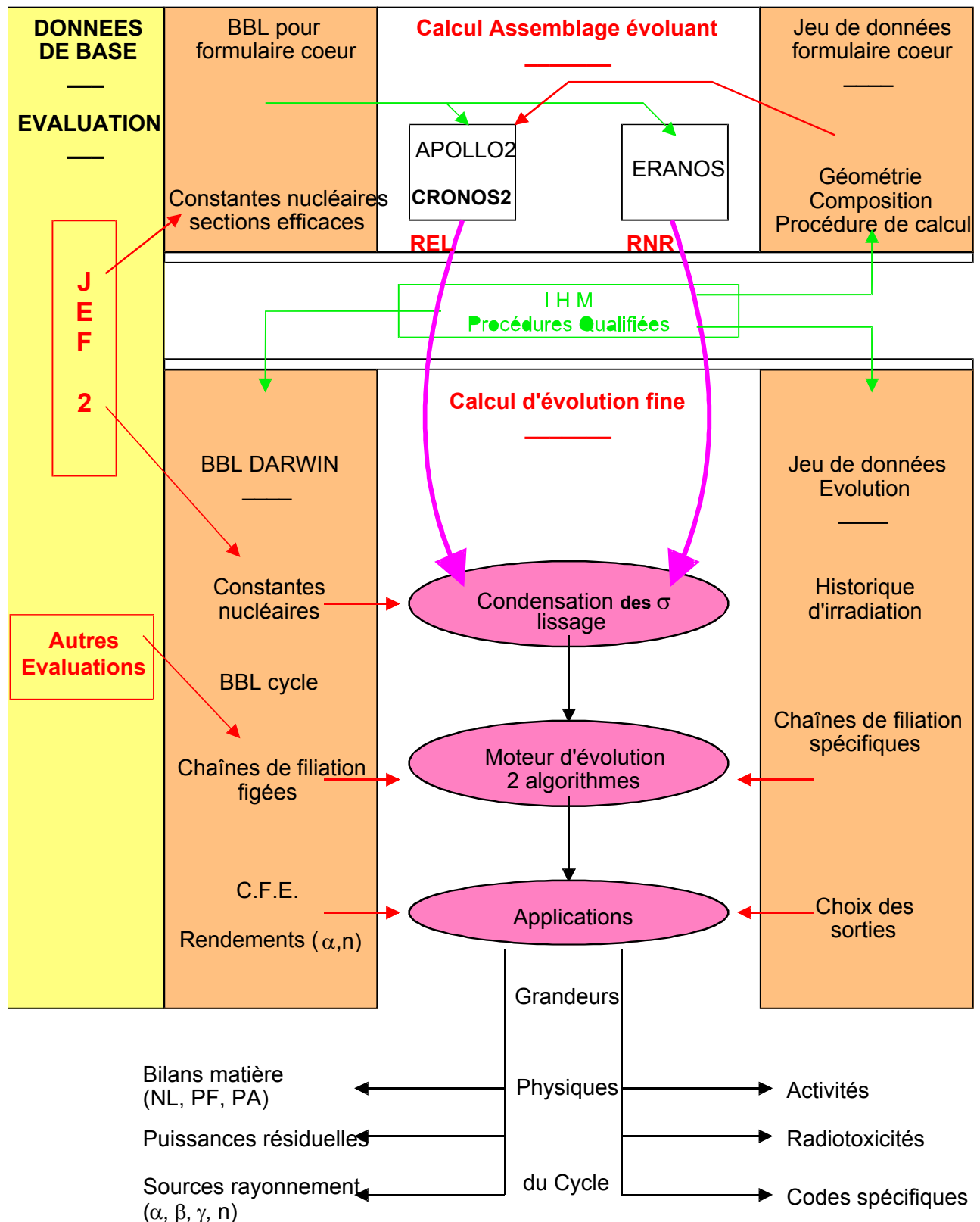
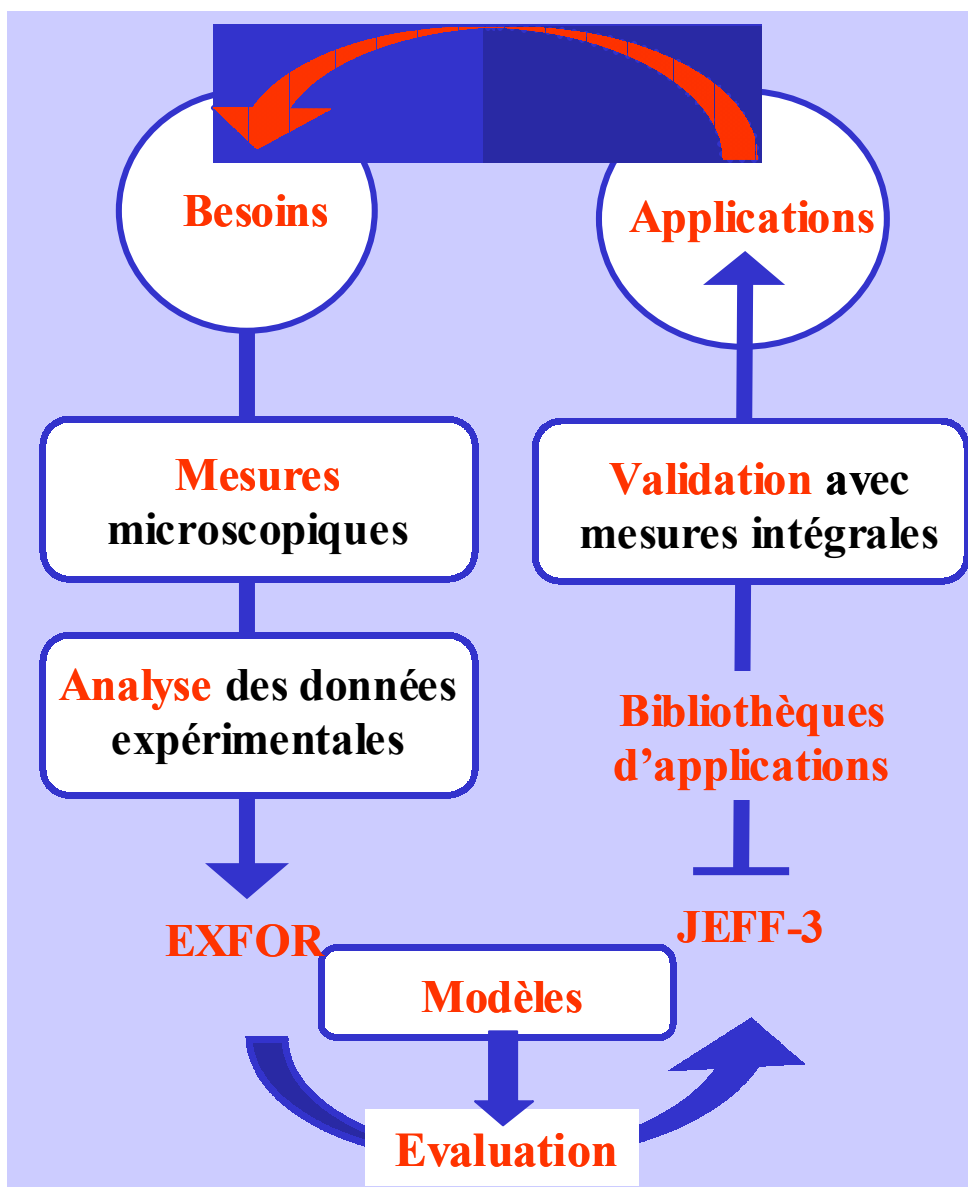


Figure 16.3

13. LES DONNEES NUCLEAIRES POUR LA TRANSMUTATION.

13.1. PROBLEMATIQUE.

Les études de faisabilité, de conception ou de sûreté des systèmes de transmutation s'appuient sur des résultats de calculs obtenus à l'aide de logiciels de simulation numérique (Cf. chapitre précédent). Ces derniers font appel à des bibliothèques de données nucléaires, des modèles physiques et numériques, et des expériences de qualification intégrale. La qualité de chacun de ces trois sous-ensembles conditionne la précision et le niveau d'incertitude associé aux diverses études. L'ensemble est appelé « Formulaire de calcul ». Le cheminement entre les différentes étapes du processus de validation des données est schématisé dans la figure suivante :



Ce chapitre traite des bibliothèques de données. Celles-ci sont construites à partir de grands fichiers internationaux de données nucléaires évaluées tels que JEFF pour l'Europe, ENDF/B pour les USA ou JENDL pour le Japon. Ces grands fichiers couvrent un large spectre en énergie pour un grand nombre de réactions et de noyaux afin de répondre aux besoins d'applications diverses, dont la neutronique. Les données nucléaires sont obtenues en combinant mesures microscopiques et modèles de physique nucléaire. Ce travail de

modélisation, réalisé par des physiciens spécialisés, permet d'aboutir à des fichiers de données évaluées dans un format standard tels que ceux de JEFF-3.0.

Tant que la transmutation des déchets nucléaires à vie longue n'était pas l'objectif essentiel de la conception des cœurs, les codes de calcul neutronique disposaient de bibliothèques et de chaînes d'évolution ne couvrant qu'un nombre relativement limité de noyaux et de réactions. A partir des outils de calcul existants, développés et qualifiés pour les applications aux réacteurs classiques, des extensions ont été réalisées pour couvrir les spécificités des systèmes transmutateurs de déchets telles que :

- la forte concentration en actinides mineurs et en produits de fission à vie longue,
- les interactions neutron-noyau ou proton-noyau à des énergies inhabituelles (20 à 200 MeV),
- la présence d'une cible de spallation au plomb-bismuth ou de dispositifs spéciaux de transmutation.

Dans certains cas, lorsque les données nucléaires étaient disponibles par ailleurs, un travail de mise à jour a été effectué pour inclure les données manquantes dans les bibliothèques et dans les chaînes d'évolution.

Dans la plupart des cas, la méconnaissance des propriétés neutroniques de certains noyaux, voire de toutes les données dans certaines zone d'énergie, a nécessité des travaux de R&D en amont.

Dans ce but, de nombreuses mesures nucléaires intéressant la transmutation ont été réalisées au cours de ces dernières années, la plupart dans le cadre de collaborations impliquant le CEA, l'IN2P3 (CNRS et Universités), ou dans le cadre de projets internationaux (HINDAS, n_TOF_ADS, groupes de travail de l'OCDE). Outre l'aspect expérimental, certaines collaborations incluait des développements de modèles de réaction nucléaire et de codes permettant la modélisation des données et leur mise au format standard pour les applications.

Dans la suite, seuls les projets relatifs à l'étude des réactions induites par des nucléons d'énergie inférieure à 20 MeV sont mentionnés. Les travaux relatifs aux énergies supérieures à 20 MeV sont décrits par ailleurs.

13.2. LES TYPES DE DONNEES NECESSAIRES.

13.2.1. LES ACTINIDES.

Dans le cadre de combustibles classiques basés sur le cycle de l'uranium, ce sont les données pour les actinides mineurs (neptunium, américium, curium) qui sont bien entendu les moins connues.

Dans le cas de combustible basés sur le cycle du thorium, il faut ajouter le protactinium (Pa-231, Pa-233), le thorium (Th-230, Th-232) et certains isotopes de l'uranium (U-232, U-233, U-234, U-236).

Les données les plus importantes à considérer dans le cadre de l'incinération en réacteur des actinides sont les sections efficaces de fission et de capture, ainsi que le nombre de neutrons produits par fission. Dans le cas des ADS, les sections d'activation à haute énergie sont également importantes, mais il ne faut pas négliger celles dont le seuil est inférieur à 20 MeV et qui peuvent aussi conduire à la formation de produits d'activation à vie longue.

13.2.2. LES PRODUITS DE FISSION A VIE LONGUE.

Dans le cadre de la transmutation des produits de fission à vie longue tels que l'iode, le technétium ou le césium, des mesures complémentaires étaient nécessaires pour mieux connaître leur section efficace de capture.

13.2.3. LA CIBLE DE SPALLATION.

Dans le cadre de la gestion des déchets par des options nouvelles, leur incinération-transmutation dans des systèmes dédiés sous-critiques couplés à des accélérateurs a été étudiée. Dans ce cas une source de neutron additionnelle est constituée par une cible de spallation bombardée par des protons de plusieurs centaines de MeV. Cette cible de spallation est constituée d'un matériau lourd, mélange de plomb et de bismuth. Ces deux métaux ne sont pas couramment utilisés dans les filières de réacteur classique. Les sections efficaces totale, de capture (n,γ) et de production (n,xn) doivent donc être améliorées.

13.2.4. LES MATERIAUX DE STRUCTURE.

Les matériaux de structure (fer, chrome, nickel) pour les concepts de transmutation sont similaires à ceux employés dans les réacteurs de fission ou de fusion. En dessous de 20 MeV, des mesures complémentaires peuvent être nécessaires. De plus pour les réflecteurs, de nouveaux types de matériaux sont envisagés, des mesures spécifiques sont à réaliser.

13.2.5. LES AUTRES MATERIAUX.

L'étude de certains concepts de transmutation en mode hétérogène a conduit à de nouveaux besoins en données nucléaires. En effet, le concept de cible (mode hétérogène) nécessite l'emploi de matrices de type MgO ou MgAl₂O₃, mais également constituées de matériaux modérateurs (B₄C, ZrH₂, CaH₂) pour augmenter les taux de transmutation. Dans ce cas de nouvelles données de diffusion thermique sont nécessaires.

13.2.6. LES DONNEES D'ACTIVATION, DE DPA, DE PRODUCTION DE GAZ.

En dessous de 20 MeV, les besoins en données sont généralement couverts par la R&D menée pour les réacteurs de fission et fusion. Des mesures complémentaires peuvent néanmoins être nécessaires, en particulier pour des matériaux spécifiques aux ADS.

13.3. LES MESURES REALISEES.

Les travaux expérimentaux suivants ont généralement nécessité le développement de nouveaux détecteurs, voire de nouvelles sources de neutrons. Certains projets nécessitent des compléments d'information que nous allons donner dans les paragraphes suivants. Toutes les mesures réalisées sont ensuite détaillées dans le paragraphe 13.3.5.

13.3.1. L'INSTITUT DES MATERIAUX ET MESURES DE REFERENCE.

l'IRMM (Geel, Belgique) est l'un des centres de recherche de la Commission Européenne. Cet institut dispose d'un accélérateur linéaire et d'un Van de Graaff pour la mesure des données nucléaires de l'énergie thermique jusqu'à ~20 MeV. Ces installations permettent des mesures de transmission unique en Europe, mais également des mesures de sections efficaces de capture, de fission, de diffusion inélastique, de production de neutron (n,xn) ou

de particules chargées, d'activation. Les valeurs des sections efficaces au point thermique peuvent également être mesurées en collaboration avec l'ILL (Grenoble) ou BNC (Budapest).

13.3.2. Collaboration n_TOF.

La collaboration n_TOF implique environ 150 physiciens et 40 instituts (dont l'IRMM, le CEA et l'IN₂P₃) dans le cadre du 5^{ème} PCRD européen. Son principal objectif est la mesure des sections efficaces du cycle du thorium ainsi que des actinides mineurs à incinérer.

Installation n_TOF au CERN.

La collaboration n_TOF inclut le développement de nouveaux détecteurs pour la mesure des sections efficaces de fission et de capture auprès d'une nouvelle source de neutrons mise en service en 2002 au CERN. Cette source pulsée, appelée n_TOF, couvre un large spectre allant de ~1 eV jusqu'à plusieurs centaines de MeV. Le flux instantané (par impulsion) est très élevé et permet de bénéficier d'un excellent rapport signal/bruit pour la mesure d'échantillons radioactifs et/ou de faible masse. Les mesures de fission ont été réalisées avec des détecteurs à plaques parallèles (PPAC) conçus par l'Institut de Physique Nucléaire (IPN) d'Orsay et des chambres à fission. Pour les mesures de capture, outre le système classique constitué de deux détecteurs C₆D₆, un spectromètre 4π formé de 40 cristaux de BaF₂ a été développé au sein de la collaboration. De nombreuses mesures ont été réalisées de mi-2002 à fin 2004, la plupart sont en cours d'analyse.

Institut des Matériaux et Mesures de Référence (IRMM), Geel, Belgique.

L'IRMM fait également partie de la collaboration n_TOF. Outre les tests de nouveaux détecteurs, l'IRMM assure des mesures complémentaires telles que la transmission par exemple, qui n'est pas réalisable auprès de l'installation n_TOF.

13.3.3. PROJET MINI-INCA.

Le DAPNIA/SPhN est à l'origine du programme mini-INCA réalisé auprès du réacteur à haut flux de l'Institut Laue-Langevin (ILL, Grenoble). Deux canaux de mesures sont exploités pour mesurer des sections efficaces de fission et de capture, des rapports de branchement ainsi que des potentiels intégraux de transmutation (de produits de fission) et d'incinération (d'actinides). Le premier canal dispose d'un spectre variable à dominante thermique (supérieure à 85%), et le second d'un spectre thermique (à 98%). De plus, le second canal est équipé pour la spectrométrie α et γ en ligne.

Le flux très élevé de neutrons permet l'emploi d'échantillons de masse inférieure à 100 µg. Des micro-chambres à fission (de l'ordre du centimètre) ont été développées à Cadarache par le DER/SPEX. Elles permettent la mesure simultanée de la section efficace de fission d'un élément X par rapport à une référence connue (uranium-235).

13.3.4. COLLABORATION CENBG, IPN-ORSAY ET DAM-ILE DE FRANCE.

Dans le cadre des programmes CNRS sur l'aval du cycle, des travaux sont réalisés sur les données de base du cycle thorium. Les mesures des sections efficaces de capture et de fission sont réalisées sur le Van de Graaff du CENBG (Bordeaux) ou le tandem de l'IPN (Orsay) pour des énergies maximales de quelques MeV. Lorsque la radioactivité et/ou la demi-vie de la cible rend difficile une mesure directe, on mesure la probabilité de fission du noyau composé formé à partir d'une particule incidente et d'un noyau cible stable (ou peu actif) ; la section efficace de formation du noyau composé étant calculée par modèle

optique par des physiciens de la DAM – Ile de France. Par exemple, la section efficace de fission du Pa-233 est déduite de la mesure de la probabilité de fission du Pa-234 formé à partir de la réaction $^{232}\text{Th}(\text{}^3\text{He},\text{p})$. La capture radiative du Pa-233 peut être déduite de la même façon.

13.3.5. SYNTHÈSE DES DONNÉES MESURÉES.

La normalisation des mesures de fission et de capture s'effectue généralement sur des sections "standards" qui sont souvent celles de U-235, U-238, Pu-239 pour la fission et Au-197 par exemple pour la capture. Par ailleurs des mesures complémentaires sur des échantillons de carbone et/ou de plomb sont souvent nécessaires pour caractériser le(s) bruit(s) de fond neutron et/ou gamma dans le cas d'une mesure de capture. Toutes ces mesures, indispensables, ne sont pas recensées dans les paragraphes suivants.

Après publication, les données mesurées sont compilées dans une base internationale gérée par l'AIEA : la base EXFOR. Les paragraphes suivants permettent d'avoir une vue d'ensemble des mesures réalisées ces dernières années.

Mesure et analyse des transmissions (section efficace totale)

L'IRMM dispose d'installations très performantes, uniques en Europe, pour la mesure des sections efficaces totales par la méthode de transmission.

Isotopes : ^{99}Tc , ^{129}I , ^{206}Pb , ^{232}Th , ^{237}Np , ^{240}Pu , ^{242}Pu

Energie min : de quelques dixièmes d'eV à quelques eV

Energie max : de quelques keV à quelques centaines de keV

Mesure et analyse des sections efficaces de capture

Les sections efficaces de capture ont été mesurées dans une gamme d'énergie assez large, incluant le point thermique dans certains cas. L'ensemble des projets/installations cités précédemment a contribué à la mesure de cette section efficace. Les résultats de la collaboration n_TOF ont été particulièrement nombreux et toutes les données ne sont pas encore analysées.

Isotopes : $^{24,25,26}\text{Mg}$, ^{56}Fe , $^{90,91,92,93,94,96}\text{Zr}$, ^{99}Tc , ^{129}I , ^{139}La , ^{151}Sm , $^{204,206,207,208}\text{Pb}$, ^{209}Bi , ^{232}Th , ^{233}Pa , $^{233,234,236}\text{U}$, ^{237}Np , ^{240}Pu , ^{243}Am ,

Energie min : de quelques dixièmes d'eV à quelques eV

Energie max : de quelques centaines de keV à quelques MeV

Isotopes : ^{99}Tc , ^{129}I , ^{209}Bi , ^{232}Th , ^{233}Pa , $^{237,238}\text{Np}$, $^{238,242}\text{Pu}$, $^{241,242\text{gs},243}\text{Am}$

Energie : point thermique (0.025 eV)

Mesure et analyse des sections efficaces de fission

Les sections efficaces de fission ont été mesurées dans une gamme d'énergie assez large, incluant le point thermique dans certains cas. L'ensemble des projets/installations cités précédemment a contribué à la mesure de cette section efficace. Les résultats de la collaboration n_TOF ont été particulièrement nombreux et toutes les données ne sont pas encore analysées.

Isotopes : ^{209}Bi , ^{232}Th , $^{231,233}\text{Pa}$, $^{233,234,236}\text{U}$, ^{237}Np , $^{241,243}\text{Am}$, ^{245}Cm

Energie min : quelques eV

Energie max : de quelques MeV à quelques centaines de MeV

Isotopes : $^{234,236}\text{U}$, ^{238}Np , ^{238}Pu

Energie : point thermique (0.025 eV)

Mesure et analyse des sections efficaces de diffusion inélastique

L'IRMM dispose d'un spectromètre unique en Europe pour la mesure de la section efficace de diffusion inélastique.

Isotopes : $^{206,207,208}\text{Pb}$, ^{209}Bi

Energie min : énergie seuil (quelques centaines de keV)

Energie max : de quelques MeV à 10-20 MeV

Mesure et analyse des sections efficaces de production (n,xn)

Ces mesures ont été réalisées à l'Institut des Matériaux et Mesures de Références (IRMM) et à l'Université Catholique de Louvain (UCL) en collaboration avec l'IRES (CNRS, Strasbourg).

Isotopes : ^{129}I , $^{204,206,207}\text{Pb}$,

Energie min : énergie seuil (quelques MeV)

Energie max : quelques dizaines de MeV

Mesure et analyse des rendements de fission

Ces données ont été mesurées à l'ILL avec le séparateur de masse LOHENGRIN et à Studsvik en utilisant le spectromètre OSIRIS.

Isotopes : ^{233}U (fission rapide), ^{238}Np , $^{242\text{m}}\text{Am}$, $^{243,245}\text{Cm}$ (fission thermique)

Mesure et analyse des données de diffusion thermique

La mesure du spectre de vibration d'un réseau cristallin permet de calculer la section efficace de diffusion à l'énergie thermique. De telles mesures ont été réalisées à l'ILL pour l'hydrure de Calcium (CaH_2).

Mesure et analyse des sections de production de particules chargées et/ou d'activation

Les mesures par activation permettent de remonter aux sections efficaces de production de particules chargées. De nombreuses mesures ont été réalisées à l'IRMM jusqu'à 10-20 MeV pour les matériaux de structures, le plomb, le bismuth et les matériaux des matrices inertes. Plus généralement, le sous-groupe 19 du comité pour la mesure et l'évaluation des données de l'OCDE a également contribué à la mesure de nombreuses sections d'activation en dessous de 20 MeV.

13.4 LA MODELISATION

Le projet HINDAS du 5^{ème} PCRD européen concernait plus particulièrement la mesure et la modélisation des données nucléaires au-delà de 20 MeV. Néanmoins, la limite entre les modèles de réaction nucléaire n'est pas si abrupte et certains modèles ou codes développés dans ce projet sont parfaitement valides en dessous de 20 MeV. C'est particulièrement le cas des modèles co-développés par les équipes du Service de Physique Nucléaire de la DAM – Ile de France et de NRG/Petten, et implémentés dans le code

TALYS. Ce code est dorénavant utilisé pour produire des fichiers évalués utilisables pour les applications.

A plus basse énergie dans le domaine des résonances, les fonctionnalités des codes de matrice-R SAMMY et REFIT ont été étendues pour mieux décrire les fonctions de résolution des installations expérimentales de l'IRMM et du CERN. Ces améliorations permettront une meilleure analyse des données mesurées. Les paramètres de résonance ainsi obtenus seront finalement inclus dans des fichiers évalués, dans un format utilisable par les applications.

Dans le cadre de la mesure des données du domaine non-résolu (de quelques keV à quelques MeV), un nouveau formalisme a été développé par l'IRMM (Geel, Belgique) en collaboration avec l'INRNE (Sofia, Bulgarie) pour représenter de manière rigoureuse les sections expérimentales moyennes.

La méconnaissance de ces noyaux (actinides mineurs, produits de fission à vie longue) a relancé le débat sur la modélisation des incertitudes et la prise en compte des erreurs systématiques. Des travaux de R&D ont débuté pour fournir, à terme, des matrices de covariance dans les fichiers évalués.

13.5. LES EVALUATIONS

Les données mesurées « brutes » sont inutilisables par les codes de simulation. Ces derniers ont besoin de données complètes (en fonction de la réaction, de l'énergie incidente, de l'angle de la particule émise, etc.) et cohérentes. Les mesures ne sont donc qu'une pièce du puzzle que l'évaluateur doit reconstituer avant d'envisager la création de bibliothèques de données.

Certaines de ces mesures (Fe-54, Fe-57, Fe-58, Tc-99, I-129, Pb-204, Pb-206, Pb-207, Pb-208, Bi-209, U-238) ont été modélisées et complétées, le cas échéant, à l'aide de modèles de réaction nucléaire. Les évaluations ainsi produites ont été proposées pour intégration dans le fichier européen JEFF-3.1 dont la diffusion est prévue en 2005. D'autres travaux d'évaluation sont en cours (n_TOF) ou seront réalisés dans le cadre de programmes européens à venir (FP6 – EUROTRANS/NUDATRA) ou internationaux (JEFF), en particulier pour les actinides mineurs.

14. LA VALIDATION DES DONNEES NUCLEAIRES

Comme on l'a vu dans le chapitre précédent les données nucléaires les plus récentes sont rassemblées dans les banques de données évaluées, dont la base de données JEFF, développée par les pays européens de l'OCDE, est un exemple particulièrement complet et performant.

Cependant, la définition de la qualité des données, et les incertitudes à associer pour connaître leur impact sur les calculs et les études de transmutation, passe par une validation expérimentale systématique. Certaines expériences intégrales sont disponibles qui permettent la validation des données nucléaires d'intérêt pour la transmutation.

Il s'agit en particulier des expériences d'irradiation en réacteur de combustibles et d'échantillons d'isotopes séparés. Une expérience typique est l'expérience Profil effectuée à Phénix.

14.1. EXPERIENCE PROFIL

Des échantillons d'isotopes purs sont placés dans des conteneurs. Ces conteneurs, au nombre d'une cinquantaine, sont empilés dans une ou plusieurs aiguilles qui sont elles-mêmes placées au sein d'un assemblage standard. Une aiguille de référence est également caractérisée avant et après irradiation pour servir de comparaison.

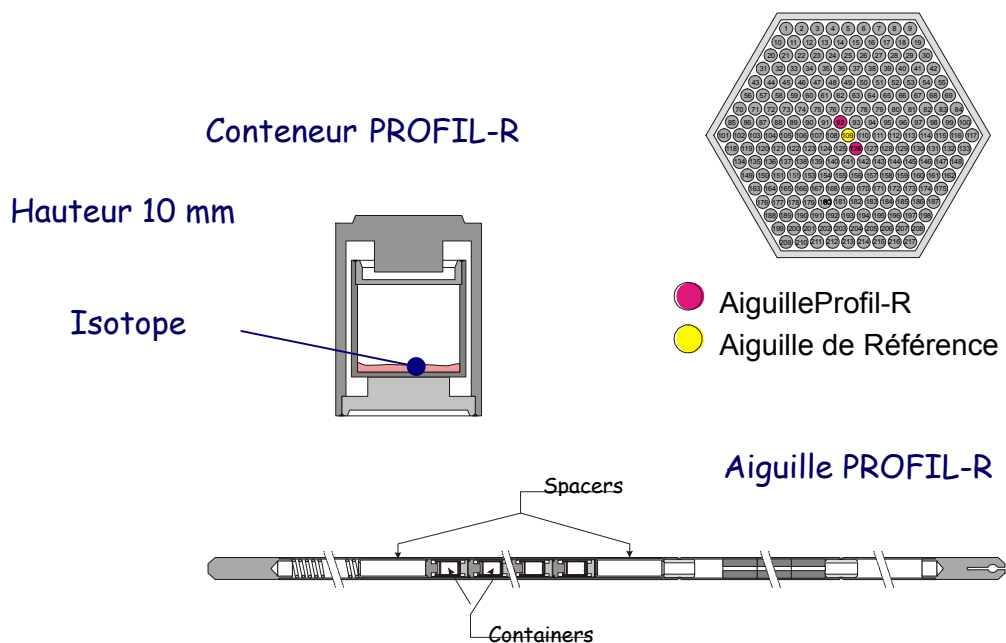


Figure 18 :Caractéristiques de l'expérience PROFIL

L'analyse après irradiation de ces échantillons d'isotopes purs tels que ^{241}Am , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{243}Am , permet d'avoir accès aux sections efficaces de capture ou aux sections efficaces (n,2n) à l'aide des concentrations observées des isotopes de masse $A + 1$ ou $A - 1$. Un exemple des comparaisons calcul/expérience sur les sections de capture est donnée dans le tableau ci-après.

Rapport calcul/expérience (%) avec les données issues de :	JEF-2	JEFF 3
$\sigma_c (^{238}\text{Pu})$	0,97	1,03
$\sigma_c (^{237}\text{Np})$	0,94	0,95
$\sigma_c (^{241}\text{Am})$	1,05	1,06
$\sigma_c (^{243}\text{Am})$	0,97	1,00
$\sigma^c (^{244}\text{Cm})$	/	0,97

Tableau 12 : sections efficaces : valeurs obtenues au cours de l'expérience Profil dans Phénix.

14.2. EXPERIENCE COSMO.

Afin de constituer une base de qualification des méthodes de calcul et des données nucléaires associées au concept de cible modérée en RNR et en soutien plus direct à l'expérience d'irradiation ECRIX-B (qualification combustible) actuellement irradiée dans PHENIX, un programme de physique neutronique a été réalisé dans l'installation MASURCA. L'expérience COSMO1 a consisté à simuler un assemblage modéré composé de sodium, de modérateur $^{11}\text{B}_4\text{C}$ (bore très appauvri en ^{10}B capturant) et d'acier, placé au centre d'un cœur de référence en UPuO_2 + sodium.

COSMO1

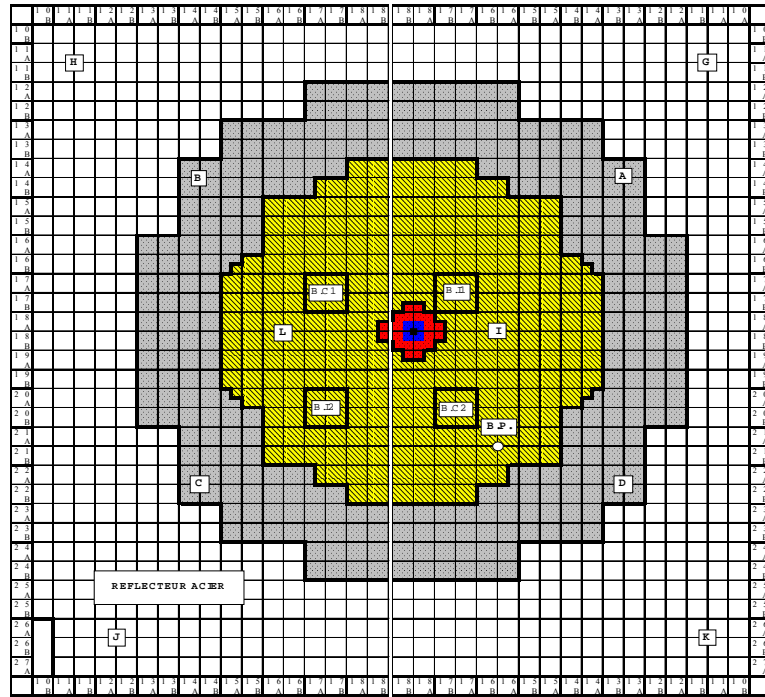


Fig.xx Configuration COSMO1-ECRIX-M (999 cell. PIT)



Configuration COSMO1/ECRIX-M

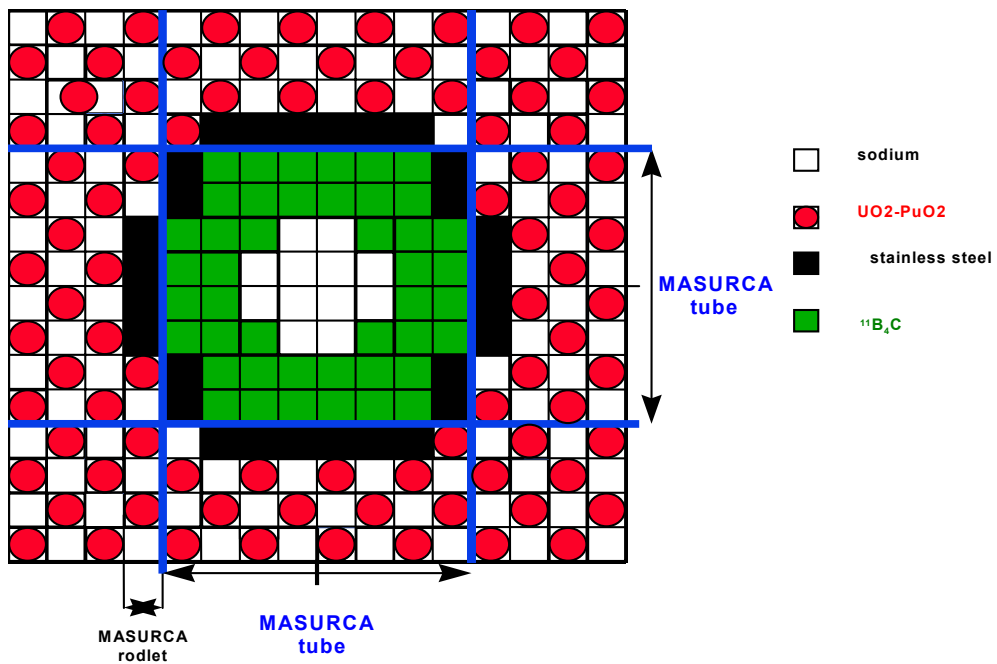


Figure 19 : Caractéristiques de l'expérience COSMO

La mesure de taux de fission, par des chambres à fission placées à la fois sur la partie cœur et dans l'assemblage modéré au B₄C, permet d'élaborer des indices de spectre.

Un résumé des valeurs (C-E)/E obtenues au centre de l'assemblage B4C comparées à celles mesurées dans le cœur de référence est présenté dans le tableau suivant :

	Comparaison calcul – expérience sur les indices de spectre (σ/σ_{U235})		
	Incertitude exp. (2σ)	COSMO1-Référence (C-E)/E	COSMO1-M (C-E)/E
U 238 (n,f)	$\pm 3 \%$	- 1.2	- 2.5
Np 237 (n,f)	$\pm 3 \%$	- 3.5	-9.3
Pu 238 (n,f)	$\pm 5 \%$	7.5	11.8
Pu 239 (n,f)	$\pm 2.5 \%$	0.6	-2.0
Pu 240 (n,f)	$\pm 4.5 \%$	2.7	-0.2
Pu 241 (n,f)	$\pm 4 \%$	0.1	-3.7
Pu 242 (n,f)	$\pm 4.5 \%$	-2.1	-7.7
Am 241 (n,f)	$\pm 4.5 \%$	7.7	0.5
Am 241 (n,f)	$\pm 4.5 \%$	5.1	-5.2

Tableau 13 : Comparaisons C / E sur les indices de spectre COSMO

On constate que les indices de spectres des actinides majeurs, ajustés dans la bibliothèque ERALIB1, issue de JEF2, sont reproduits à l'intérieur des incertitudes expérimentales. Par contre, pour les actinides mineurs, des écarts plus importants sont observés. Ces résultats ont en partie motivé l'intérêt du lancement des expériences d'irradiation PROFIL complémentaires pour à la fois élargir la qualification des données nucléaires dans le spectre rapide de référence par rapport aux précédentes mesures PROFIL 1 et 2, et investiguer le nouveau domaine énergétique caractéristique du spectre neutronique régnant à l'intérieur d'une cible modérée.

Ces expériences, appelées PROFIL-R et PROFIL-M sont en cours d'irradiation dans PHENIX.

De même, une expérience de qualification des données nucléaires en spectre thermique et épithermique est programmée dans le réacteur critique MINERVE (programme OSMOSE)

L'expérience consiste à osciller toute une série d'isotopes séparés au sein de réseaux représentatifs des spectres neutroniques bien caractérisés (thermique et épithermique).

Les isotopes sélectionnés couvrent toute la chaîne des Th, U, Np, Pu, Am et Cm.

L'interprétation doit permettre de mesurer les sections d'absorption avec une précision très fine de l'ordre du pour cent.

Ce programme fait l'objet d'une collaboration franco-américaine (CEA-DOE).

15. EFFET DES INCERTITUDES DES DONNEES NUCLEAIRES SUR LES PARAMETRES D'INTERET POUR LA TRANSMUTATION.

Dans ce paragraphe, on se limitera à quelques exemples typiques de l'évaluation de l'impact des incertitudes des données de base sur des paramètres importants pour la transmutation.

Un premier exemple concerne, à partir des incertitudes sur les sections efficaces moyennes, l'évaluation de l'incertitude sur la radiotoxicité potentielle R dans un stockage. Les incertitudes considérées sont données dans le tableau 14.

Tableau 14 : Estimation (pessimiste) d'incertitudes sur les données nucléaires. Ces incertitudes sont utilisées pour évaluer l'incertitude sur la source de radiotoxicité dans un stockage. λ est la constante de décroissance.

Isotope	$\sigma_{\text{cap}}(\%)$	$\sigma_{\text{fis}}(\%)$	$\sigma_{(n,2n)}(\%)$	$\lambda(\%)$
^{235}U	10	5	50	3
^{238}U	10	8	50	3
^{239}Pu	15	5	50	3
^{240}Pu	25	20	100	3
^{241}Pu	25	20	100	3
Autres	50	50	300	5

Trois cas sont considérés : stockage direct (100 % des actinides aux déchets), retraitement sans séparation des actinides mineurs (100 % des actinides mineurs et 0.3 % du Pu aux déchets), et retraitement avec séparation des actinides mineurs (1 % des actinides mineurs et 0.3 % du Pu aux déchets).

L'incertitude sur la source de radiotoxicité potentielle dans les trois stratégies est donnée dans le tableau 15. Cette incertitude est plutôt modeste, malgré les valeurs assez pessimistes des incertitudes données dans le tableau 14.

Pour le cas A, la contribution majoritaire à la radiotoxicité est assurée par le Pu.

L'incertitude de l'ordre de 10 % découle de l'incertitude à la source liée à sa production via l' ^{238}U et à sa disparition principalement par l'isotope 239.

Au cours du temps, sa décroissance sur d'autres isotopes et éléments engendre des incertitudes supplémentaires, via les constantes de décroissance λ .

Pour la stratégie B, seul 0,3 % du Pu part aux déchets.

La radiotoxicité des déchets est majoritairement gouvernée par les actinides mineurs, aux échelles de temps considérés (10^3 et 10^5 ans).

Les incertitudes sur les sections efficaces contribuant à la production de ces actinides mineurs sont nettement plus importantes que celles liées à l' ^{238}U et au Pu, ce qui explique que l'incertitude résultante sur la radiotoxicité soit de l'ordre de 30 %.

Pour la stratégie C, le recyclage des actinides mineurs induit une augmentation de l'incertitude sur le calcul de la radiotoxicité du combustible irradié. Mais le flux de matières allant aux déchets est composé de 1 % des actinides mineurs et de 0.3 % du Pu présent dans le combustible irradié. Compte tenu des masses en présence, le poids prépondérant reste au Pu, ce qui explique la valeur d'incertitude calculée pour ce cas de l'ordre de 10 % également.

Stratégie	Radiotoxicité A 10 ³ ans	Radiotoxicité A 10 ⁵ ans
A (stockage direct)	± 8 %	± 10 %
B (retraitement Pu)	± 29 %	± 32 %
C (retraitement Pu + AM)	± 10 %	± 10 %

Tableau 15 : Incertitudes (à un « sigma ») sur les valeurs de la source de radiotoxicité dans un stockage (cas d'un assemblage irradié dans un réacteur rapide de type EFR).

Un second exemple d'analyse d'incertitude concerne un combustible homogène à faible teneur en actinides mineurs. Si l'on introduit du neptunium et de l'américium dans le combustible MOX d'un RNR (par exemple entre 2 % et 5 %), la question suivante se pose : quel est l'impact des incertitudes associées aux sections $\sigma(n,f)$, $\sigma(n,\gamma)$ et $\sigma(n,n')$ de l'américium et du neptunium sur :

- Le K_{eff} ;
- La réactivité due à la vidange du sodium.

Les résultats, indiqués dans le tableau suivant, montrent que les incertitudes sur les données nucléaires n'affectent pas de façon spectaculaire les performances nominales des cœurs. Par exemple, une incertitude de ± 10 % sur la section efficace de fission du neptunium 237 conduit à une incertitude de 0,15 % sur le coefficient de multiplication effectif K_{eff} et de 0,5 % sur le coefficient de réactivité associé à la vidange du caloporteur (sodium) dans tout le cœur.

Les incertitudes sur σ_c , σ_f et σ_{inel} sont prises respectivement à ± 10 %, ± 10 % et ± 30 %	²³⁷ Np			²⁴¹ Am		
	σ_c	σ_f	σ_{inel}	σ_c	σ_f	σ_{inel}
K_{eff}	± 0,3 %	± 0,15 %	± 0,05 %	± 0,4 %	± 0,16 %	± 0,3 %
Coef. de vide du sodium	± 2,7 %	± 0,5 %	± 0,3 %	± 3,5 %	± 0,5 %	± 0,4 %

Tableau 16: Effets des variations des sections efficaces sur le coefficient de multiplication k_{eff} et sur le coefficient de vide du sodium.

Un autre exemple porte sur les cœurs dédiés à la transmutation des actinides mineurs. Le calcul de la propagation des incertitudes des données nucléaires issues de JEF-2 sur le paramètre fondamental K_{eff} , qui représente la réactivité du cœur, pour un cœur de RNR chargé uniquement avec du Pu et un mélange d'Am + Cm représentant plus de 50 % de la masse totale des isotopes lourds a été réalisé.

L'incertitude sur le K_{eff} est de l'ordre de 1500 pcm. Les contributions à cette incertitude globale proviennent principalement des incertitudes des sections de fission pour plus de 60 %, puis de celles des sections de capture pour 30 % et des sections inélastiques pour moins de 10 %.

La décomposition par isotope permet de mettre en évidence que le Pu 238 et le Cm 245 représentent la part prépondérante pour la fission et que c'est l'Am 241 qui est majoritaire pour la capture.

Un autre exercice d'intérêt est d'évaluer la sensibilité des compositions isotopiques pour la situation d'équilibre obtenue, après plusieurs recyclages (de l'ordre de la dizaine), aux incertitudes des données nucléaires.

Par une variation de + 10 % de la section de capture de l'Am 241, on retrouve au premier ordre l'impact direct sur la concentration en Am 241 qui baisse d'environ 10 %. L'impact sur les autres isotopes est évidemment variable, dépendant des interactions avec l'Am 241 selon la chaîne d'évolution. On constate néanmoins des variations des quantités des isotopes d'intérêt inférieures à 4 %.

Pour une variation de + 10 % dans la section de capture de l'Am 243, les effets sont similaires mais plus faibles en amplitude. Les variations sur les autres isotopes ne dépassent pas 2 %.

Globalement la réactivité en fin de cycle s'en trouve affectée d'environ 300 pcm.

La discussion de ce chapitre est tout à fait incomplète. Cependant les exemples, donnés ici à titre d'illustration, montrent que les données nucléaires disponibles aujourd'hui, et les incertitudes que l'on peut associer, permettent des analyses fiables et permettent d'indiquer l'intérêt d'une stratégie par rapport à une autre, du moins de façon qualitative. Il est certain que pour des phases plus avancées des études, et en particulier, dans le cas d'un éventuel avant-projet de réacteur pour la transmutation, la qualité des données nucléaires devrait être améliorée de façon significative pour devenir comparable à celle des données utilisées dans les projets des réacteurs « standard ». Une analyse similaire pourrait être faite pour les données et les modèles utilisés pour le calcul des systèmes hybrides et les conclusions seraient assez similaires. Cependant, certains domaines, comme la détermination des produits de spallation, présentent des incertitudes nettement plus importantes.

16. LA QUALIFICATION PHYSIQUE POUR LE CALCUL DES SYSTEMES HYBRIDES.

Dans le domaine de la neutronique, de multiples études et programmes expérimentaux ont été réalisés, dans le passé, en soutien au développement des réacteurs critiques à spectres thermiques et rapides et des outils de calcul correspondants.

Une démarche identique doit être menée pour les ADS, pour lesquels le domaine d'utilisation des outils de calcul doit être étendu au cas des massifs sous-critiques, prendre en compte des particules d'énergie très supérieures à celles des neutrons de fission et des réactions nucléaires jusqu'alors peu ou pas sollicités (réactions (n,xn) par exemple). Les expériences MUSE - menées sur la maquette critique MASURCA du CEA Cadarache - ont pour but de valider expérimentalement les techniques de mesures et les performances des codes de calculs neutroniques dans ce domaine.

Dés 1995, les expériences MUSE-1 puis MUSE-2, menées à l'aide d'une source de californium 252 placée au centre du cœur, ont permis de vérifier que les techniques expérimentales mises en œuvre dans des cœurs critiques étaient aussi utilisables dans des configurations sous-critiques.

En 1998, les expériences MUSE-3 ont constitué la première étude paramétrique d'importance avec la mise en œuvre successive d'une configuration critique puis de trois configurations présentant des niveaux de sous-criticité croissants (~-500, -1000 et -1500 pcm). Basé cette fois-ci sur l'utilisation d'un générateur de neutrons du commerce aux performances modestes, l'interprétation des mesures fut riche d'enseignements et permit d'affiner la préparation du programme MUSE-4.

Les expériences MUSE-4 constituent un programme de plus grande ampleur que les précédents, tant par sa durée que par son contenu. Dotées d'un financement au titre 5^{ème} PCRD et soutenues par le groupement de recherche GEDEPEON, ces expériences se sont déroulées sur la période 2001-2004 dans le cadre d'une large collaboration internationale regroupant 15 organismes de 12 pays différents.

Découpé en deux phases bien distinctes, ce programme s'est tout d'abord proposé de caractériser un cœur critique présentant certaines hétérogénéités typiques d'un ADS, telles que la présence du canal accélérateur ou d'une zone importante de plomb ; puis ce massif a été rendu sous-critique et fut couplé à une source pulsée de neutrons de 2.6 puis 14 MeV générés au moyen de l'accélérateur GENEPI. Une ultime phase du programme a élargi le domaine d'étude au caloporteur plomb.

L'analyse de l'expérience et la comparaison des mesures avec des calculs déterministes et stochastiques sont en cours. Toutefois, les résultats préliminaires ont permis d'aboutir aux conclusions suivantes :

- **Masse critique:** l'accord entre les réactivités mesurées et calculées est excellent, de la criticité à $k_{eff} = 0.95$ et ce dans les configurations avec caloporteur sodium ou plomb. Les calculs déterministes (ERANOS) et stochastiques (MCNP-X), donnent des résultats comparables, qui sont présentés dans le tableau 17 :

	Mesure (MSM)	Calcul ERANOS	Calcul MCNP-X
Bibliothèque		ERALIB1	JEF+La150n+Pu239JEF F3
Configuration critique	- 80 ± 4	- 40 ± 315	+ 11 ± 18*
Configuration SC0	- 607 ± 32	- 594 ± 315	- 689 ± 19*
Configuration SC2	- 2840 ± 163	- 2873 ± 315	- 3036 ± 18*
Configuration SC3 – Na	- 4473 ± 261	- 4464 ± 315	- 4126 ± 19*
Configuration SC3-Pb	- 3657 ± 261	- 3604 ± 315	-

(* incertitude statistique uniquement)

Tableau 17: réactivités mesurées et calculées (en pcm)

- Paramètres cinétiques: l'accord entre mesures et calculs est très bon pour la fraction de neutrons retardés β_{eff} et acceptable pour le temps de génération Λ .
- Paramètre φ^* : ce paramètre quantifie l'importance de la source externe de neutrons par rapport à la source de fission du réacteur. On constate que la valeur de φ^* est plus élevée avec la source (D,T) de 14 MeV qu'avec la source (D,D) de 2.6 MeV, en raison des réactions (n,2n) dans le plomb au-dessus de 7 MeV, qui augmentent la multiplication. Avec la source (D,D), la valeur de φ^* reste supérieure à 1, ce qui montre que cette source est plus efficace que la source de fission.
- Traverses de taux de fission: l'accord entre mesures et calculs est très bon pour les traverses de taux de fission (voir Figure suivante), excepté pour les réactions à seuil dans le centre du canal EW et pour les réactions sans seuil près du réflecteur ; l'origine de ces désaccords provient de la difficulté bien connue des codes neutroniques déterministes à modéliser correctement la corrélation des dépendances spatiales, énergétiques et angulaires à l'interface de milieux très différents.

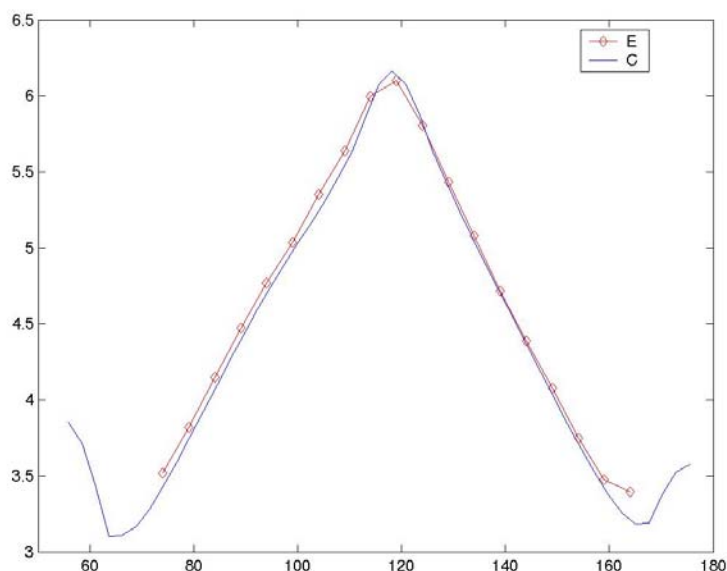


Figure 20.: traverse du taux de fission de ^{235}U dans le canal NS pour la configuration SC3-Na-DT

La forme de la nappe de taux de fission de ^{235}U (indicative de la puissance) calculée sans et avec la source externe de neutrons est montrée sur la figure suivante, pour les deux types de sources (D,D) et (D,T) et à différents niveaux sous-critiques. La source (D,T) est la plus intense et son importance est d'autant plus marquée que k_{eff} est faible.

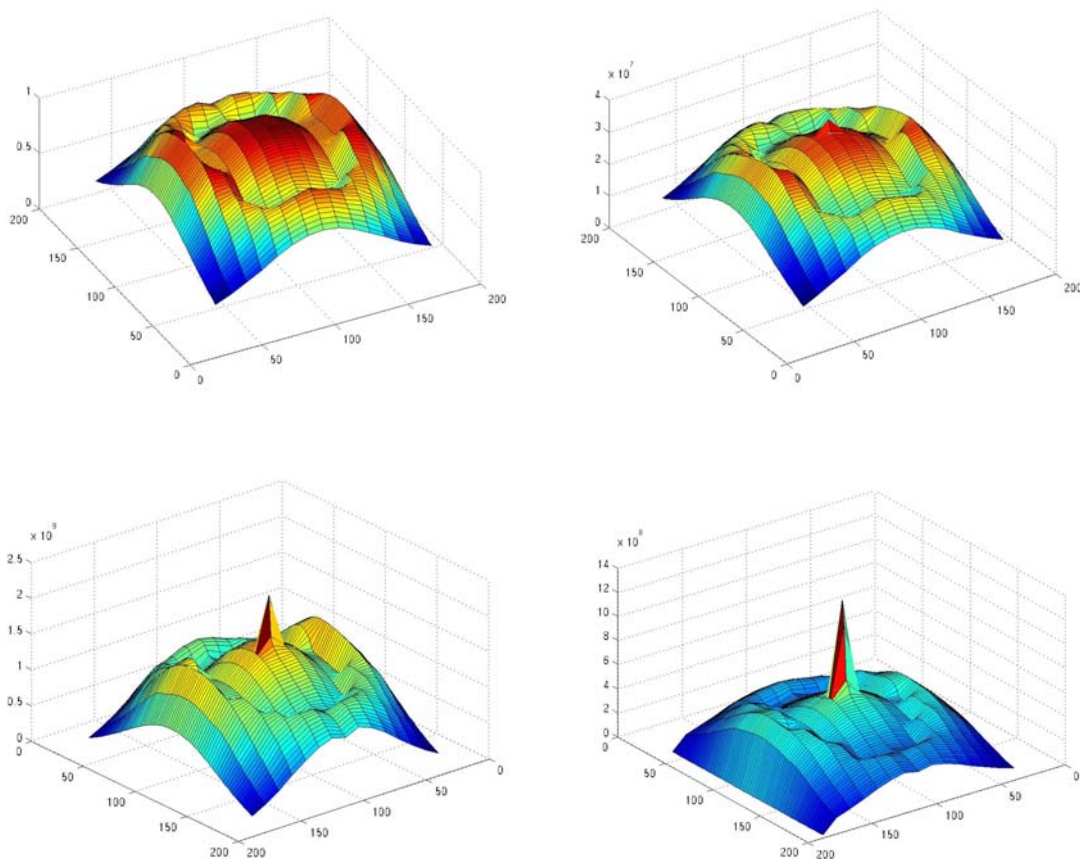


Figure 21 : nappe de taux de fission de ^{235}U au plan médian cœur dans les configurations Critiques, SC0-(D,D), SC0-(D,T) et SC2-(D,T)

- Indices de spectre: les indices de spectre – qui sont les rapports des sections efficaces de deux isotopes et permettent d'estimer indirectement le spectre neutronique - sont correctement calculés dans le combustible, mais mal reproduits près du plomb, comme l'indique le tableau suivant :

C/E sur l'indice de spectre	Combustible	Plomb
^{242}Pu	0.98	-
^{237}Np	0.91	0.92
^{241}Am	0.96	0.92
^{243}Am	-	0.99
^{232}Th	0.89	0.83

Tableau 18 : C/E sur les indices de spectre (par rapport à la fission de ^{235}U)

Une grande sensibilité de ces indices aux sections efficaces élastique et inélastique du plomb a été mise en évidence, comme le montre la figure suivante :

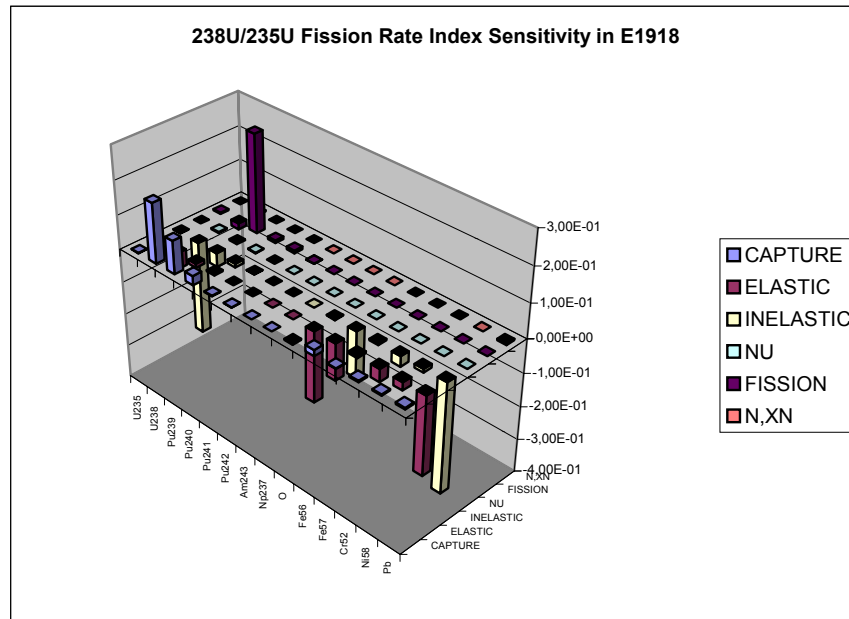


Figure 22 : sensibilité de l'indice de spectre $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ dans le canal E19-18 (plomb) à différentes sections efficaces

- **Indices Spatiaux:** des mesures d'activation dans différentes positions du cœur ont mis en évidence l'impact des hétérogénéités propres aux ADS sur la précision des calculs; en particulier, on a noté la difficulté de prédire correctement le spectre à haute énergie aux alentours de la zone centrale en plomb. L'influence de la source externe est notable uniquement sur les indices à seuil et ces effets n'apparaissent qu'au voisinage de la source. Des effets de fuites le long du canal de l'accélérateur ont été mis en exergue.
- **Cinétique:** on peut montrer que la décroissance du flux neutronique suite à une brusque injection de neutrons est directement liée à la réactivité et chercher ainsi à déterminer cette dernière par des mesures de type « source pulsée » ; cependant, l'interprétation de MUSE-4 a montré que les codes de calcul ne permettent de prédire l'évolution temporelle du flux que pour un laps de temps court après un pulse de neutron. Pour des temps plus longs, on observe sur la figure suivante une nette déviation entre mesures et calculs :

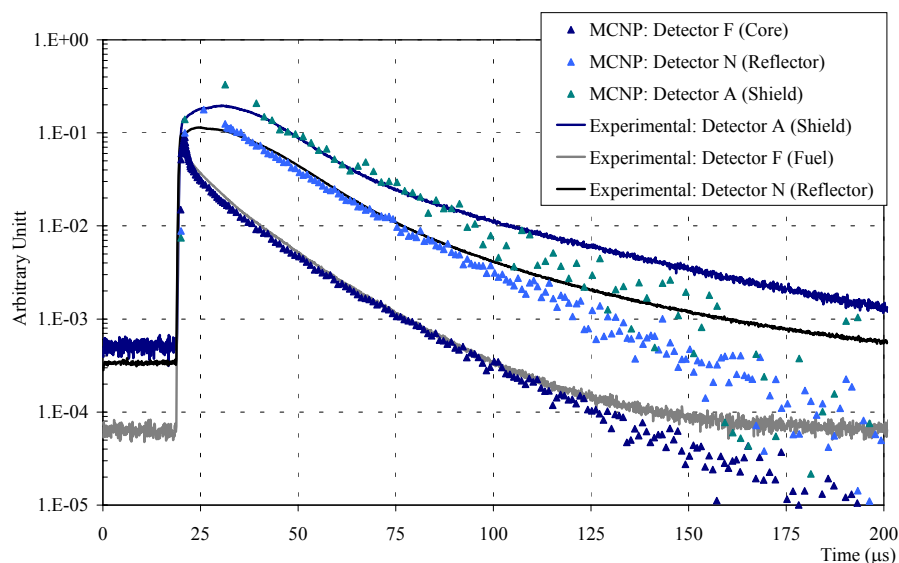


Figure 23 : Comparaison entre mesure et calculs de l'évolution temporelle du taux de fission de ^{235}U suite à un pulse de neutrons

Pour des niveaux de sous criticité importants, seule la méthode des aires, qui utilise uniquement l'intégrale de la fonction réponse du réacteur à l'excitation de la source externe, permet de déterminer la réactivité du système, comme le montre le tableau suivant. De par sa nature, cette méthode ne permet pas un suivi instantané de la sous criticité d'un ADS, mais peut être utilisée comme moyen de calibration.

Décteur	Réactivité (\$)		Dispersion		
	Exp.	Cal.	Exp.	Cal.	(E-C)/C (%)
I	-14.3	-13.1	1.14	1.06	+7.5
L	-12.9	-13.0	1.03	1.03	-0.6
F	-11.9	-11.8	0.95	0.94	+0.7
M	-12.7	-12.8	1.01	1.02	-0.8
G	-13.0	-12.4	1.04	0.99	+5.0
N	-12.1	-11.8	0.96	0.94	+2.2
H	-12.6	-12.1	1.00	0.96	+4.3
A	-12.7	-12.4	1.01	0.98	+2.8
B	-13.0	-12.8	1.04	1.01	+1.9

Tableau 19 : Evaluation de la réactivité de la configuration SCO au moyen de la méthode des aires: comparaison entre mesure et calculs

En conclusion, on note la bonne capacité de codes de calculs et des bibliothèques de données nucléaires associées à estimer les différents paramètres physiques de l'expérience MUSE-4. Des nuances à ces performances sont à apporter en ce qui concerne les effets d'interface (ce problème est à l'étude actuellement) et le spectre à haute énergie au voisinage immédiat de la source externe.

17. LA QUALIFICATION GLOBALE SUR DES EXPERIENCES D'IRRADIATION

Pour tester et mettre au point les combustibles ou cibles de déchets à transmuter, il est nécessaire de procéder à des irradiations en réacteur pour statuer sur la tenue et le comportement des différents composés et matériaux envisagés.

Un programme très complet, représentatif des différentes options envisagées pour la transmutation, d'élaboration et d'irradiation de combustibles tests est en phase de réalisation, en particulier dans le réacteur PHENIX.

La mesure après irradiation des compositions isotopiques présentes dans les combustibles ou cibles testées permet d'évaluer un taux de transmutation. Ces résultats expérimentaux peuvent donc servir de qualification globale des méthodes de calcul neutronique. Ce type de qualification représente seulement un indicateur de performances contrairement aux autres programmes de physique mentionnés précédemment qui assurent un retour direct sur la qualité des données nucléaires et/ou des méthodes de calcul.

A ce titre, l'analyse de l'expérience SUPERFACT réalisée dans PHENIX (irradiation d'aiguilles combustible contenant du Np 237 et de l'Am 241 à différentes teneurs avec un support en UO₂, (Cf. figure suivante) a permis de comparer les taux de transmutation du Np 237 et de l'Am 241 mesurés et calculés (voir tableau ci-après).

L'interprétation a été réalisée en utilisant le formulaire de calcul ERANOS associé à la bibliothèque de données JEF-2.

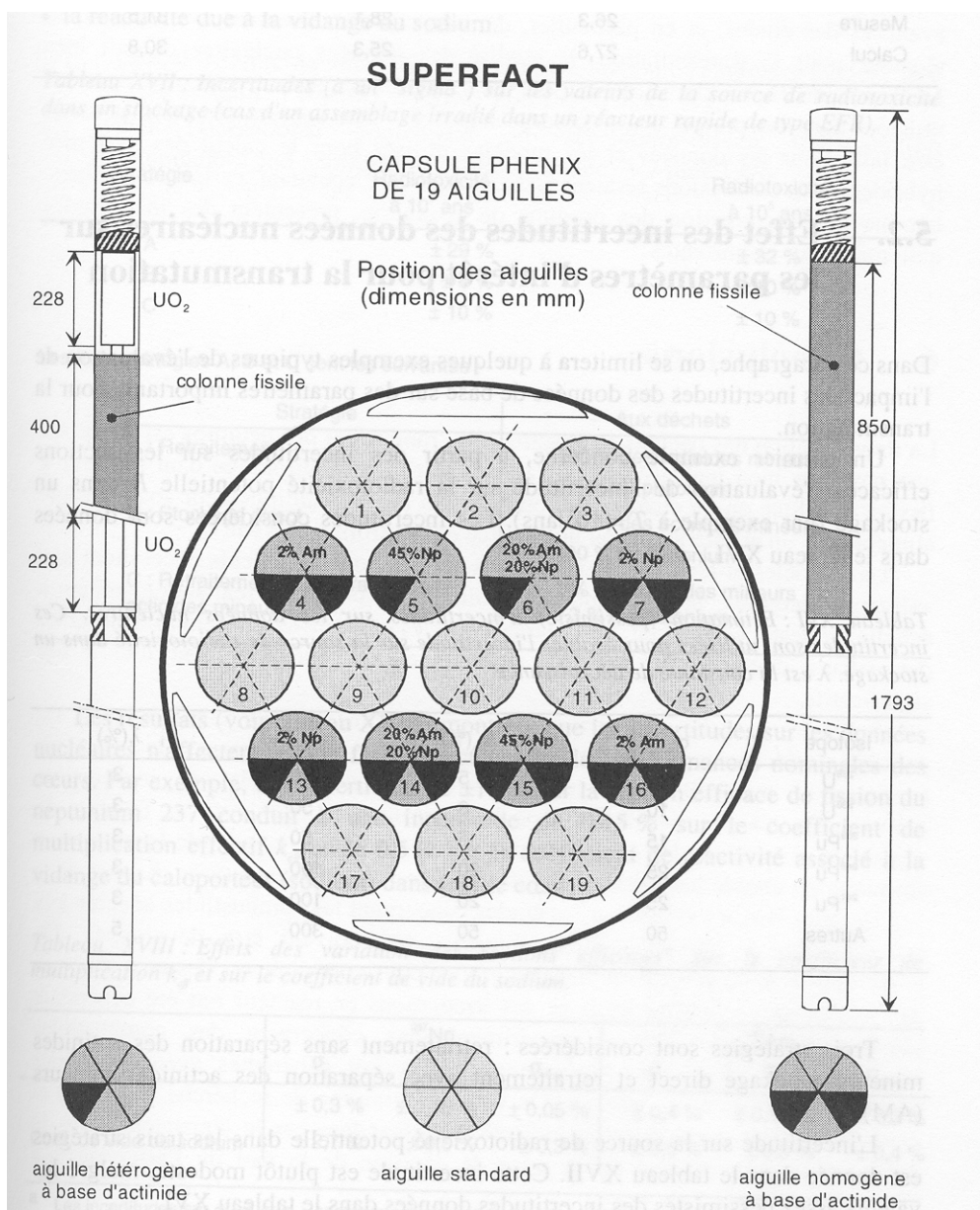


Figure 24 : Conception de la capsule d'irradiation Phénix Superfact

Isotope	^{237}Np		^{241}Am	
	Type d'aiguille	45 % de ^{237}Np	2 % de ^{241}Am	20 % de ^{241}Am
Mesure	26,3	28,1	31,5	
Calcul	27,6	25,3	30,8	

Tableau 21 : Taux de transmutation (%) : valeurs expérimentales et calculées.
Expérience Superfact.

Ces résultats sont tout à fait satisfaisants et démontrent la qualité globale des méthodes de calcul et des données nucléaires actuelles à reproduire les processus de transmutation sous irradiation pour l'option de recyclage homogène des actinides mineurs en RNR.

L'interprétation des expériences d'irradiation suivantes, en cours à PHENIX :

- METAPHIX, pour le recyclage homogène conjoint d'actinides et de lanthanides,
- ECRIX B et H, pour le recyclage d'Am en cibles localement modérés,
- ANTICORP1, pour la transmutation du Tc 99,
- FUTURIX-FTA, pour les combustibles fortement chargés en actinides mineurs (50 % des noyaux lourds), type ADS

permettra de tirer le même type d'information pour les autres options de transmutation des déchets à vie longue.

18. CONCLUSION.

On condense ici les principales conclusions et recommandations résultant des études neutroniques de base effectuées sur la destruction des déchets radioactifs à vie longue, actinides mineurs (AM) et produits de fission à vie longue (PFVL).

Efficacité globale de transmutation

L'efficacité de la transmutation des déchets à vie longue dépend en premier lieu de deux paramètres clés : les sections efficaces qui traduisent la probabilité d'occurrence des différentes réactions possibles entre le neutron incident et le noyau de l'élément considéré et le niveau de flux neutronique.

L'analyse élémentaire menée sur les sections efficaces des actinides montre, qu'indépendamment du type de réacteurs considérés (critiques/sous-critiques, nature du caloporteur,...), le spectre à neutrons rapides permet de minimiser les réactions de capture neutronique, « parasites » et favorise les réactions de fission pour l'ensemble des actinides, ce qui lui confère son caractère « d'omnivore ».

En spectre thermique au contraire, les éléments considérés sont essentiellement capturants et la fission ne peut être obtenue que pour un nombre plus limité d'isotopes obtenus après une succession de captures neutroniques, ce qui pénalise le bilan neutronique d'ensemble.

Le niveau du flux neutronique présent dans le réacteur conditionne quant à lui la vitesse de transmutation et donc les performances obtenues lors de chaque passage du combustible en réacteur.

Dans les conditions d'irradiation en réacteurs standards, les taux de fission atteints sont de l'ordre de 5 à 10 % en REP et de 15 à 30 % en RNR. Dans les deux cas un multirecyclage s'impose pour atteindre des performances globales satisfaisantes.

Par contre, le concept de cibles localement modérées en RNR, en combinant le haut niveau du flux, de l'ordre de 10^{15} n/cm².s régnant dans un RNR, et l'adaptation locale du spectre neutronique permet d'obtenir théoriquement des taux de fission très élevés, supérieurs à 90 %, en un seul passage en réacteur (monorecyclage).

Le bilan neutronique de transmutation

Les RNR ont un potentiel neutronique suffisant pour recycler quasi indéfiniment l'uranium et tous les transuraniens qu'ils produisent sous irradiation. Ce n'est pas le cas des REP (il faudra toujours enrichir en ²³⁵U au moins une partie du parc), dont le rôle à cet égard ne peut être que transitoire. Mais les réacteurs à neutrons lents étant largement majoritaires dans les parcs français et mondial actuels, leurs impacts, avec éventuellement une participation progressive de RNR, sont incontournables à court et moyen terme. La transmutation des PFVL consomme des neutrons, quel que soit le spectre ; ici aussi les RNR sont favorisés par leur surplus de neutrons.

Impacts sur le cœur et le cycle

L'introduction en réacteur, en plus du plutonium, d'AM ou de PFVL, capturants, entraîne une modification des paramètres neutroniques du cœur, et en particulier la dégradation de certains coefficients de réactivité, influençant la sûreté. De ce point de vue, les teneurs admissibles par assemblage sont faibles en cas de recyclage homogène (déchets mélangés au combustible), et notablement plus élevées en cas de recyclage hétérogène ; globalement elles sont plus faibles en REP de l'ordre de 1 à 2 % qu'en RNR (de l'ordre de 3 à 5 %).

De manière analogue, la présence d'AM dans les assemblages à irradier a un impact sur les paramètres concernant les manipulations tout au long du cycle du combustible (puissances, sources de rayonnement et débits de dose). Par ordre d'influence croissante, on a le neptunium (presque sans influence), puis l'américium (important débit de dose γ) et finalement le curium, source extrêmement active de γ et de neutrons. Les PFVL sont en général peu actifs, émettent peu de chaleur, des γ de faible énergie et pas de neutrons.

Potentialités du recyclage homogène. Le cas du neptunium

Du point de vue de la physique du cœur, le recyclage homogène de l'ensemble Pu+AM est possible en REP, sur support U enrichi seulement et avec un rapport de modération accru. Le recyclage homogène est également possible en RNR. Mais l'ensemble des fabrications d'assemblages combustibles doit supporter les pénalités dues à l'américium et au curium présents. Le recyclage hétérogène de ces éléments permettrait de concentrer les problèmes de fabrication et de retraitement sur un flot massique limité, en les intensifiant certes par la concentration des matières actives, mais laissant inchangées les technologies existantes pour le combustible standard.

Le neptunium n'a quasiment pas d'impact de ce point de vue et peut être recyclé en mode homogène simultanément au plutonium.

L'américium

L'américium peut être transmuté par multirecyclage homogène ou hétérogène, en REP et en RNR ; le recyclage en mode hétérogène permet de concentrer les fabrications spéciales sur un plus petit nombre d'assemblages mais exacerbe les problèmes de manipulation car l'américium donne par capture neutronique des noyaux très actifs et source de neutrons : c'est pour cela qu'est proposé le monorecyclage de l'américium en RNR à très fort taux de fission (>90%).

En optimisant des assemblages modérés qui contiennent les aiguilles cibles d'américium, on tire profit à la fois du niveau élevé de flux neutronique régnant dans un RNR et de l'accroissement des probabilités de réaction pour les neutrons ralentis, ce qui permet d'atteindre des taux de fission de 90% en une seule passe d'irradiation.

La question du curium

Le curium est un élément tellement actif (source γ et neutronique) qu'il est légitime de vouloir éviter son recyclage ; ne pas le recycler limite cependant les réductions d'inventaire massique ou radiotoxique accessibles par rapport au cycle ouvert. L'obtention de réductions importantes passe forcément par une gestion du curium autre que son enfouissement pur et simple.

Ces considérations ont donc mené à l'étude du recyclage du curium, seul ou conjointement à l'américium en RNR. Les solutions privilégiant une faible production de curium lors du recyclage du plutonium ou de la transmutation de l'américium, ou encore minimisant les quantités de curium à recycler devront être favorisées, dont en particulier le multirecyclage à fort taux de fission. Il faut noter dans ce dernier cas l'importance des noyaux formés par capture au-delà du curium, comme le californium, qui sont d'intenses sources de neutrons.

Les produits de fission à vie longue.

Si le recyclage de certains PFVL apparaît réalisable, le recyclage de leur totalité n'est pas faisable, car ces isotopes sont produits en assez grande quantité, dans des éléments chimiques dont ils peuvent ne représenter qu'une faible fraction, et sont des consommateurs nets de neutrons, qui « empoisonnent » le cœur.

Leur comportement chimique, différent de celui des actinides, conduit à envisager leur recyclage en mode hétérogène.

Les RNR peuvent assurer la disparition de certains PFVL (^{99}Tc et ^{129}I) dans des assemblages modérés. Les REP le permettent plus difficilement (taux de transmutation réduits et surenrichissement nécessaire).

L'acceptabilité des lanthanides avec les actinides.

Afin de limiter à un niveau acceptable la dégradation des performances de transmutation et l'impact sur les paramètres de fonctionnement et de sûreté des réacteurs, les facteurs minimums de séparation des lanthanides par rapport aux actinides mineurs lors des opérations de traitement du combustible sont, pour une référence LN/AM=20 issu d'un combustible UOX, les suivants :

- environ 300, pour les options de recyclage en REP
- environ 50, pour les options de recyclage en RNR

Les méthodes de calcul.

La pertinence des résultats de faisabilité scientifique et technique dépend de la qualité des outils de calcul utilisés. Sont regroupés sous le vocable de « formulaire », l'ensemble des logiciels de simulation numérique, les bibliothèques de données nucléaires, et les résultats des programmes expérimentaux permettant de tester les qualités prédictives du système et donc de le qualifier pour un domaine d'application donnée, en lui associant un niveau d'incertitude.

La qualité de chacun de ces trois sous-ensembles conditionne la précision et le niveau d'incertitude global associé aux diverses études.

Les logiciels de neutronique actuels, de type probabiliste ou déterministe se révèlent tout à fait bien adaptés à la résolution des problèmes spécifiques de la transmutation.

Des études de sensibilité et de propagation d'incertitudes ont permis de conclure que le niveau de précision actuel permet des analyses fiables et de discerner l'intérêt d'une option de transmutation par rapport à une autre.

Il est certain que pour des phases plus avancées des études, par exemple dans le cas d'un éventuel avant projet de réacteur pour la transmutation, la qualité des données nucléaires, en particulier, se doit d'être améliorée de façon significative.

De nombreux programmes ont été lancés pour mesurer les sections efficaces des nouveaux isotopes d'intérêt.

Leur évaluation, combinant l'information tirée de ces mesures différentielles et les prévisions déduites des codes de physique nucléaire sont en cours pour doter, en particulier, la future bibliothèque de données nucléaires JEFF3, de données de qualité avec une précision voisine de celles des isotopes standards.

En conclusion, la transmutation des déchets radioactifs à vie longue par des neutrons est basée sur une physique bien maîtrisée, qu'il s'agisse du champ neutronique d'un réacteur à fission classique ou du champ neutronique d'un milieu multiplicateur sous-critique alimenté par une source de neutrons externe.

Les modèles et les données nucléaires utilisés pour les calculs nécessiteront une validation détaillée, pour garantir la fiabilité d'un projet de réalisation. Cependant, ces mêmes modèles et données permettent aujourd'hui d'effectuer des calculs d'orientation, dont les résultats et les tendances sont tout à fait pertinents et crédibles.

REFERENCES THEMATIQUES

Chapitres : 2, 3, 5, 6, et 7

C. GIRARD, " Transmutation des actinides dans les réacteurs à fission. Synthèse bibliographique ", NT SPRC/LEDC 91.417, 05/09/1991

C. GIRARD, " Transmutation des déchets radioactifs à l'aide d'un accélérateur de particules. Synthèse bibliographique ", NT SPRC/LEDC 92.408, 10/06/1992

M. SALVATOIRES, A. ZAETTA et al., " Etudes réacteur concernant l'incinération des déchets radioactifs à vie longue. Synthèse des études effectuées entre juin 1991 et octobre 1992 ", NT SPRC/DIR 92.007, 25/11/1992

J. TOMMASI et al., " Long-lived waste transmutation in reactors ", Nuclear Technology, vol. 111, p. 133, 07/1995

C. GIRARD et al., " Transmutation des radionucléides à vie longue dans les réacteurs à fission. Synthèse des études réalisées au CEA. Contrat CCE n° F12 W CT 91 0106 ", RT SPRC/LEDC 95.003, 31/08/1995

J. TOMMASI et al., " Synthesis of fast reactor capabilities to burn long-lived nuclear waste ", conférence Global'95, Versailles, 09/1995

M. SALVATOIRES, A. ZAETTA et al., " Transmutation des déchets radioactifs à vie longue. Résultats des études à la DRN (1993-1995) ", NT DRN/P 95.002, 04/01/1996

(Groupe de travail CSTGD séparation/transmutation, " Séparation et transmutation. Objectifs et limites ", 09/1996

M. DELPECH, J.P. GROUILLER, " Recyclage des actinides mineurs en REP. Voies homogène et hétérogène. Monorecyclage et multirecyclage ", NT SPRC/LEDC 96.462, 29/05/1997

J. TOMMASI, " Recyclage des déchets radioactifs à vie longue en RNR. Synthèse des études réacteur 1991 → 1996 ", RT SPRC/LEDC 97.002, 25/07/1997

M. DELPECH et al., " Recyclage des actinides mineurs - Impact et options d'intérêt ", NT SPRC/LEDC 98.442, 25/02/1999

R. GUILLAUMONT Déchets radioactifs. Gestion Les Techniques de l'Ingénieur – BN 3 660

Société Française de Physique Les déchets nucléaires, un dossier scientifique Editeur : R. Turley
Les éditions de Physique 1997

J. TOMMASI Synthèse des études physiques sur la faisabilité scientifique de la transmutation en réacteurs standards (REP/RNR, Homogène/Hétérogène) de 1991 à 1999 RT DEN/DEN/SPRC/LEDC 00-002

C. CHABERT Synthèse des études physiques réalisées au CEA sur la transmutation des actinides mineurs dans les réacteurs à eau pressurisée de 1991 à 2003 RT DEN/DER/SPRC/LEDC 04-001


M. SALVATOIRES, I. SLESSAREV, M. UEMATSU Approche physique globale à la transmutation des noyaux radioactifs NT DER/SPRC/LEDC 93-411

M. SALVATOIRES, I. SLESSAREV, M. UEMATSU Physics characteristics of nuclear power systems with reduced long-term radioactivity Nuclear Science and Engineering, 120, 18 (1995)


F. VARAINE, C. CHABERT, G. YOUINOU, J. TOMMASI Comparative review of the long lived wastes transmutation performances in nuclear reactor GLOBAL 2003, USA

A. ZAETTA, L. AGUIAR, M. DELPECH, A. OUVAROV, " Potentiel d'incinération en mode homogène des actinides mineurs dans un réacteur rapide de grande taille (type EFR) ", NT SPRC/LEDC 91.418, 01/10/1991

A. ZAETTA, M. DELPECH, A. OUVAROV, " Potentiel d'incinération en mode homogène des actinides mineurs dans un réacteur rapide de petite taille (type PRISM) ", NT SPRC/LEDC 91.433, 18/11/1991

	DEN	DER	RT – SPRC/04-178	0	70/87
			REFERENCE	INDICE	PAGE

- M. DELPECH, “ Etude paramétrique du recyclage des actinides mineurs dans les réacteurs à eau légère sous pression ”, NT SPRC/LEDC 93.426, 25/09/1993
- M. DELPECH, S. L. HUANG, “ Caractérisation du combustible lors du recyclage des actinides mineurs en REP ”, NT SPRC/LEDC 95.427, 25/01/1996
- N. MESSAOUDI, “ Etude d’un réacteur à neutrons rapides dédié à l’incinération d’actinides mineurs ”, Thèse de l’Université de Provence Aix-Marseille I, soutenue le 27/02/1996
- G. YOUINOU, F. DOLCI, C. DE SAINT JEAN, “ Multicyclage Pu, Np, Am en REP MIX associé ou non au curium ”, NT SPRC/LEDC 00.403, 14/04/2000
- G. YOUINOU Multirecyclage du plutonium et des actinides mineurs dans les assemblages REP de type CORAIL NT DEN/DER/SPRC/LEDC 01-404
- G. YOUINOU, F. DOLCI, C. DE SAINT JEAN Multirecyclage Pu, Np, Am en REP MIX associé ou non au Cm NT DEN/DER/SPRC/LEDC 00-403
- F. DOLCI Etude neutronique d’un cœur REP1300 chargé d’assemblages MIX contenant du plutonium et des actinides mineurs NT DEN/DER/SPRC/LEDC 01-414
- C. CHABERT Multirecyclage homogène des actinides (Pu+AM) en REP MIX. Prise en compte de la production de californium dans les études de scénarios. NT DEN/DER/SPRC/LEDC 02-413
- H. GOLFIER, A. PUILL, J. BERGERON, M. ROHART Multi-recycling of plutonium and incineration of americium, curium and technetium in PWRs. Rapport DMT/SERMA/LCA/RT/00-2778/A
- H. GOLFIER, J. BERGERON, M. ROHART Etudes neutroniques d’un cœur REP de type EPR 1450MWe adoptant le concept APA avec crayons annulaires et multi-recyclant des actinides mineurs (Am+Cm). Rapport DMT/DM2S/SERMA/LCA/RT 01-2953/A
- H. GOLFIER, M. ROHART Multi-recyclage (Pu+Np) d’un cœur REP de type EPR 1450MWe adoptant le concept APA avec crayons annulaires. Rapport DMT/DM2S/SERMA/LCA/RT 02-3058/A
- H. GOLFIER, M. ROHART Multi-recyclage (Pu et Am) d’un cœur REP de type EPR 1450MWe adoptant le concept APA avec crayons annulaires. Rapport DMT/DM2S/SERMA/LCA/RT 02-3174/A
- G. YOUINOU Recyclage conjoint du plutonium et de l’Américium dans l’assemblage RMA-36 conçu pour le cœur 100%MOX d’EPR. NT DEN/DER/SPRC/LEDC 03-416
- A. PUILL, M. C. LAIGLE, “ Incinération de cibles d’actinides dans un REP ”, NT SERMA/LENR 92.453
- M. DELPECH, G. RIMPAULT, Y. THAON, “ Etude sur le creusement de flux et changement de spectre dans un crayon à forte teneur en actinides dans un spectre thermique ”, NT SPRC/LEDC 93.405,
- M. DELPECH, “ Recyclage hétérogène des actinides mineurs en REP. Etude paramétrique ”, NT SPRC/LEDC 94.429, 21/04/1995
- A. PUILL, M. C. LAIGLE, N. BARBET, “ Recyclage en mode hétérogène d’actinides mineurs dans un REP (TIGRE). Synthèse des études ”, Rapport SERMA/LCA 1858 (1996)
- S. L. HUANG, “ Concepts de cœur à neutron thermiques pour la réduction des inventaires en actinides mineurs ”, Rapport de thèse, Université de Provence Aix-Marseille 1, 25/10/1996
- J. TOMMASI, “ Recyclage hétérogène de l’américium en un seul passage (cibles modérées à long temps de séjour dans Phénix ”, NT SPRC/LEDC 95.439, 01/02/1996

	DEN	DER	RT – SPRC/04-178	0	71/87
			REFERENCE	INDICE	PAGE

C. DE SAINT JEAN, “ Caractérisations neutroniques avec le code de cellule ECCO des assemblages modérés CAPRA pour la transmutation de l’américium ”, NT SPRC/LEDC 98.409, 22/06/1998

C. DE SAINT JEAN, “ Etudes sur la transmutation de l’américium dans le cœur CAPRA 4/94 avec des cibles modérées basées sur le design d’un assemblage CAPRA standard ”, NT SPRC/LEDC 99.416, 15/04/1999

C. DE SAINT JEAN, “ Optimisation volumique d’un assemblage modéré dédié à l’incinération des actinides mineurs et des produits de fission à vie longue ”, NT SPRC/LEDC 99.422, 12/01/2000

M. DELPECH Recyclage hétérogène des actinides mineurs en REP. Etude paramétrique. NT DRN/DER/SPRC/LEDC 94-429

J. TOMMASI, J. HOMMET, “ Potentiel d’incinération en mode hétérogène des actinides mineurs dans un RNR ”, NT SPRC/LEDC 93.416, 17/06/1993

A. PUILL, M. PERNOT Multirecyclage de cibles d’américium dans un REP. Programme SPIN. Rapport DMT/93-017 SERMA/LENR-1459

Traité de neutronique : J. BUSSAC, P. REUSS, HERMANN - 1985

Précis de neutronique : P. REUSS INSTN collection génie atomique - 2003

Chapitre 4 : Bilan neutronique de la transmutation

M. SALVATOIRES, I. SLESSAREV, M. UEMATSU, “ Approche physique globale à la transmutation des noyaux radioactifs ”, NT SPRC/LEDC 93.411, 09/04/1993

M. SALVATOIRES, I. SLESSAREV, M. UEMATSU, “ A global physics approach to the transmutation of radioactive nuclei ”, Nuclear Science and Engineering, **116**, 1-18 (1994)

M. SALVATOIRES, I. SLESSAREV, M. UEMATSU, “ Physics characteristics of nuclear power systems with reduced long-term radioactivity ”, Nuclear Science and Engineering, **120**, 18 (1995)

M. SALVATOIRES, I. SLESSAREV, M. UEMATSU, A. TCHISTIAKOV “ The neutronic potential of nuclear power for long term radioactivity risk reduction ”, Proc. GLOBAL’95, Versailles 11-14/09/1995

M. SALVATOIRES, I. SLESSAREV, A. TCHISTIAKOV, “ Analysis of nuclear power transmutation potential at equilibrium ”, Nuclear Science and Engineering, **124** n°2, 280-290 (1996) et 125 n°3, 276-279 (1997)

A. TCHISTIAKOV et al., “ Paramètres neutroniques généraux du combustible de différents systèmes nucléaires (de type REP, CANDU et RNR) ”, NT SPRC/LEDC 97.452, 14/01/1998

A. TCHISTIAKOV, “ Etude du potentiel de transmutation et des caractéristiques de sûreté d’un système hybride : accélérateur - réacteur sous-critique ”, Thèse de l’Université de Provence Aix-Marseille I, soutenue le 07/04/1998

V. BERTHOU, I. SLESSAREV, “ Etude du paramètre D* des produits de fission et des lanthanides en spectre rapide et thermique ”, NT SPRC/LEDC 98.430, 24/11/1999


Chapitre 9. Impact des lanthanides

J. TOMMASI, N. MESSAOUDI, “ Irradiation en RNR d’un mélange Am + Cm + lanthanides ”, NT SPRC/LEDC 94.421, 18/11/1994

M. DELPECH, S. L. HUANG, “ Etude paramétrique du recyclage des actinides mineurs et des lanthanides en mode homogène et hétérogène en REP ”, NT SPRC/LEDC 95.409, 16/10/1995

Chapitre 10 : Les produits de fission à vie longue.

J. TOMMASI, “ Transmutation de produits de fission au centre d’EFR ”, NT SPRC/LEDC 93.402, 08/02/1993

	DEN	DER	RT – SPRC/04-178	0	72/87
			REFERENCE	INDICE	PAGE

J. TOMMASI, “ Radiotoxicité après irradiation en RNR d’un assemblage niobium - technétium dans un assemblage modéré ”, NT SPRC/LEDC 95.403, 16/01/1995

J. BERGERON, “ Transmutation des produits de fission à vie longue ^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs ”, rapport DMT/SERMA 97.2023, 27/02/1997

M. SALVATORES, I. SLESSAREV, A. TCHISTIAKOV, “ The transmutation of long-lived fission products by neutron irradiation ”, Nuclear Science and Engineering **130**, 309-319, 11/1998

H. GOLFIER, J. BERGERON, “Contributions à l’évaluation de la transmutation des produits de fission (Tc99, I129) avec le code APOLLO-2”, rapport SERMA/LCA 98.2470A, 15/04/1999

Chapitres 11, 14, et 16 : Outils et méthodes de calcul, qualification.

J. TOMMASI, “ Transmutation de produits de fission dans les RNR. Validation et étude dans Phénix ”, NT SPRC/LEDC 92.406, 17/04/1992

R. CORCUERA, M. DELPECH, “ Hypothèses, données et méthodes de calcul utilisées dans les études d’incinération d’actinides mineurs dans les REP ”, NT SPRC/LEDC 93.403, 25/02/1993

M. DELPECH, “ Données et méthodes de calcul utilisées dans les études d’incinération d’actinides mineurs dans des REP ”, NT SPRC/LEDC 94.423, 06/12/1994

M. DELPECH, C. CHABERT, M. PERNOT, A. PUILL, “ Données et méthodes de calcul utilisées dans les études d’incinération d’actinides mineurs dans les REP. Comparaison APOLLO1 - APOLLO2 ”, NT SPRC/LEDC 96.418, 31/01/1997

J. TOMMASI, “ Calculs d’assemblages modérés en RNR : principe et validation sur l’irradiation COMMODORE-4 dans Phénix ”, NT SPRC/LEDC 97.447, 16/02/1998

C. DE SAINT JEAN, “ Méthodologie de calcul de coefficients de sensibilité aux données de base pour la puissance ”, NT SPRC/LEDC 99.406, 21/06/1999

F. VARAINE, B. GASTALDI, C. DE SAINT JEAN, V. BERTHOU, “ Validation des schémas de calcul et évaluation des incertitudes neutroniques pour les irradiations en spectre modéré dans Phénix : application aux irradiations ECRIX-B et ECRIX-H ”, NT SPRC/LEDC 99.415, 21/11/1999

G. RITTER, J. TOMMASI, M. VALADE, “ Schéma de calcul ERANOS d’évolution des compositions à puissance ajustée ”, NT SPRC/LEDC 99.421, 20/07/1999

O. KÖBERL, “ Comparaison calcul APOLLO2 / expérience sur la transmutation du technétium irradié dans le réacteur à haut flux de Petten ”, NT SPRC/LEDC 99.431 09/09/1999

J. TOMMASI, “ Etude neutronique de l’irradiation COMMODORE-4 de production de ^{60}Co dans Phénix : compléments ”, NT SPRC/LEDC 99.451, 23/12/1999


C. CHABERT, A. SANTAMARINA, Ph. BIOUX Trends in nuclear data derived from integral experiments in thermal and epithermal reactors. International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Oct. 2001, Tsukuba

C. CHABERT, A. SANTAMARINA, J.P. CHAUVIN Qualification intégrale des sections efficaces des actinides. Conception de l’expérience OSMOSE dans Minerve. NT DRN/DER/SPRC/LEPh 99-207

J.P. HUDELLOT et al. The OSMOSE experimental program in Minerve for the qualification of the integral cross sections of actinides International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Oct. 2001, Tsukuba

Chapitre 13 : Les données nucléaires.

U. Abbondanno, *et al.* (n_TOF collaboration) Neutron Capture Cross Section Measurement of ^{151}Sm at the CERN Neutron Time of Flight Facility (n_TOF) *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 161103 (October 2004)

	DEN	DER	RT – SPRC/04-178	0	73/87
			REFERENCE	INDICE	PAGE

G. Aerts, *et al.* Measurement of the Neutron Capture Cross Section of Th-232 at the CERN-nTOF Facility Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

E. Bauge Assessment of the Uncertainties Associated with the Optical Model Potential in Evaluations Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

A. Borella, *et al.* Thermal Neutron Cross Section Measurements for the $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{m}}\text{Bi}$ and $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ at the Budapest PGAA-NIPS Facility Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

O. Bouland, *et al.* R-matrix Analysis of the ^{240}Pu Neutron Cross-sections in Thermal – 5.7 keV Energy Range Nuclear Science and Engineering, **127**, 105-129 (1997)

O. Bouland Re-evaluation of the ^{240}Pu Cross-sections in the Unresolved Resonance Energy Range Proc. of the PHYSOR-2002 International Conference, Seoul, Korea, October 2002

O. Bouland Motivation for New Measurements of the Am Isotopes Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

D. Cano-Ott, *et al.* Measurements at n_TOF of the Neutron Capture Cross Section of Minor Actinides Relevant to the Nuclear Waste Transmutation Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

F. Corvi, *et al.* Neutron Data Measurements for Waste Transmutation at GELINA Journal of Nuclear Science and Technology, Suppl. 2, p. 1067-1072 (August 2002)

C. Domingo-Pardo, *et al.* New Measurement of the Capture Cross Section of Bismuth and Lead Isotopes Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

F. Gunsing, *et al.* Neutron resonance spectroscopy of ^{99}Tc from 3 eV to 150 keV *Phys. Rev. C*, **61**, 054608 (2000)

F.-J. Hamsch Nuclear Fission Research at IRMM Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

Y. Ikeda Nuclear Data Relevant to Accelerator Driven System Journal of Nuclear Science and Technology, Suppl. 2, p. 13-18 (August 2002)

R. Jacqmin, M. Kellett, A. Nouri The JEFF-3.0 Nuclear Data Library PHYSOR-2002 International Conference, Seoul, Korea, (October 7-10, 2002)

D. Karamanis, *et al.* Neutron radiative capture cross section of ^{232}Th in the energy range from 0.06 to 2 MeV *Nucl. Sci. Eng.*, **139**, 282-292 (2001)

A. Koning, *et al.* HINDAS – A European Nuclear Data Program for Accelerator-driven Systems Journal of Nuclear Science and Technology, Suppl. 2, p. 1161-1166 (August 2002)

A. Koning, *et al.* Status of the JEFF Nuclear Data Library Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004


A. Leprêtre, *et al.* Détermination des paramètres des résonances neutroniques du neptunium 237, en dessous de 500 eV, et obtention des matrices de covariances statistiques et systématiques entre les paramètres de ces résonances. Rapport CEA/DSM – DAPNIA-02/374 (2002)

A. Letourneau, *et al.* Minor Actinide Transmutation-incineration Potential Studies in High Intensity Neutron Fluxes Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

G. Lobo, *et al.* Measurement of the ^{232}Th Neutron Capture Cross Section in the Region 5 keV – 150 keV Journal of Nuclear Science and Technology, Suppl. 2, p. 429-432 (August 2002)

M.-J. Lopez-Jimenez, P. Romain, B. Morillon Overview of Recent Bruyères-le-Châtel Actinide Evaluations Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

A. Lukyanov, *et al.* Resonance Analysis in the Region of Unresolved Resonances Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

	DEN	DER	RT – SPRC/04-178	0	74/87
			REFERENCE	INDICE	PAGE

A. Mengoni, *et al.* Nuclear Data Activities at n_TOF Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

L.-C. Mihailescu, *et al.* Measurement of Neutron Inelastic Scattering Cross Sections for ^{209}Bi from Threshold up to 18 MeV Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

G. Molnar, *et al.* Determination of Thermal Neutron Capture Cross Sections Using Cold Neutron Beams Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

C. Moreau, *et al.* Measurement of the $^{90,91,92,94,96}\text{Zr}(n,\gamma)$ Cross-Sections at n_TOF Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

G. Noguère Mesures à haute résolution par temps de vol et analyses paramétriques des sections efficaces neutroniques totale et de capture radiative des iodes 127 et 129 entre 0.5 eV et 100 keV
Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, Strasbourg (Décembre 2003)

G. Noguère, *et al.* Reich-Moore Analysis of the Iodine-127 and Iodine-129 Resolved Resonance Range Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

A. Pavlik, *et al.* Cross section measurements for (n,xn) reactions by in-beam gamma-ray spectroscopy Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

M. Petit, *et al.* Determination of the $^{233}\text{Pa}(n,f)$ reaction cross section from 0.5 to 10 MeV neutron energy using the transfer reaction $^{232}\text{Th}(^3\text{He,p})^{234}\text{Pa}$ *Nucl. Phys. A*, **735**, 345-371 (2004)

A. Plompen Neutron Data Measurements for Energy Applications and Nuclear Waste Transmutation at JRC-IRMM Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

A. Plompen, *et al.* A report on the achievements of subgroup 19 on Activation Cross Sections of the WPEC, OECD-NE Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

D. Rochman, *et al.* Isotopic Yields from the Reaction $^{245}\text{Cm}(n_{th},f)$ at the Lohengrin Mass Separator *Nucl. Phys.*, A 710, pp. 3-28 (2002)

D. Rochman, *et al.* Mass, Isotopic Yields and Kinetic Energy Measurements for $^{245}\text{Cm}(n_{th},f)$ Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

D. Rochman, *et al.* Super asymmetric fission in the $^{245}\text{Cm}(n_{th},f)$ reaction at the Lohengrin fission fragment mass separator *Nucl. Phys. A*, **735**, 3-20 (2004)

M. Salvatores, I. Slessarev, A. Tchistiakov The transmutation of long-lived fission products by neutron irradiation *Nucl. Sci. Eng.*, **130**, 309-319, (11/1998)


M. Salvatores Innovative Nuclear Energy Systems and Related R&D Challenges Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

V. Semkova, *et al.* Measurement of the $^{58}\text{Ni}(n,t)^{56}\text{Co}$, $^{59}\text{Co}(n,p)^{59}\text{Fe}$ and $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60m+g}\text{Co}$ Reaction Cross Sections from 14 to 20 MeV Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

V. Semkova, *et al.* Light Charged Particle Production Activation Cross Sections of Zr Isotopes from 14 to 20 MeV Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

O. Serot New Results on CaH₂ Thermal Neutron Scattering Cross Sections Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

L. Tassan-Got, *et al.* Fission of Actinides Induced by Neutrons at n_TOF Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

	DEN	DER	RT – SPRC/04-178	0	75/87
			REFERENCE	INDICE	PAGE

I. Tsekhanovich, *et al.* Mass and charge distributions in the very asymmetric thermal neutron induced fission of the odd-Z nucleus ^{242m}Am *Nucl. Phys. A*, **658**, 217-239 (1999)

I. Tsekhanovich, *et al.* Mass and charge distributions in the very asymmetric mass region of the neutron induced fission of ^{238}Np *Nucl. Phys. A*, **688**, 633-658 (2001)

I. Tsekhanovich, *et al.* Thermal-Neutron-Induced Fission of ^{243}Cm : Light-Peak Data from the Lohengrin Mass Separator Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

I. Tsekhanovich, N. Varapai, *et al.* Fission Product formation in the thermal neutron induced fission of odd Cm isotopes *Phys. Rev. C*, **70**, 044610 (2004)

V. Vlachoudis, *et al.* The n_TOF Facility at CERN: Performances and First Physics Results Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

V. Vlachoudis, *et al.* Measurements of Fission Cross Section of Actinides with the FIC Detector at the n_TOF Facility Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

K. Volev, *et al.* An evaluation of the ^{232}Th total and capture cross section from a combined analysis of transmission and capture measurements at GELINA Proc. ND-2004 Int. Conf., Santa Fe, USA, September 2004

C. Wagemans, O. Serot Experimental determination of the $^{236}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ cross section *Nucl. Sci. Eng.*, **136**, 415-418 (2000)

C. Wagemans, J. Wagemans, O. Serot The $^{234}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ cross section revisited *Nucl. Sci. Eng.*, **141**, 171-173 (2002)

Chapitre 15 : La qualification physique pour les ADS – expérience MUSE.

F. MELLIER ET AL. *Final report* Deliverable n°8, EURATOM Fifth Framework Program, "The Muse Experiments for Sub-critical Neutronics Validation Contract FIKW-CT-2000-00063" (à paraître)

J.F. LEBRAT ET AL. *Interpretation report* Deliverable n°7, EURATOM Fifth Framework Program, "The Muse Experiments for Sub-critical Neutronics Validation Contract FIKW-CT-2000-00063" (à paraître)

G. RIMPAULT ET AL. The ERANOS Code and Data System for Fast Reactor Neutronic Analysis Physor 2002 International Conference, Seoul, October 2002

J. F. BRIESMEISTER (EDITOR) *MCNP4C – A General Monte Carlo Code N-Particle Transport Code* Los Alamos National Lab., LA-13709-M (2000).

J. F. LEBRAT, R. JACQMIN, F. GABRIELLI, M. CARTA, V. PELUSO, G. BUZZI, G. BIANCHINI, A. D'ANGELO, G. ALIBERTI, G. PALMIOTTI *Fast Reactor Core-Reflector Interface Effects Revisited* Physor 2002 International Conference, Seoul, October 2002

M. PLASCHY, O.P. JONEJA, G. RIMPAULT, C. DESTOUCHES, R. CHAWLA *Investigation of Local Spectral Differences between Critical and Driven Subcritical Configurations in MUSE4*

7th Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Jeju, Republic of Korea, 14-16 October 2002.

N.J. SJÖSTRAND *Arckiv. Fis.* 11, 233 (1956)

E. GARELIS and J. RUSSEL *Nucl. Sc. and Eng.*, 6, 263 (1963)

M. Carta, A. D'Angelo, V. Peluso, G. Aliberti, G. Imel, V. Kulik, G. Palmiotti, J.F. Lebrat, Y. Rugama, C. Destouches, E. González-Romero, D. Villamarín, S. Dulla, F. Gabrielli, P. Ravetto, M. Salvatores *Reactivity assessment and spatial time-effects from the MUSE kinetics experiments*
Proc. of *PHYSOR-2004*, Chicago, IL, USA, April 25-29, 2004.

M. PLASCHY, S. PELLONI, P. CODDINGTON, G. RIMPAULT, R. CHAWLA *Aspects of Representativity between MUSE Experiments and Emerging ADS Concepts from the Nuclear Viewpoint* Submitted for Annals of Nuclear Energy.

Annexe

S. SALA, "Réduction de la radiotoxicité des déchets nucléaires à vie longue : études théoriques et stratégiques de la transmutation des actinides mineurs et des produits de fission dans les réacteurs nucléaires", Thèse de l'Université de Provence Aix-Marseille I, 06/1995

ICRP Publication 30, "Limits for intakes of radionuclides by workers, Pergamon Press, Oxford, 1979 à 1988

ICRP Publication 48, "The metabolism of plutonium and related elements", 1986, Pergamon Press, Oxford

ICRP Publication 68, "Dose coefficients for intakes of radionuclides by workers", Elsevier Science Ltd, Oxford, 1994

ICRP Publication 72, "Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides : part 5 compilation of ingestion and inhalation dose coefficients", Elsevier Science Ltd, 1996

ANNEXE

A.1. Caractérisation de la nocivité des déchets

L'évaluation de l'efficacité d'une stratégie de recyclage en réacteur des actinides mineurs repose sur des critères d'appréciation très variés, loin d'être tous scientifiquement quantifiables. Les aspects politiques, éthiques ou sociologiques mis à part, il faudrait suivre l'impact du recyclage des actinides mineurs sous l'angle des masses engagées, volumes de stockage, doses subies par le personnel à court ou moyen terme comparées au gain à long terme obtenu sur l'inventaire radiotoxique ou nocivité, mais aussi étudier les modalités d'un retour à la biosphère des déchets stockés via leur mobilité dans le milieu souterrain, etc. Par ailleurs l'aspect économique (ratio coût/bénéfice des stratégies de transmutation) constituera aussi un critère de décision crucial, qui fera partie de la démonstration de la faisabilité technologique des différents concepts mis en avant.

Dans la majorité des études prospectives sur la transmutation déjà menées, seuls quelques critères d'évaluation grossiers ont été utilisés : les inventaires en masse des transuraniens (TRU), ou en radiotoxicité des déchets. L'inventaire radiotoxique (généralement exprimé en sieverts par TWh d'électricité produite, Sv/TWhe) représente la dose globale qui résulterait de l'incorporation complète par une population (par ingestion ou par inhalation) de l'ensemble des radionucléides présents dans les déchets.

L'ordre de grandeur de la réduction maximale de ces inventaires dépend des pertes élémentaires au retraitement ; à l'échelle industrielle, celles-ci résultent d'un compromis coût / performance. On atteint aujourd'hui à La Hague un niveau de pertes en plutonium de l'ordre de 0.1%. Si l'on estime qu'il peut à terme être du même ordre pour les actinides mineurs, on arrive à une réduction maximale d'un facteur 1000 : elle sera en fait notablement inférieure en cas de recyclage multiple ou de non recyclage pour certains éléments.

Si l'on calcule l'inventaire radiotoxique d'un combustible irradié de REP typique en fonction du temps passé dans le stockage, on trouve, en ramenant l'inventaire radiotoxique à l'instant courant aux noyaux pères initialement placés dans le stockage, que le plutonium compte pour 70 à 95% de la radiotoxicité jusque vers quelques 10^5 ans après le stockage. Par ailleurs, il représente 90% de la masse des transuraniens (TRU) des combustibles REP irradiés.

La réduction de l'inventaire, massique ou radiotoxique, des déchets ne saurait donc être une motivation pour la transmutation des actinides mineurs si l'on ne dispose pas au préalable d'une stratégie complète de recyclage du plutonium. Mais en contrepartie, le recyclage du plutonium produit inévitablement des actinides mineurs, essentiellement des transplutoniens, ce qui obère les gains potentiels en masse et radiotoxicité qu'il pourrait apporter.

L'américium est ensuite l'élément le plus radiotoxique, suivi du curium, jusque vers quelques dizaines de milliers d'années. Le neptunium (tout comme l'uranium restant dans le combustible) apporte une contribution négligeable à l'inventaire radiotoxique jusque vers cette époque, malgré son importance dans l'inventaire massique. L'ordre des priorités de

transmutation, au vu du seul critère de réduction de l'inventaire radiotoxique, serait donc : américium, puis curium, puis neptunium, avec un recyclage préalable du plutonium (on verra que le recyclage du plutonium ne change pas cet ordre de priorité pour les actinides mineurs).

Cependant, cet ordre peut changer si l'on choisit d'autres critères : par exemple, les PFVL migrent plus vite vers la surface que les actinides dans un stockage souterrain, et parmi ces actinides le ^{237}Np , plus ^{241}Am et le ^{245}Cm qui auront décré sur lui, deviennent prépondérants pour ces questions de migration souterraine. Cela justifie en particulier les études qui ont été effectuées sur la transmutation des PFVL.

A.2. Caractéristiques physiques des noyaux à vie longue.


Chaque isotope radioactif est caractérisé par sa période radioactive $T_{1/2}$, qui est la durée nécessaire pour que la moitié du nombre initial de noyaux se soit désintégrée. Les noyaux instables se désintègrent principalement selon les modes suivants : désintégrations α (émission d'un noyau d'hélium), β^- (émission d'un électron), β^+ (émission d'un positon), et capture électronique (CE). La probabilité de fission spontanée ne devient appréciable que pour certains noyaux très lourds. Pour la description des chaînes de décroissance des familles du ^{232}Th ($A=4n$), du ^{237}Np ($A=4n+1$), de ^{238}U ($A=4n+2$), et de ^{235}U ($A=4n+3$), voir ci-après. L'activité d'une substance radioactive, exprimée en becquerels (Bq) est le nombre de noyaux radioactifs qui s'y désintègrent par unité de temps.

Chaque désintégration radioactive s'accompagne d'une libération d'énergie (énergie cinétique des particules matérielles émises, énergie des photons γ et des neutrinos). A chaque noyau radioactif correspond donc un dégagement de puissance spécifique. Les photons γ émis lors des différents processus de désintégration le sont selon des spectres de raies caractéristiques de chaque noyau ; les gammas de haute énergie sont moins atténués et, à même quantité produite, à l'origine de débits de dose plus importants. Il y a deux modes principaux d'émission de neutrons lors d'une désintégration radioactive, directement par fission spontanée (FS) ou indirectement par choc des α émis sur des noyaux légers (^{17}O et ^{18}O pour les combustibles oxydes) : réactions (α, n).

Enfin, la nocivité d'un radionucléide est caractérisée par des " coefficients de dose " qui effectuent la conversion entre l'activité (en Bq) de ce noyau et les doses absorbées (en sieverts, Sv) correspondant aux différents modes d'exposition à ses rayonnements (ingestion, inhalation, etc.). Ces coefficients de dose sont révisés au fil du temps par la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) en fonction de l'évolution des connaissances.

Afin de se faire une idée des ordres de grandeur, les tableaux ci-après récapitulent les principales valeurs d'intérêt pour les actinides depuis ^{232}Th jusqu'à ^{252}Cf (les noyaux à vie courte qui se mettent à l'équilibre avec leur précurseur sont placés dans la même case du tableau que ce dernier), ainsi que pour les principaux PFVL.

Si l'on compare les actinides mineurs au plutonium, le **neptunium** a une activité et une source neutronique faibles ; seuls les γ durs émis par son fils ^{233}Pa peuvent influencer sur le débit de dose, mais ils seront émis avec une activité faible, à l'équilibre avec celle du père ^{237}Np . On ne prévoit donc pas a priori de difficultés majeures à la fabrication de

	DEN	DER	RT – SPRC/04-178	0	79/87
			REFERENCE	INDICE	PAGE

combustibles contenant du neptunium ; après irradiation, noter cependant que la capture d'un neutron par ^{237}Np donne ^{238}Pu très actif.

Pour l'**américium**, les périodes sont plus courtes, donc les activités plus importantes ; ^{241}Am se caractérise par une puissance et une émission neutronique importantes, ^{243}Am par des γ assez durs émis par son fils ^{239}Np qui se met à l'équilibre avec lui, qui contribuent à un fort accroissement du débit de dose.

Pour le **curium**, de ^{242}Cm à ^{244}Cm , on a des périodes courtes, donc des activités et puissances spécifiques très importantes, avec en plus des γ durs pour ^{243}Cm et une source neutronique très élevée pour ^{244}Cm . A partir de ^{245}Cm , les périodes sont longues, mais les γ émis peuvent être très durs, et les sources neutroniques par fission spontanée deviennent très importantes (^{246}Cm et ^{248}Cm).

Enfin, les **produits de fission à vie longue** sont peu actifs, émettent peu de chaleur, des rayonnements peu pénétrants, et sont peu radiotoxiques (sauf ^{129}I). Par contre, ils sont généralement beaucoup plus mobiles que les actinides dans le milieu souterrain, et migrent moins lentement vers la surface.

Actinides majeurs		Actinides mineurs (AM)		PF à vie longue (PFVL)	
²³⁴ U	0.61	²³⁷ Np	1.82	⁹⁹ Tc	2.94
²³⁵ U	25.33	²⁴¹ Am	1.22	¹²⁹ I	0.68
²³⁶ U	14.81	^{242m} Am	0.003	¹³⁵ Cs	1.65
²³⁸ U	2910	²⁴³ Am	0.47		
Total U	2950	Total Am	1.70		
²³⁸ Pu	0.78	²⁴³ Cm	0.003		
²³⁹ Pu	18.06	²⁴⁴ Cm	0.14		
²⁴⁰ Pu	7.95	²⁴⁵ Cm	0.009		
²⁴¹ Pu	3.83	Total Cm	0.16		
²⁴² Pu	2.23				
Total Pu	32.86	Total A.M.	3.67		

*Tableau A.1 - Décharge d'un REP 900 MWe à 41.2 GWj/t
(après 5 ans de refroidissement) en kg/TWhe*

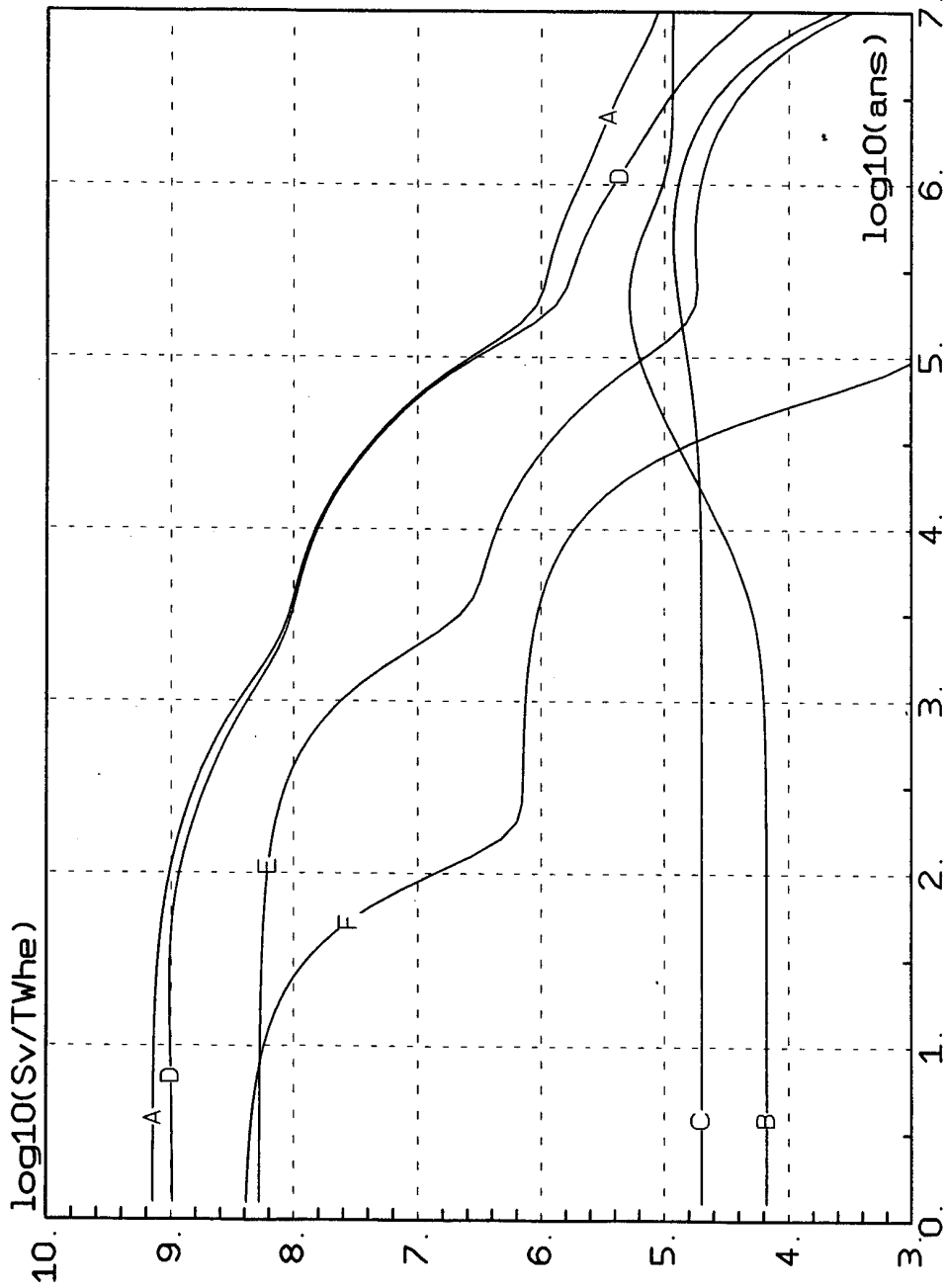
Noyau	Période (B2)	E (W/g) (B2)	neutrons/g/s		E _γ (keV) (B2)	Raies γ (B1)	nSv/Bq (CIPR-72) (B7)
			FS (B1)	(α,n) sur O (B1)			
²³² Th	1.40 10 ¹⁰ a	2.34 10 ⁻⁹			1.2		230
²³¹ Pa	3.28 10 ⁴ a	1.25 10 ⁻³			38.7	27 keV (11%) 303 keV (2%) 300 keV (2%)	710
²³² U ²⁰⁸ Tl	69.8 a 3.06 mn	0.620	1.05	1.85 10 ⁴	1.7 3385.2	2615 keV (100%) 583 keV (85%) 861 keV (13%)	330 —
²³³ U	1.59 10 ⁵ a	2.46 10 ⁻⁴	4.19 10 ⁻⁶		1.2		51
²³⁴ U	2.46 10 ⁵ a	1.57 10 ⁻⁴	4.06 10 ⁻³	3.44	1.5		49
²³⁵ U	7.04 10 ⁸ a	5.21 10 ⁻⁸	6.51 10 ⁻⁴	7.68 10 ⁻⁴	167.8	186 keV (57%) 144 keV (11%)	47
²³⁶ U	2.34 10 ⁷ a	1.54 10 ⁻⁶	4.04 10 ⁻³	2.45 10 ⁻²	1.2		47
²³⁸ U	4.47 10 ⁹ a	7.47 10 ⁻⁹	1.89 10 ⁻²	8.74 10 ⁻⁵	1.3		44
²³⁷ Np	2.14 10 ⁶ a	1.80 10 ⁻⁵	≈ 10 ⁻⁴	0.322	33.5	14 keV (56%) 86 keV (12%)	110
²³³ Pa	27.0 j	1.51 10 ⁻⁶			215.8	312 keV (39%) 98 keV (15%)	0.87
²³⁸ Pu	87.7 a	0.499	2.28 10 ³	1.58 10 ⁴	1.5		230
²³⁹ Pu	2.41 10 ⁴ a	1.70 10 ⁻³	2.61 10 ⁻²	46.4	0.7		250
²⁴⁰ Pu	6.56 10 ³ a	6.21 10 ⁻³	931	170	1.4		250
²⁴¹ Pu	14.4 a	2.85 10 ⁻³					4.8
²⁴² Pu	3.74 10 ⁵ a	1.03 10 ⁻⁴	1.63 10 ³	2.58	1.3		240
²⁴¹ Am	433 a	0.100	0.796	3.17 10 ³	28.2	60 keV (36%)	200
^{242m} Am	141 a	1.67 10 ⁻³			5.0		190
²⁴³ Am ²³⁹ Np	7.36 10 ³ a 2.36 j	5.66 10 ⁻³ 4.65 10 ⁻⁴		177	57.0 182.2	75 keV (66%) 106 keV (27%) 104 keV (25%) 100 keV (16%) 278 keV (14%)	200 0.80
²⁴² Cm	163 j	107	1.72 10 ⁷	4.18 10 ⁶	1.4		12
²⁴³ Cm	30.0 a	1.56		6.09 10 ⁴	133.2	104 keV (24%) 228 keV (11%) 278 keV (14%)	150
²⁴⁴ Cm	18.1 a	2.50	1.01 10 ⁷	8.84 10 ⁴	1.3		120
²⁴⁵ Cm	8.50 10 ³ a	4.98 10 ⁻³			93.8	104 keV (30%) 100 keV (18%)	210
²⁴⁶ Cm	4.73 10 ³ a	8.90 10 ⁻³	≈ 7 10 ⁶	<< FS	3.0		210
²⁴⁷ Cm	1.60 10 ⁷ a	2.53 10 ⁻⁶			302.8	403 keV (69%)	190
²⁴⁸ Cm	3.40 10 ⁵ a	4.66 10 ⁻⁴	≈ 3 10 ⁷	<< FS	579.1	579 keV (100%)	770
²⁴⁹ Bk	320 j	0.284					0.97
²⁴⁹ Cf	351 a	0.143		n.c.	329.2		350
²⁵⁰ Cf	13.1 a	3.69	≈ 8 10 ⁹	<< FS	6.3		160
²⁵¹ Cf	898 a	5.14 10 ⁻²		n.c.	120.3		360
²⁵² Cf	2.64 a	51.5	≈ 10 ¹²	<< FS	217.4		90

Tableau A.2. - Quelques caractéristiques physiques des actinides



FIGURE

01



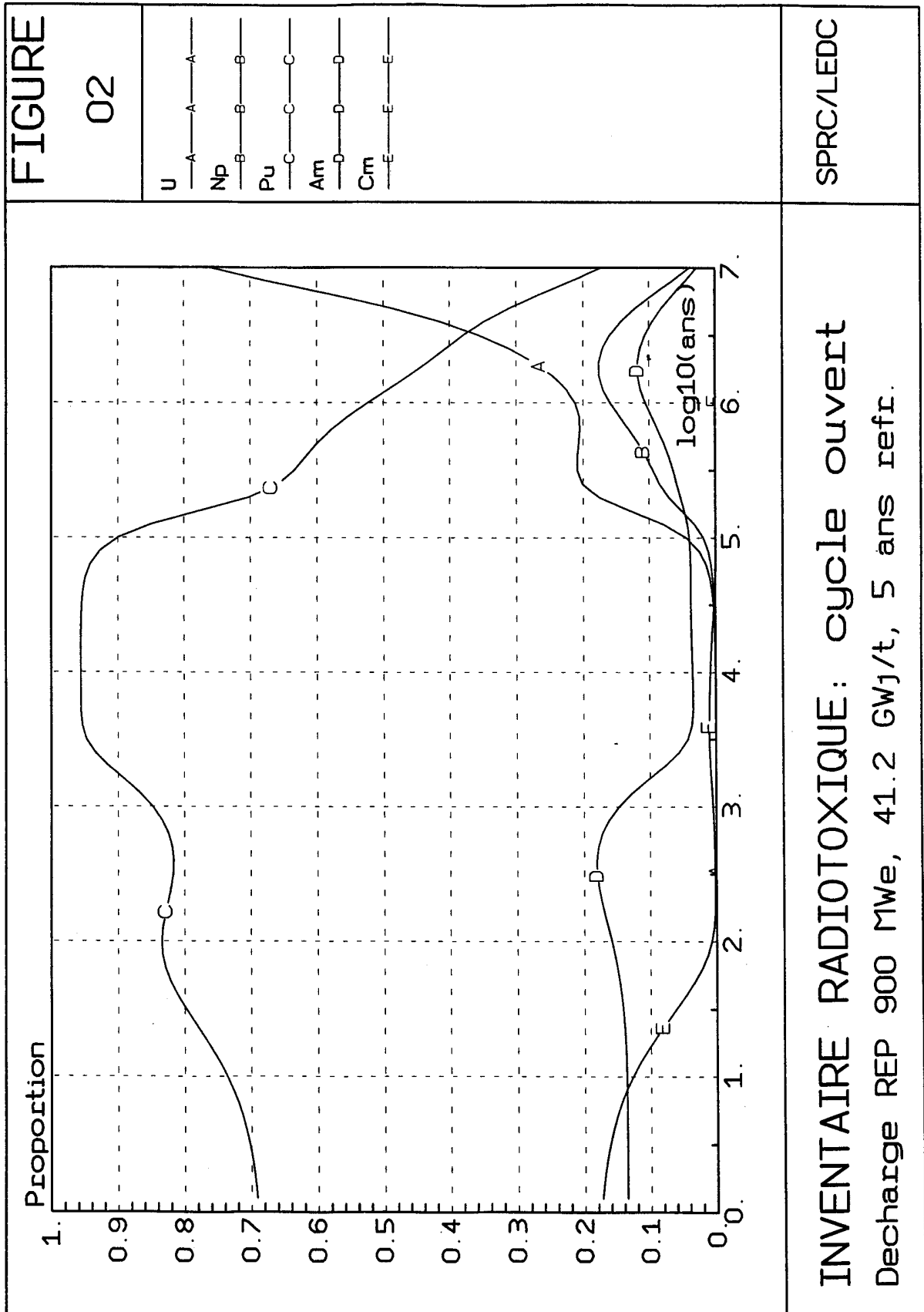
Total
A—A—A—
U—B—B—B—
Np—C—C—C—
Pu—D—D—D—
Am—E—E—E—
Cm—F—F—F—

SPRC/LEDC

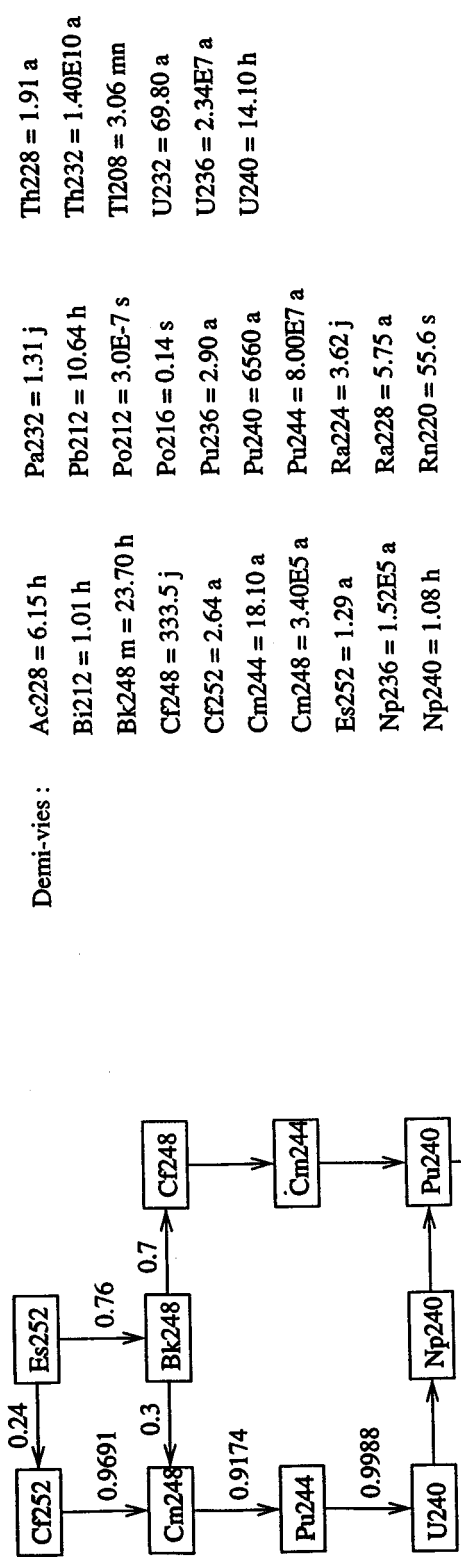
INVENTAIRE RADIOTOXIQUE: cycle ouvert

Decharge REP 900 MWe, 41.2 GWj/t, 5 ans refr.

Inventaire radiotoxique de la décharge du cycle ouvert (REP UOX à 41.2 Gwj/t)



Contribution par élément à l'inventaire radiotoxique (même cas que pour la figure précédente)

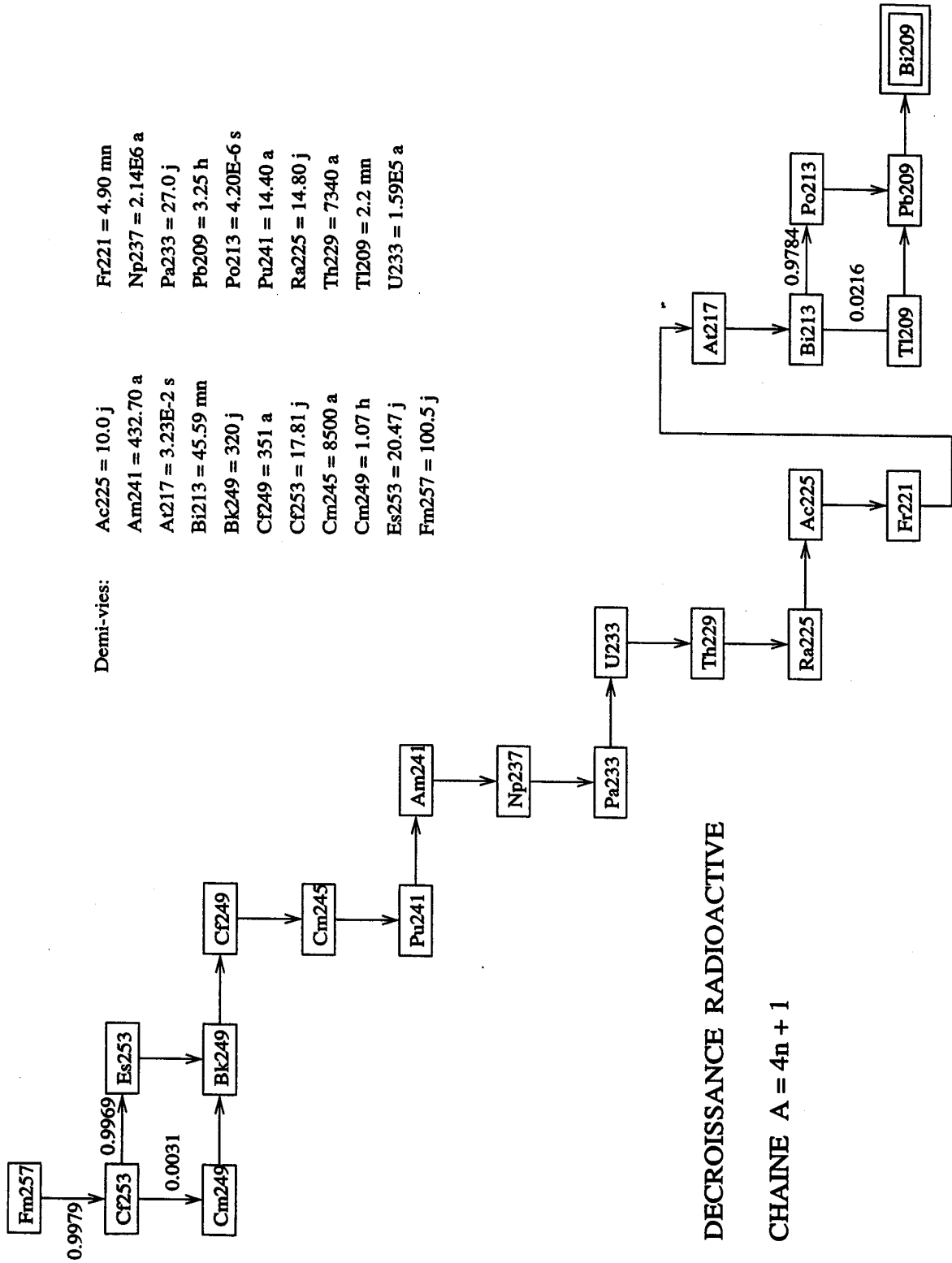


Demi-vies :

Ac228 = 6.15 h	Pa232 = 1.31 j	Th228 = 1.91 a
Bi212 = 1.01 h	Pb212 = 10.64 h	Th232 = 1.40E10 a
Bk248 m = 23.70 h	Po212 = 3.0E-7 s	Tl208 = 3.06 mn
Cf248 = 333.5 j	Po216 = 0.14 s	U232 = 69.80 a
Cf252 = 2.64 a	Pu236 = 2.90 a	U236 = 2.34E7 a
Cm244 = 18.10 a	Pu240 = 6560 a	U240 = 14.10 h
Cm248 = 3.40E5 a	Pu244 = 8.00E7 a	
Es252 = 1.29 a	Ra224 = 3.62 j	
Np236 = 1.52E5 a	Ra228 = 5.75 a	
Np240 = 1.08 h	Rn220 = 55.6 s	

DECROISSANCE RADIOACTIVE
CHAINE A = 4n

chaîne de décroissance naturelle, famille du ²³²Th (A=4n)



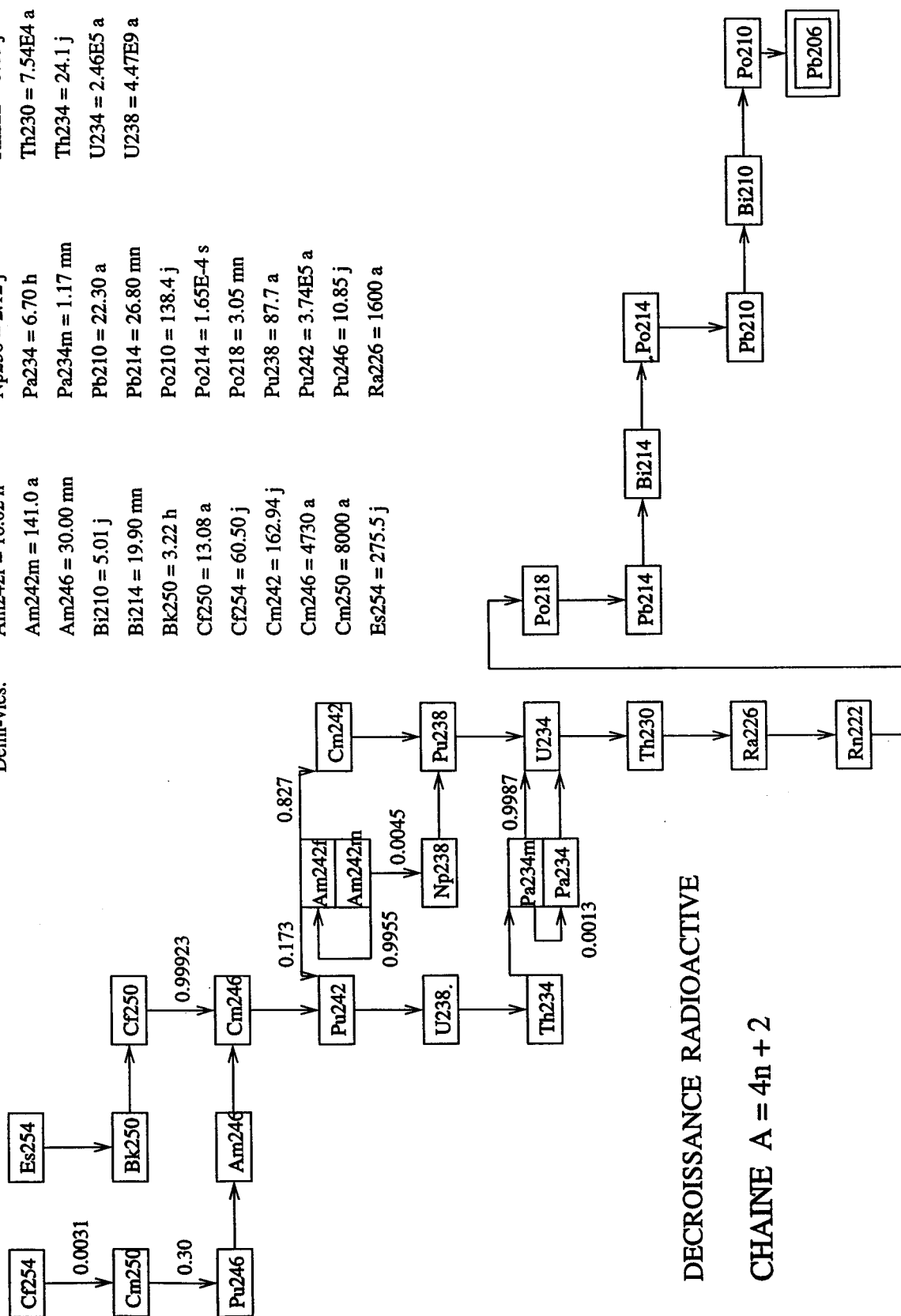
<p>Demi-vies:</p> <p>Ac225 = 10.0 j</p> <p>Am241 = 432.70 a</p> <p>At217 = 3.23E-2 s</p> <p>Bi213 = 45.59 mn</p> <p>Bk249 = 320 j</p> <p>Cf249 = 351 a</p> <p>Cf253 = 17.81 j</p> <p>Cm245 = 8500 a</p> <p>Cm249 = 1.07 h</p> <p>Es253 = 20.47 j</p> <p>Fm257 = 100.5 j</p>	<p>Fr221 = 4.90 mn</p> <p>Np237 = 2.14E6 a</p> <p>Pa233 = 27.0 j</p> <p>Pb209 = 3.25 h</p> <p>Po213 = 4.20E-6 s</p> <p>Pu241 = 14.40 a</p> <p>Ra225 = 14.80 j</p> <p>Th229 = 7340 a</p> <p>Tl209 = 2.2 mn</p> <p>U233 = 1.59E5 a</p>
---	--

chaîne de décroissance naturelle, famille du ²³⁷Np (A=4n+1)



Am242f = 16.02 h	Np238 = 2.12 j	Rn222 = 3.83 j
Am242m = 141.0 a	Pa234 = 6.70 h	Th230 = 7.54E4 a
Am246 = 30.00 mn	Pa234m = 1.17 mn	Th234 = 24.1 j
Bi210 = 5.01 j	Pb210 = 22.30 a	U234 = 2.46E5 a
Bi214 = 19.90 mn	Pb214 = 26.80 mn	U238 = 4.47E9 a
Bk250 = 3.22 h	Po210 = 138.4 j	
Cf250 = 13.08 a	Po214 = 1.65E-4 s	
Cf254 = 60.50 j	Po218 = 3.05 mn	
Cm242 = 162.94 j	Pu238 = 87.7 a	
Cm246 = 4730 a	Pu242 = 3.74E5 a	
Cm250 = 8000 a	Pu246 = 10.85 j	
Es254 = 275.5 j	Ra226 = 1600 a	

Demi-vies:

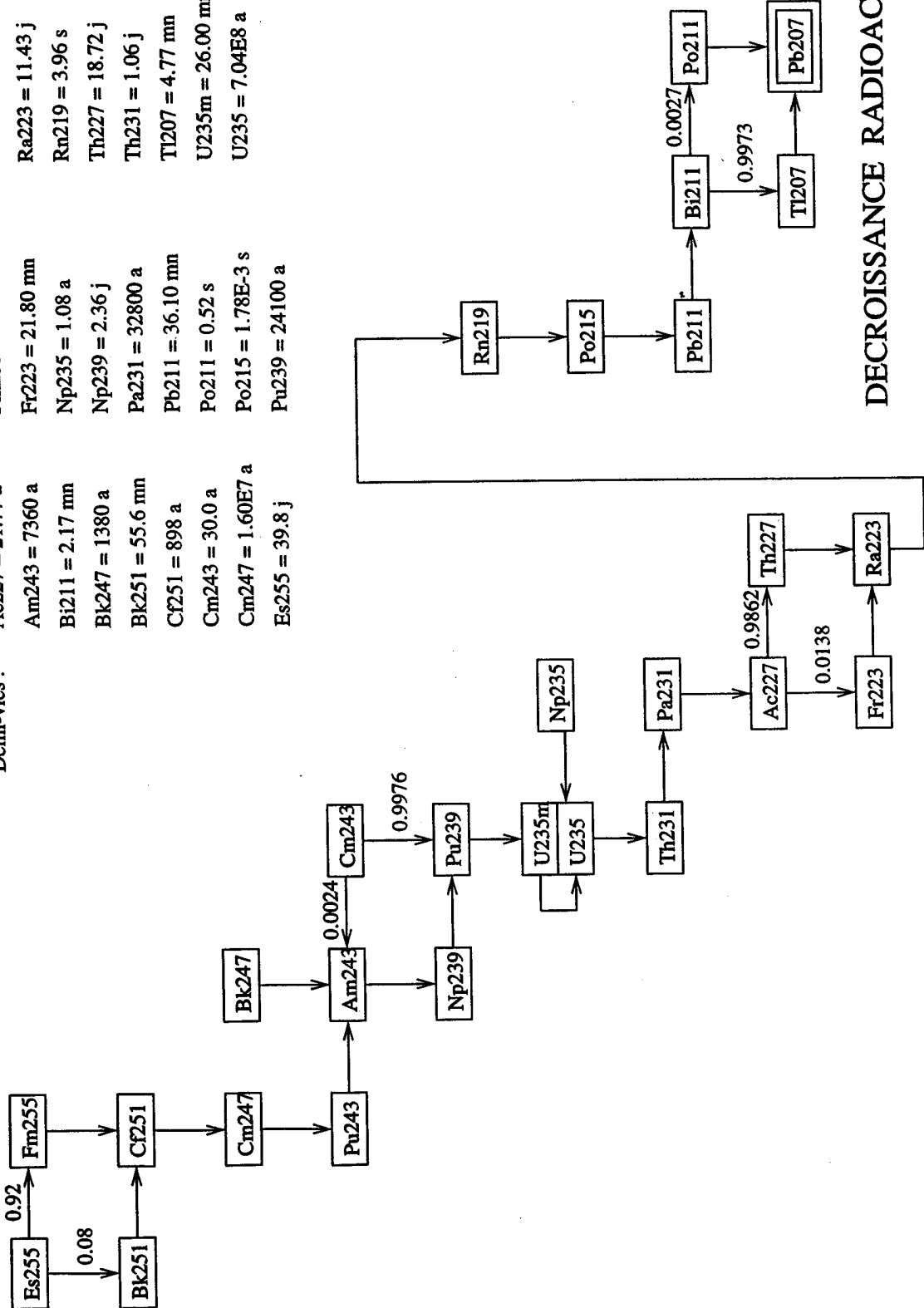


DECROISSANCE RADIOACTIVE

CHAÎNE A = 4n + 2

chaîne de décroissance naturelle, famille de ^{238}U (A=4n+2)

- Demi-vies :
- | | | |
|------------------|-------------------|------------------|
| Ac227 = 21.77 a | Fr223 = 4.96 h | Pu243 = 4.96 h |
| Am243 = 7360 a | Fr223 = 21.80 mn | Ra223 = 11.43 j |
| Bi211 = 2.17 mn | Np235 = 1.08 a | Rn219 = 3.96 s |
| Bk247 = 1380 a | Np239 = 2.36 j | Th227 = 18.72 j |
| Bk251 = 55.6 mn | Pa231 = 32800 a | Th231 = 1.06 j |
| Cf251 = 898 a | Pb211 = 36.10 mn | Tl207 = 4.77 mn |
| Cm243 = 30.0 a | Po211 = 0.52 s | U235m = 26.00 mn |
| Cm247 = 1.60E7 a | Po215 = 1.78E-3 s | U235 = 7.04E8 a |
| Es255 = 39.8 j | Pu239 = 24100 a | |



DECREISSANCE RADIOACTIVE

CHAINE A = 4n + 3

chaîne de décroissance naturelle, famille de ^{235}U ($A=4n+3$)