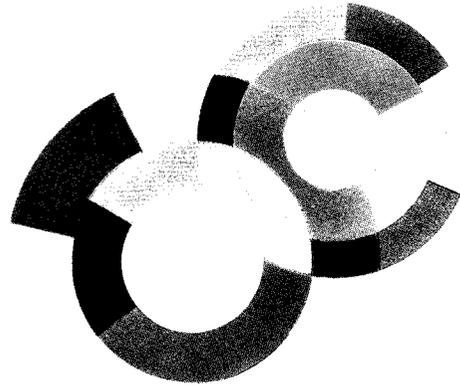
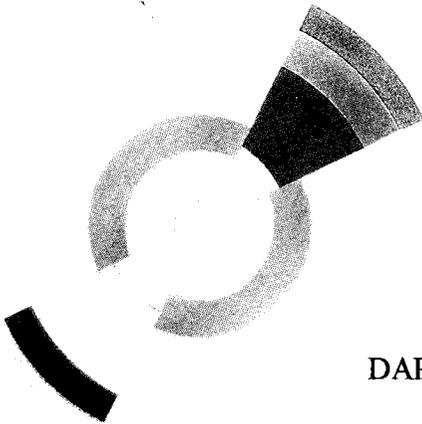
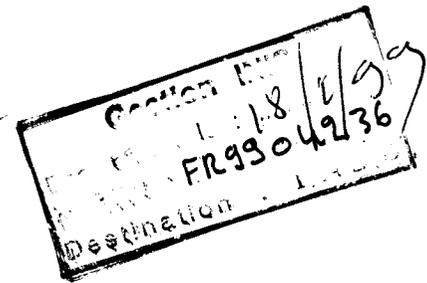
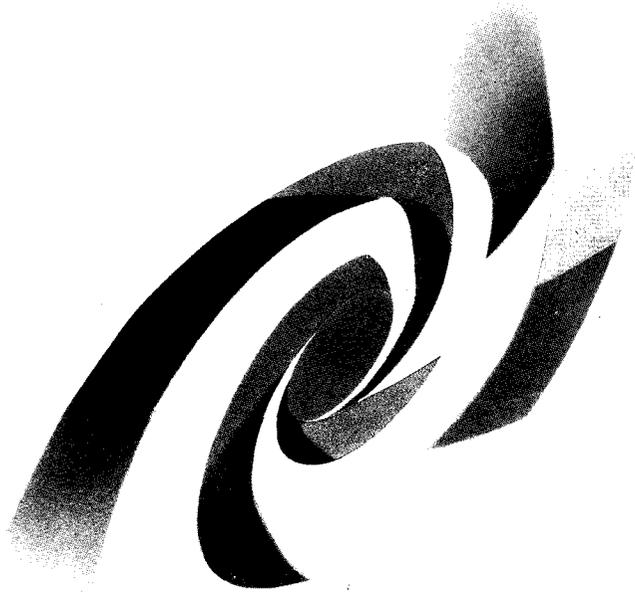




SERVICE DE PHYSIQUE DES PARTICULES



DAPNIA/SPP 98-1004

Thèse soutenue le
11 décembre 1998

STRATEGIES POUR L'INCINERATION DE DECHETS
NUCLEAIRES DANS DES REACTEURS HYBRIDES

DAPNIA

Frédéric LELIEVRE

**Please be aware that all of the Missing Pages in this document were
originally blank pages**

Orsay

N° D'ORDRE:

**UNIVERSITE DE PARIS-SUD
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY**

THESE

présentée

pour obtenir

**Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY**

PAR

Frédéric LELIEVRE

**Stratégies pour l'incinération de déchets nucléaires
dans des réacteurs hybrides**

Soutenue le 11 décembre 1998 devant la Commission d'Examen

MM.	Jacques HAÏSSINSKI	Directeur de Thèse
	René PELLAT	Président du jury
	Jean-Paul SCHAPIRA	
	Michel SPIRO	
	Jean-Baptiste THOMAS	Rapporteur
	Jean VERGNES	Rapporteur

Remerciements

Conscient que c'est au jour le jour que se réalise un travail de thèse et de l'importance du subconscient dans l'élaboration d'une pensée scientifique, je tiens tout d'abord à remercier l'ensemble des gens avec qui j'ai travaillé pendant ces deux années et qui ont, sans le savoir, et sans que je le sache moi-même, contribué à ce travail. Plus particulièrement, parmi ces individus, trois personnes, Michel Cribier, Alain Pluquet et Michel Spiro, ont été essentiels. Ils ont su répondre à la plupart de mes questions et m'ont guidé dans mes travaux de recherche. Ils m'ont ouvert des perspectives, tissant des liens me permettant de commencer à comprendre le problème que pose l'incinération des déchets nucléaires.

Je remercie aussi Jacques Haïssinski qui a bien voulu de moi comme étudiant et a eu le courage et la patience de me suivre et de me corriger. Je suis toujours aussi ébahi par le travail qu'il a pu accomplir. Je remercie à nouveau Michel Spiro, mais aussi Jacques Martino, pour m'avoir accueilli au sein du SPP et du SPhN.

Mes remerciements vont aussi à l'ensemble du groupe INCA de la DSM, tout particulièrement Yves Terrien pour son aide sur les bilans neutroniques, Frédéric Marie et son inlassable engouement pour les produits de fission, Gabriele Fioni pour sa joie de vivre et sa motivation pour les mesures à l'ILL, Alain Bourdard et Teresa Bolognese pour avoir répondu à toutes mes requêtes sur les spectres neutroniques, et Robert Legrain pour les calculs de dommages dans la fenêtre.

Je témoigne toute ma gratitude à Paul Reuss et Frédéric Doneddu sans qui le modèle de cœur, et par conséquent une part importante de ce travail, n'aurait jamais vu le jour, et par conséquent une part importante de ce travail. Mais aussi à Charles Bowman, fervent partisan du spectre thermique, qui possède une énergie inépuisable pour combattre les différentes critiques de son projet. Il a fallu creuser tous les arguments et approfondir progressivement le schéma pour tenir compte de l'ensemble de ses arguments.

Je remercie chaleureusement Guillaume Ritter pour toutes les discussions que nous avons pu avoir ensemble et les informations et conseils précieux qu'il a bien voulu me donner, à la fois sur la physique des réacteurs et sur mon approche du problème. Avec lui, Massimo Salvatores m'a permis de faire mes premiers pas en physique des réacteurs, domaine si éloigné finalement de la physique des particules.

Je témoigne toute ma reconnaissance à Jean-Paul Schapira qui, tout au début de mon travail de thèse, m'a donné la première impulsion vers les calculs de radiotoxicité, premier travail concret de ma thèse. Avec lui, je souhaite remercier l'ensemble des gens de l'IPN et du CNRS, tout particulièrement Jean-Marie Loiseaux et Sylvain David de l'ISN de Grenoble.

Je souhaite exprimer toute ma gratitude à Jean-Baptiste Thomas et Jean Vergnes pour avoir accepté de relire ce manuscrit, ainsi que René Pellat pour m'avoir accordé une partie de son temps et de son attention.

Mes remerciements vont aussi à mes parents et Héloïse qui m'ont soutenu pendant ces deux

années et ont accompli un travail important me permettant de m'éclaircir les idées afin de les rendre plus accessibles.

Enfin, je tiens à remercier l'ensemble des personnes qui ont rendu ce travail possible, que ce soit à l'Ecole des Ponts et Chaussées ou au Ministère de l'Équipement, du Tourisme et du Logement.

Avant-propos

La découverte de la radioactivité naturelle en 1896 et de la fission en 1939 ainsi que la construction de la première pile atomique en 1942 par Enrico Fermi laissaient présager un développement important du nucléaire civil. Malheureusement, la deuxième guerre mondiale allait en partie décevoir cet espoir. Le projet Manhattan et les bombes larguées sur Hiroshima et Nagasaki faisaient de l'énergie nucléaire une arme de destruction, donc purement militaire. Ce cloisonnement allait permettre un foisonnement d'idées originales mais marquait l'industrie définitivement. Tous les concepts du nucléaire actuellement en vigueur n'ont-ils pas une origine militaire? Ainsi que l'illustrent les réacteurs à eau pressurisée issus des sous-marins américains ou les réacteurs hybrides pour la fabrication de plutonium.

Le secret attaché aux opérations militaires ayant trait au nucléaire allait provoquer une "scission". D'un côté, les ingénieurs spécialistes, de l'autre, l'opinion publique avec sa vision très morcelée. En forçant le trait, on peut dire qu'avec les années, l'un devint encore plus spécialisé et le second demeura dans l'ignorance, la communication entre eux étant de plus en plus difficile puisque l'ingénieur s'appuie instinctivement sur son expérience pour expliquer les problèmes que rencontre actuellement l'industrie nucléaire. Expérience incompréhensible pour l'opinion publique tenue à l'écart des développements pendant près de 40 ans du fait de la tradition du "secret militaire". Une étude récente ne montre-t-elle pas que la vision des experts et celle de l'opinion publique sur les problèmes du nucléaire sont diamétralement opposées?

Cette perspective est bien entendu caricaturale, mais elle met l'accent sur la nécessité, face aux problèmes des déchets entre autres, de revenir à des explications, compréhensibles par l'opinion publique, de l'optimisation des centrales nucléaires, du danger des déchets nucléaires et des normes en vigueur. Il faut réussir à expliquer les choix retenus avec des idées simples en essayant d'avoir un minimum recours au savoir-faire des ingénieurs.

Citons un exemple pour illustrer ce propos : les réactions chimiques dans un solvant. Le chimiste connaît par expérience un grand nombre de réactions entre différents composés et oriente ses recherches de cette manière : tel composé réagira de telle manière, conduira à telle autre molécule qui pourrait permettre dans telles conditions de pH ... Pourquoi avoir retenu ce cheminement précis et comment l'expliquer de manière intelligible? Il faut trouver une représentation claire et synthétique, par exemple les diagrammes potentiel-pH qui permettent d'un coup d'œil de comprendre les mécanismes de base du procédé.

Nous avons cherché à adopter ce type d'attitude, en examinant le problème des déchets nucléaires d'un point de vue de scientifique, sans tenir compte de tous les réflexes acquis par l'ingénieur du nucléaire. Il s'agit de mettre à plat l'ensemble des hypothèses pour déterminer les possibilités d'incinération des déchets nucléaires.

Liste des acronymes utilisés

AGR	Advanced Gas Reactor
APT	Accelerator Production of Tritium
ATR	Advanced Thermal Reactor
ATW	Accelerator Transmutation of Waste
ANDRA	Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs
BWR	Boiling Water Reactor
CANDU	CANada Deuterium Uranium
CAPRA	Consommation Accrue de Plutonium dans les RApides
CERN	Centre Européen pour la Recherche Nucléaire
CIPR	Commission Internationale de Protection Radiologique
DIAMEX	DIAmides EXtraction
EA	Energy Amplifier
EPR	European Pressurized Reactor
ESS	European Spallation Source
GSI	Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH
HEPP	Heures Equivalentes à Pleine Puissance
HTR	High Temperature Reactor
IFR	Integral Fast Reactor
ILL	Insitut Laüe Langevin
IPHI	Injecteur de Protons Haute Intensité
ISTC	International Science and Technology Center
JAERI	Japanese Atomic Energy Research Institute
LAMPF	Los Alamos Meson Physics Facility
LINAC	LINear ACcelerator
MOX	Mixed OXYde
MSRE	Molten Salt Reactor Experiment
NEA	Nuclear Energy Agency
OMEGA	Option for Making Extra Gains for Actinides and fission products
PF	Produits de Fission
PFVL	Produits de Fission à Vie Longue
PSI	Paul Scherrer Institute
PUREX	Plutonium and Uranium Recovery by EXtraction
PWR	Pressurized Water Reactor
REP	Réacteur à Eau Pressurisée
RMA	Réacteur à Modération Accrue
RNR	Réacteur à Neutrons Rapides
SESAME	Séparation par Extraction Sélective de l'Américium par Méthodes Electrochimiques
TRUEX	TRansUranic EXtraction
UOX	Uranium OXYde

Table des matières

Remerciements	3
Introduction	13
1 Problèmes posés par les déchets des centrales nucléaires	15
1.1 L'énergie nucléaire dans le monde	15
1.2 Les déchets nucléaires	17
1.2.1 La classification et la masse des déchets	18
1.2.2 Choix de l'indicateur du risque	19
1.2.3 L'impact physiologique	19
1.2.4 Représentation de la radiotoxicité	22
1.2.4.1 Isotopes pris en considération	23
1.2.4.2 Exemple de la décroissance de l' ^{241}Am	23
1.2.4.3 Les produits de fission	23
1.3 Les solutions étudiées	27
1.3.1 Les trois axes de la loi de 1991	27
1.3.2 Le stockage géologique en France	28
1.3.3 La situation dans le monde	28
1.4 Conclusion	29
2 Démarche	31
2.1 Le choix de l'incinération	31
2.1.1 Réacteurs critiques	31
2.1.2 Réacteurs dédiés	33
2.1.2.1 Les réacteurs hybrides	33
2.1.2.2 Les projets	38
2.1.3 Un parc à deux niveaux	45
2.2 La finalité des incinérateurs	45
2.2.1 L'incinération des déchets	45
2.2.2 Les scénarios de production de déchets	46
2.2.2.1 Le cycle ouvert	46
2.2.2.2 Scénario MOX1	49
2.2.2.3 Scénario MOX2	51
2.2.2.4 Le Multirecyclage MOX	51
2.2.3 Comparaison des inventaires radiotoxiques	56
2.3 L'espace des solutions	56
2.3.1 Approche globale	56

2.3.2	Le choix des spectres	60
2.3.2.1	Le spectre thermique	60
2.3.2.2	Le spectre rapide	61
2.3.2.3	Les incertitudes sur les sections efficaces moyennes	62
2.3.3	Les paramètres	63
2.4	Conclusion	66
3	Modèles mathématiques	67
3.1	Notion de consommation de neutrons par fission	67
3.1.1	Définition	68
3.1.1.1	Régime statique	68
3.1.1.2	Régime dynamique	69
3.1.2	Relations mathématiques	76
3.1.2.1	Mélanges d'actinides	76
3.1.2.2	Lien avec le facteur η	78
3.1.2.3	Introduction de réactions "parasites"	80
3.1.3	Résultats	82
3.1.3.1	Deux exemples	82
3.1.3.2	Le cas de l' ^{241}Am	90
3.2	Généralisation à d'autres grandeurs	91
3.2.1	La masse d'actinides à l'équilibre	91
3.2.2	Les produits de fission	94
3.2.2.1	Une section efficace moyenne des PF	94
3.2.2.2	Les PFVL	97
3.2.3	Esquisse de réacteur sous-critique	98
3.2.4	Conclusion	101
3.3	Les flux de matières	101
3.3.1	Modèle	101
3.3.2	Analyse	104
3.3.2.1	Les pertes massiques	104
3.3.2.2	La masse à retraiter	106
3.3.2.3	Le volume à retraiter	106
3.3.3	Conclusion	108
3.4	Image du cœur	109
3.4.1	Un modèle simple du cœur	109
3.4.2	Résolution analytique du modèle	110
3.4.3	Schéma de calcul	113
3.4.4	Considérations générales	119
3.4.4.1	Influence de l'intensité du courant de protons	119
3.4.4.2	La teneur en produits de fission	119
3.5	Conclusion	120
4	Incinération sans recyclage: cas d'un combustible solide	121
4.1	Réduction de l'inventaire radiotoxique	122
4.1.1	Cas des déchets du cycle ouvert	123
4.1.1.1	Spectre thermique	123
4.1.1.2	Spectre rapide	127

4.1.2	Scénarios MOX1 et MOX2	130
4.1.3	Scénario multirecyclage MOX	132
4.1.4	Conclusion	134
4.2	Paramètres physiques des cœurs	134
4.2.1	Le taux d'incinération	136
4.2.1.1	Spectre thermique	136
4.2.1.2	Spectre rapide	136
4.2.2	Evolution de la puissance dissipée au cours de l'irradiation	139
4.2.2.1	Incinération en spectre thermique	139
4.2.2.2	Incinération en spectre rapide	141
4.2.3	Le bilan neutronique	141
4.2.3.1	Spectre thermique	142
4.2.3.2	Spectre rapide	145
4.2.4	Conclusion	146
4.3	Chargement continu	147
4.3.1	Spectre thermique	148
4.3.2	Spectre rapide	151
4.4	Conclusion	153
5	Incinération sans recyclage : cas d'un combustible liquide	155
5.1	Irradiation dans un sel fondu	155
5.1.1	Définition du taux de prélèvement	156
5.1.2	Considérations générales	160
5.2	Réduction de l'inventaire radiotoxique	162
5.2.1	Le cycle ouvert	162
5.2.1.1	Spectre thermique	162
5.2.1.2	Spectre rapide	163
5.2.2	Scénarios MOX1 et MOX2	163
5.2.3	Le multirecyclage MOX	167
5.2.3.1	Spectre thermique	167
5.2.3.2	Spectre rapide	167
5.3	Paramètres physiques	167
5.3.1	L'inventaire en cœur	167
5.3.2	Le bilan neutronique	170
5.4	Dynamique de convergence	173
5.5	Conclusion	174
6	Incinération avec recyclages	175
6.1	Paramètres globaux	175
6.1.1	Inventaire radiotoxique	176
6.1.1.1	Spectre thermique	176
6.1.1.2	Spectre rapide	181
6.1.2	Inventaire massique	184
6.1.3	Bilan neutronique	190
6.1.3.1	Les actinides	190
6.1.3.2	Les PF	192
6.1.3.3	Les PFVL	194

6.1.4	Synthèse	195
6.2	La dynamique	198
6.2.1	Le spectre thermique	199
6.2.1.1	Cycle ouvert	199
6.2.1.2	Multirecyclage MOX	201
6.2.2	Le spectre rapide	204
6.2.2.1	Le cycle ouvert	204
6.2.2.2	Le multirecyclage MOX	204
6.3	Images de cœurs	209
6.3.1	Spectre thermique	209
6.3.1.1	Le cycle ouvert	210
6.3.1.2	Le scénario MOX1	217
6.3.1.3	Le scénario MOX2	220
6.3.1.4	Le scénario multirecyclage MOX	222
6.3.2	Spectre rapide	224
6.3.2.1	Le cycle ouvert	224
6.3.2.2	Les scénarios MOX1 et MOX2	226
6.3.2.3	Le multirecyclage MOX	227
6.3.3	Quelques solutions	228
6.3.3.1	Spectre thermique	228
6.3.3.2	Spectre rapide	230
6.3.4	Cohérence de la démarche	230
6.3.4.1	Concentration en actinides pour le spectre thermique	231
6.3.4.2	Concentration et spectre rapide	238
6.4	Simulation Monte-Carlo	241
6.5	Etude dans le cadre de l'arrêt du nucléaire	243
6.6	Conclusion	245

Conclusion 247

Publication associée A : Dommages dans une fenêtre de réacteur hybride 251

A.1	Introduction	251
A.2	Irradiation damage	252
A.2.1	Mechanism	252
A.2.2	Calculation tools	255
A.2.2.1	LSS theory	255
A.2.2.2	DIANE code	256
A.2.2.3	Comparison	256
A.3	Spallation reactions	258
A.3.1	The process	258
A.3.2	Comparaison to experimental data	258
A.3.3	Cross-sections	258
A.3.4	Recoil energy	261
A.3.5	Displacements per atom	261
A.4	Elastic scattering	263
A.4.1	Cross-sections	267
A.4.2	Displacements per atom	267

A.4.3	Comparison spallation - elastic scattering	271
A.5	General Considerations	271
A.5.1	Thermal power	271
A.5.2	Transmutation of window	272
A.5.3	Displacements by neutrons	272
A.6	Conclusion	273
Publication associée B : Mesure de $\sigma_{capture}({}^{242g}Am)$ à P'ILL		275
B.1	Introduction	276
B.2	Experimental procedure	276
B.3	Off-line measurements	278
B.3.1	Neutron Flux determination	278
B.3.2	X and Gamma-ray spectroscopy of irradiated samples	278
B.3.3	Mass spectrometry analysis	280
B.3.4	Results and Conclusions	281
Publication associée C : Code Monte-Carlo MCAP		285
C.1	Motivation	286
C.2	Physical model and computation scheme	287
C.2.1	Neutronics	287
C.2.1.1	Spallation source	287
C.2.1.2	Interaction generation and propagation	287
C.2.1.3	Characterization	289
C.2.2	Evolution	290
C.2.2.1	Bateman equations	290
C.2.2.2	Numerical resolution	291
C.2.3	Coupling neutronics and evolution	294
C.3	Ergonomics	295
C.3.1	Integration	295
C.3.2	Flexibility	295
C.3.3	Readability	297
C.4	Results and perspectives	297
C.4.1	Results	297
C.4.2	Perspectives	297
C.5	Conclusion	303
C.6	Acknowledgments	303
A Développements mathématiques		305
A.1	Equation de diffusion	305
A.2	Le k_{eff}	307
A.3	Points fixes du facteur de multiplication	308
A.4	Réacteur cylindrique	309
A.5	Image de cœurs homogènes à combustible solide	310

B Données physiques	313
B.1 Sections efficaces à un groupe	313
B.2 Isotopes et facteurs de dose	313
B.3 Inventaire radiotoxique isotope par isotope	315
B.4 Les contraintes technologiques	315
Table des figures	321
Liste des tableaux	325
Bibliographie	329

Introduction

Les déchets nucléaires générés par la production d'électricité suscitent des questions de plus en plus nombreuses. Qu'en est-il de leur nocivité, comment se protéger? Le stockage géologique est-il une solution réellement adaptée? La loi du 30 décembre 1991 [1] a défini le cadre des études d'enfouissement mais a aussi demandé de poursuivre des recherches pour l'entreposage en surface et la séparation-transmutation des déchets.

Ce travail est consacré à l'examen des conditions d'incinération des déchets dans des réacteurs nucléaires. Après avoir passé rapidement en revue les différentes solutions de transmutation en réacteur critique, il nous faudra approfondir la notion de réacteur hybride. Ce dernier, mariage d'une source externe de neutrons et d'un massif sous-critique contenant les déchets nucléaires, pourrait offrir des marges de sûreté supplémentaires et un gain neutronique dont il est intéressant de tirer partie. Les différentes propositions seront détaillées.

Ces configurations de réacteur reposent sur une expérience acquise à partir des réacteurs critiques. Or le problème de l'incinération des déchets est tout autre. L'objectif poursuivi n'est plus la production d'énergie. Il nous faut trouver une démarche permettant de rechercher la meilleure solution possible pour la transmutation et d'en préciser les principales caractéristiques techniques.

La méthodologie retenue repose sur l'analyse fonctionnelle de ces incinérateurs. Il s'agit de définir cet outil d'irradiation par "ses relations avec l'environnement, c'est-à-dire les fonctions qu'il a à assurer dans cet environnement" [2]. Le travail consiste donc à élaborer le cahier des charges et à en déduire les schémas de réacteurs susceptibles de le satisfaire.

Le premier point nécessite la mise en place de différents scénarios d'études précisant les conditions de production de déchets. Contiennent-ils beaucoup d'actinides mineurs, et en quelle proportion? Mais une fois les fonctions précisées ainsi que les conditions de leurs réalisations, il reste le lourd travail de la caractérisation des installations. Parmi toutes les fonctions que peuvent assurer les incinérateurs hybrides, citons aussi la production d'isotopes à vocation médicale ou encore le maintien des compétences techniques. Fonctions que nous ignorons volontairement dans cette étude. Il n'est question que de la transmutation et de ses potentialités.

Toujours dans cette démarche déductive, le dimensionnement des réacteurs hybrides suppose la mise en place d'un schéma de pensée spécifique, essentiellement fondé sur la paramétrisation complète et non-redondante de l'ensemble des solutions, qui ne présage pas les directions retenues *in fine*. Les différents modèles nécessaires à ce schéma vont nous permettre de déduire les principales grandeurs du système. Cet outil mathématique très général peut alors être appliqué à trois cas concrets que nous approfondirons : l'incinération avec un combustible solide sans retraitement¹, l'incinération avec un combustible liquide sans retraitement, l'incinération avec un combustible liquide et un retraitement en ligne. Nous procéderons de manière identique pour

1. Le retraitement dont il est question ici ne s'intéresse qu'à la strate des incinérateurs dans un schéma à double strate.

ces trois cas, avec une analyse des gains potentiels en terme d'inventaire radiotoxique puis des paramètres physiques de ces incinérations, pour dégager quelques solutions.

La transmutation de déchets nucléaires avec un combustible solide nous permettra de comprendre les différences essentielles entre le spectre thermique et le spectre rapide. Nous serons amenés à considérer, pour des raisons de bilan neutronique, un chargement continu du cœur. Les problèmes techniques liés à cette alimentation peuvent être en partie résolus en adoptant un combustible liquide. Mais nous verrons que l'incinération sans recyclage a ses limites. En particulier, les gains potentiels sont plus faibles qu'en combustible solide. Ceci nous conduit naturellement vers le retraitement en ligne pour alléger les contraintes de bilan neutronique en limitant la teneur de produits de fission dans le cœur et ainsi poursuivre l'incinération. En plus de paramètres physiques du cœur, il nous faudra revenir sur les régimes transitoires afin d'estimer leurs durées et vérifier que l'analyse à l'équilibre est pertinente.

Nous pourrions alors préciser les différentes solutions qui remplissent le cahier des charges, tout en vérifiant que les hypothèses, nécessaires pour explorer un espace aussi complexe que celui de l'incinération en réacteur, sont bien vérifiées. Les schémas, loin d'être des solutions finales, pourront alors servir de fil conducteur pour orienter les recherches vers les conditions techniques optimales en vue de la transmutation des déchets nucléaires.

Chapitre 1

Problèmes posés par les déchets des centrales nucléaires

L'énergie nucléaire est apparue rapidement après la découverte de la fission, comme une source potentielle d'énergie. La maîtrise de cette technologie a conduit au développement de plusieurs filières spécifiques. Mais, progressivement, le problème des déchets que cette industrie engendre a pris de l'importance. Nous allons revenir sur ces différents déchets, leur classification et les mesures actuellement retenues pour leur gestion.

Mais, au-delà du problème actuel, il faut examiner les difficultés liées à l'accumulation de ces déchets. Nous reviendrons sur la loi de 1991, relative à la gestion des déchets nucléaires, et ses trois axes de recherche. Le stockage géologique, toujours *la* solution de référence pour tous les pays concernés, doit être complété par des études d'entreposage et des études de séparation - transmutation.

Notre travail se place dans ce cadre. Mais afin d'évaluer les gains potentiels de telle ou telle transmutation, il nous faut une estimation du risque radiologique des déchets. Nous définirons et prendrons l'inventaire radiotoxique comme indicateur de ce risque.

1.1 L'énergie nucléaire dans le monde

Les années 1996-1998 furent l'occasion de fêter le centenaire de la découverte de la radioactivité par Henri Becquerel. Il cherchait à étudier les sels d'uranium pour voir s'ils émettaient par phosphorescence les fameux rayons X qu'avait découverts Röntgen à la fin 1895. Il mit ainsi des sels sur des plaques photographiques, espérant obtenir de la phosphorescence en les exposant au soleil. Malheureusement, il faisait un temps couvert et il laissa son appareillage dans un tiroir. Quelle ne fut sa surprise quand il découvrit que les plaques avaient été impressionnées au fond du tiroir. Avec Pierre et Marie Curie, il étudia les propriétés de ce nouveau phénomène dénommé radioactivité, ce qui leur valut le prix Nobel en 1903.

Le début du XX^{ième} siècle fut une période très active scientifiquement avec la découverte de l'électron, la mise en évidence du polonium et du radium, et la relativité restreinte. Mais il fallut attendre les années 1930 pour mettre en évidence les trois points clés qui nous intéressent ici :

- le neutron
- la radioactivité artificielle
- la fission

Ce ne fut qu'à partir de ce moment qu'il fut possible d'imaginer des réactions en chaîne dont le vecteur serait le neutron. Une fission "consomme" 1 neutron mais elle en produit plus de deux¹ tout en libérant une énergie colossale (200 MeV environ). Ces considérations ont permis de mettre au point des réacteurs nucléaires et la première pile atomique divergea² à Chicago en 1942 sous l'impulsion d'Enrico Fermi.

A partir de 1942, le nucléaire connut une expansion foudroyante avec la proposition d'un nombre considérable de réacteurs différents : réacteurs graphite-gaz, réacteurs à eau lourde, réacteurs à eau bouillante, réacteurs à eau pressurisée, réacteurs à neutrons rapides. Progressivement, le nucléaire vint à s'imposer comme une source d'énergie économique. La progression fut encore plus impressionnante en France où, pour des raisons d'autonomie énergétique (après la crise du pétrole en 1973), tous les efforts furent concentrés sur une filière bien définie de réacteurs de puissance - le REP (Réacteur à Eau Pressurisée) - en vue de satisfaire l'essentiel des besoins en électricité du pays. C'est à ce fait que nous devons aujourd'hui la taille du parc français qui fournit près de 80% de l'énergie électrique.

La situation est nettement moins accentuée dans les autres pays, si ce n'est pour la Lituanie. Mais ce dernier est bien un cas particulier, puisque l'ensemble des centrales a été construit avant 1989 donc avant la sécession des Pays Baltes de l'ex-URSS.

Les pays possédant le plus de centrales nucléaires en service, au 31 décembre 1996, sont les Etats-Unis (109), la France (57), le Japon (54), le Royaume-Uni (35), la Russie (29), le Canada (21) et l'Allemagne (20), soit 74% des 441 centrales (353 GW) de par le monde regroupées en 7 pays. Les pays asiatiques sont actuellement en pleine progression avec 27 centrales commandées [3].

Cette indication du nombre de centrales masque une disparité quant aux procédés et techniques mis en œuvre pour récupérer l'énergie de fission. Nous pouvons distinguer six grandes filières par ordre d'importance [3, 4, 5] :

1. les **réacteurs à eau pressurisée**, PWR (REP) ou VVER. Le caloporteur et le modérateur sont de l'eau ordinaire. C'est la filière la plus répandue avec 252 exemplaires. Cette filière, particulièrement développée en France, y est présente en trois paliers : 34 REP 900 MW_e ; 20 REP 1300 MW_e ; et 4 réacteurs de type N4 (1450 MW_e). L'aboutissement de cette filière est le réacteur européen, l'EPR (European Pressurized Reactor), développé conjointement par la France et l'Allemagne ;
2. les **réacteurs à eau bouillante**, BWR, avec 95 unités. L'eau assure encore les deux fonctions de caloporteur et de modérateur, mais l'ébullition de l'eau est atteinte lors de la traversée du cœur. La vapeur sert directement à faire tourner l'alternateur. Il y a donc une barrière de sécurité en moins, par rapport au PWR, en raison de l'absence du circuit secondaire ;
3. les **réacteurs graphite-gaz**, dans lesquels le modérateur est du graphite et le caloporteur est soit du CO₂ dans le cas des AGR (Advanced Cooled Reactor), soit de l'hélium pour les HTR (High Temperature Reactor). Ces derniers ont la particularité d'utiliser un combustible sous forme de particules enrobées de pyrocarbone noyées dans des bâtonnets cylindriques (conception General Atomic) ou en boulets de graphite de 6 cm de diamètre

1. Ce chiffre varie de manière importante selon les isotopes.

2. La réaction en chaîne s'initie et se maintient : le facteur de multiplication des neutrons, le k_{eff} , est égal à 1.

(version allemande) permettant un chargement et déchargement en continu du cœur [6]. Seule la version AGR de cette filière est exploitée industriellement³, essentiellement au Royaume-Uni - 34 des 35 réacteurs, le dernier étant au Japon ;

4. les **réacteurs à eau lourde**, principalement la version CANDU des Canadiens. Le modérateur et le caloporteur sont de l'eau lourde, mais les circuits sont indépendants afin de diminuer la température du modérateur et de ralentir au mieux les neutrons ;
5. les **réacteurs graphite-eau**, de conception russe, utilisent le graphite comme modérateur et l'eau (H_2O) comme caloporteur. L'eau peut être soit bouillante (version GLWR), soit sous pression (version RBMK). Cette dernière a été malheureusement rendue "célèbre" suite à l'accident de Tchernobyl en 1988. Il reste 18 réacteurs de ce type en fonctionnement ;
6. les **réacteurs rapides**, qui ne ralentissent pas les neutrons et ont la possibilité de faire de la surgénération. Il n'y donc pas de modérateur et le caloporteur est du sodium liquide⁴. Après l'arrêt de Superphénix, il en reste 5 de par le monde ;
7. le **réacteur ATR** (Advanced Thermal Reactor) qui combine le refroidissement par eau bouillante et la modulation par eau lourde. Un seul réacteur de ce type fonctionne, au Japon, d'une puissance de 150 MW_e.

L'évolution du nucléaire et la possibilité de retraiter les combustibles irradiés ont conduit certains pays, dont la France et le Japon, à considérer le plutonium comme une ressource énergétique et non comme un déchet. Prévu initialement pour les réacteurs rapides, ce nouveau combustible est actuellement utilisé pour fabriquer le combustible REP dit mixte, MOX, contenant à la fois du plutonium et de l'uranium. Ce dernier est de l'uranium appauvri, issu des opérations d'enrichissement. La teneur en plutonium, qui compense le manque de réactivité de l'uranium appauvri, est ajustée à 8,2% pour atteindre un taux de combustion de 45 000 MWj/t. Pour des raisons de conception des couvercles de centrales, seulement 30% du cœur est actuellement chargé en combustible MOX [7]. Par ailleurs, ce recyclage hétérogène est limité en raison de la dégradation du plutonium, principalement la teneur en isotopes pairs du plutonium et la production accrue d'actinides mineurs, qui imposent un nombre restreint de recyclages. EDF se limite actuellement à un seul recyclage du plutonium en réacteur REP.

En 1997, 25 réacteurs REP étaient chargés avec ce type de combustible, essentiellement en France et en Allemagne avec 13 et 7 réacteurs respectivement [8].

1.2 Les déchets nucléaires

Les déchets nucléaires produits par ces différentes filières posent des problèmes de stockage à long terme à cause de la durée de vie extrêmement longue de certains d'entre eux ou de leur dérivés. Afin de limiter l'impact des technologies actuelles de production d'énergie sur les générations à venir, de nouvelles solutions sont à rechercher. Les critères de réduction de ces déchets sont nombreux : volumes, masses, radiotoxicité, ... La réflexion en terme de masse et de volume est la mieux adaptée quand il s'agit de la gestion de "colis". Nous observons

3. La filière UNGG française a été abandonnée au profit des REP à cause de l'utilisation de l'uranium métal comme combustible (ce qui limite la puissance spécifique) et du graphite comme modérateur. Le graphite impose des volumes importants, limite la puissance volumique à 1,8 W/cm³ par rapport à 100 W/cm³ pour les REP, et conduit à des réacteurs de faible puissance unitaire [4].

4. Nous ne parlerons pas des réacteurs de sous-marins russes utilisant du plomb ou plomb-bismuth comme caloporteur.. Le réacteur associe le risque chimique au risque radiologique

actuellement un grand effort de la part de la Cogema pour réduire ces volumes. Mais la prise en compte du risque engendré par ces déchets oblige à considérer leur radiotoxicité, les scénarios de stockage ...

1.2.1 La classification et la masse des déchets

En France, les déchets radioactifs sont classés selon deux critères :

- le niveau d'activité, donc l'importance des protections à mettre en place ;
- la période radioactive qui détermine la durée de l'impact des déchets.

Catégorie	Définition
Déchets TFA	Déchets de très faible activité α et à longue durée de vie
Déchets A	Déchets de faible et moyenne activité ne renfermant que les émetteurs β et γ à vie courte et moyenne (< 30 ans) et $\alpha < 0.01$ Ci/t (Curie par tonne)
Déchets B	Déchets de faible et moyenne activité renfermant des émetteurs de longue période et une activité $\alpha > 0.01$ Ci/t
Déchets C	Déchets de haute activité contenant des quantités importantes de produits de fission, d'actinides et de produits d'activation

TAB. 1.1: Classification des déchets adoptée en France [7].

Ceci permet de distinguer quatre catégories (cf. tableau 1.1). En France, sur un kilogramme de déchets nucléaires par an et par habitant, 900 grammes sont de catégorie A, et représentent 5% de la radioactivité totale, 80 grammes sont classés B, et 20 grammes sont des déchets C. La radioactivité est produite, à 95%, par ces deux derniers [9]. Les déchets A sont actuellement compactés dans des fûts métalliques avec des surconteneurs en béton et sont stockés en surface, soit dans le centre de la Manche, soit dans le centre de l'Aube. Les déchets B sont, suivant leur nature, incorporés à du ciment ou compactés puis bétonnés. Les déchets C sont vitrifiés. Les déchets B et C sont actuellement entreposés sur le lieu de retraitement dans des puits aménagés [7, 9, 10, 11] (cf. tableau 1.2).

Activité	Courte et moyenne durée de vie	Longue durée de vie
Faible activité	Stockage en surface	Entreposage
Moyenne activité	Stockage en surface	Loi du 30/12/1991
Haute activité	Loi du 30/12/1991	Loi du 30/12/1991

TAB. 1.2: Options retenues pour la gestion des déchets nucléaires en France [11].

Les déchets d'un REP de 900 MW_e pour une année de fonctionnement avec un taux de charge de 70% (5,52 TWh) sont [7] :

- 69 000 tonnes de résidus miniers, dont la radioactivité résulte principalement du ^{230}Th , du ^{226}Ra et du ^{222}Rn gazeux, descendants de l' ^{238}U ;

- 117,3 tonnes d'uranium appauvri, contenant 0,2% d' ^{235}U ;
- quelques centaines de mètres cubes de déchets A, essentiellement les résines échangeuses d'ions, vannes, pièces mécaniques défectueuses, vêtements ... ;
- 21,5 tonnes de combustibles irradiés, à 95% de l'uranium, auxquels il faut rajouter les coques et embouts, ainsi que les déchets du retraitement.

Ainsi, la production cumulée de déchets conditionnés jusqu'en l'an 2000 du parc électronucléaire français sont évalués à 700 000 m³ de déchets stockables en surface, 56 000 m³ de déchets non stockables en surface, et 2 200 m³ de déchets vitrifiés de très haute activité (produits de fission, actinides, effluents de base).

1.2.2 Choix de l'indicateur du risque

Ces déchets engendrent des risques de natures diverses: risques chimiques liés aux effets biologiques ou physiques (ex: explosion), risques liés aux propriétés physiques (ex: chaleur dégagée, criticité) et risques radiologiques. Le risque qu'ils représentent peut s'évaluer par de multiples critères. Les considérations de masse et de volume de déchets sont importantes quand il s'agit de stocker les déchets. Il faut alors limiter les coûts tout en évitant un retour des isotopes radioactifs dans la biosphère. Le dimensionnement des centres de stockage peut donc se faire en partie en fonction du volume et de la chaleur dégagée.

Dans le cadre d'une transmutation des déchets afin de réduire leur impact sur l'environnement, ces mesures sont inopérantes. Il faut trouver d'autres grandeurs physiques permettant d'évaluer le risque encouru par l'homme: radioactivité, émission α , ... Nous avons retenu comme critère l'impact physiologique ou encore l'inventaire radiotoxique, sans prendre en compte d'éventuelles barrières de confinement. Cette approche néglige toute la chimie associée au conteneur, à la barrière ouvragée et à la roche hôte, éléments essentiels pour un stockage. Mais sa prise en compte suppose des hypothèses quant au devenir du stockage: risque anthropique (volonté de nuire, tentative de récupération des matériaux stockés, accès accidentel lié ou non à la présence de ressources exploitables - ex: sel), risques géologiques (sismicité intense et anormale, érosion des glaciers, changement majeur des flux hydriques profond en raison de l'évolution climatique) ou risques de criticité (ex: réacteurs d'Oklo).

Il nous est apparu plus judicieux d'évaluer les gains en terme d'inventaire radiotoxique (risque potentiel), quitte à tenir compte de l'impact du stockage des déchets résiduels ultérieurement. Revenons alors sur la définition de la radiotoxicité et ses représentations.

1.2.3 L'impact physiologique

Les radionucléides, de par leurs émissions, présentent des dangers radiologiques pour l'homme, à la fois sous forme de risques déterministes (rougeurs, brûlures, ..., pouvant entraîner la mort) et sous forme de risques stochastiques (leucémies, mutations génétiques, ...). Ces risques dépendent de plusieurs paramètres :

- l'énergie cédée au milieu lors d'une décroissance;
- le type de rayonnement associé à cette décroissance;
- l'organe ou le tissu dans lequel ce dépôt s'effectue.

Il existe des modèles qui permettent de prendre en compte l'ensemble de ces facteurs et de déterminer, en ce qui concerne les effets probabilistes des rayonnements, les toxicités de tous

les isotopes. Ces valeurs, exprimées en sieverts par becquerel (Sv/Bq), sont élaborées par la CIPR [12]. Elles prennent en compte l'ensemble du métabolisme humain, et donc dépendent *a priori* de l'âge du sujet et du mode de contamination. Les calculs effectués ici prennent en compte les risques pour l'homme adulte et pour une contamination par ingestion, seule voie de contamination retenue pour le grand public.

Les effets préjudiciables dont il y a lieu de se protéger comprennent les effets somatiques lorsqu'ils se manifestent chez l'individu exposé lui-même et les effets héréditaires qui pourraient affecter sa descendance.

Les effets déterministes (non stochastiques) sont caractérisés par:

- la présence d'un seuil,
- l'augmentation de la gravité de l'effet avec la dose au delà de ce seuil.

Ces effets apparaissent à fortes doses et de manière précoce (entre quelques heures et plusieurs semaines).

Les effets stochastiques sont ceux pour lesquels:

- la fréquence des manifestations augmente avec la dose,
- la gravité est constante,
- aucun seuil n'est constaté.

Ces effets peuvent être dus à de faibles doses et ils sont tardifs.

Il est difficile aujourd'hui de trancher entre les différents types de relations dose-effet, la CIPR a choisi la relation linéaire pour des raisons de prudence [12, 13].

Photons de toutes énergies	1
Electrons et muons de toutes énergies	1
Neutrons énergie ≤ 10 keV	5
Neutrons énergie 10 - 100 keV	10
Neutrons énergie 100 keV - 2 MeV	20
Neutrons énergie 2 MeV - 20 MeV	10
Neutrons énergie ≥ 20 MeV	5
Protons autres que protons de recul, énergie ≥ 2 MeV	5
Alpha, Fragments de fission, Noyaux lourds	20

TAB. 1.3: *Facteurs de pondération des rayonnements W_R .*

Les différentes définitions qui interviennent dans le calcul de la radiotoxicité d'un isotope pour les effets stochastiques sont les suivantes [13]:

Dose Absorbée. C'est l'énergie D cédée à la matière (aux tissus) par unité de masse. Elle s'exprime en gray ($\text{Gy} \equiv \text{J/kg}$). La CIPR la considère, par souci de simplification, moyennée sur l'organe ou le tissu.

Dose Equivalente. C'est une pondération de la *dose absorbée* par le type de rayonnement et son énergie, la référence étant la dose délivrée par les rayonnements γ ou X.

$$H_T = \sum_R W_R D_{T,R} \quad (1.1)$$

dans laquelle $D_{T,R}$ est la dose absorbée moyenne dans le tissu ou organe T, due au rayonnement R. Elle s'exprime en sievert (Sv). Les facteurs de pondération W_R (cf. table 1.3) ne se rapportent qu'aux effets stochastiques.

Dose Efficace. La relation entre la probabilité d'apparition d'effets stochastiques et la dose équivalente n'est pas la même selon l'organe ou le tissu irradié. Il faut donc pondérer H_T par une grandeur prenant en compte la sensibilité de chaque tissu.

$$E = \sum_T W_T H_T = \sum_T W_T \left(\sum_R W_R D_{T,R} \right) \quad (1.2)$$

dans laquelle W_T (cf. table 1.4) est le facteur de pondération pour les tissus (il est indépendant du type de rayonnement et de son énergie). La dose efficace, que nous noterons D_k pour l'isotope k , s'exprime en sievert (Sv).

Tissus	W_T
Gonades	0.20
Mœlle osseuse	0.12
Colon	0.12
Poumons	0.12
Estomac	0.12
Vessie	0.05
Seins	0.05
Oesophage	0.05
Thyroïde	0.05
Peau	0.01
Surfaces osseuses	0.01
Reste de l'organisme	0.05

TAB. 1.4: Facteurs de pondération des tissus W_T pour tenir compte des effets stochastiques différents dans chacun d'eux.

Afin d'évaluer les doses reçues par chaque organe, il est essentiel de connaître le devenir biologique des radionucléides : c'est la dosimétrie interne. Elle fait appel à des modèles mathématiques combinant la physiologie, la biocinétique des radionucléides et l'énergie des rayonnements.

La forme physico-chimique du polluant joue alors un rôle important. Elle détermine la cinétique de passage du site de dépôt vers le sang. Une fois dans le sang, le dépôt dans les organes ne dépend plus de la forme physico-chimique initiale mais de celle sous laquelle le radionucléide est véhiculé. Les simulations se fondent donc sur un modèle gastro-intestinal caractéristique de l'entrée pour les effets par ingestion, seule source de contamination dans les scénarios de retour à l'homme des déchets radioactifs stockés en surface ou en profondeur, puis, une fois l'élément transféré dans le sang, par un modèle biocinétique dit systémique de distribution des radionucléides dans le corps.

La méthode de calcul des facteurs de dose pour un isotope donné repose donc sur :

- la connaissance de l'activité du radionucléide lors de l'ingestion ;

- le calcul de la dynamique de cet isotope dans le corps humain avec les doses équivalentes dans chaque tissu ou organe ;
- le calcul de la dose efficace pour l'ensemble de l'organisme en fonction des facteurs de pondération des tissus.

Notons que la dose équivalente et la dose efficace fournissent une base pour l'estimation de la probabilité d'apparition des effets stochastiques uniquement pour les doses absorbées se trouvant bien en-dessous des seuils pour les effets déterministes, donc pour les faibles doses. Retenons aussi que les nouvelles recommandations de la CIPR sont [13] :

- une limite de 20 mSv par an moyennée sur 5 ans pour les travailleurs (au lieu de 50 mSv/an), à condition que la dose effective n'excède pas 50 mSv pour une année ;
- une limite de 1 mSv par an pour les membres du public (au lieu de 5 mSv/an).

Ces modèles nous permettent de chiffrer l'impact potentiel sur l'homme des différentes composantes des déchets nucléaires : l'inventaire radiotoxique. Les facteurs de doses en sieverts par becquerel pour les différents noyaux sont donnés annexe B. L'objectif de la transmutation de ces déchets est la réduction de cet inventaire. Afin de le mener à bien, il faut disposer d'un outil de modélisation à la fois claire et globale de l'ensemble des processus en jeu.

1.2.4 Représentation de la radiotoxicité

Afin de déterminer l'évolution de la radiotoxicité d'un mélange donné au cours des siècles à venir, nous disposons des chaînes radioactives, les fameuses familles $4n$, $4n+1$, $4n+2$ et $4n+3$. Il est alors possible de calculer les contributions à tout instant t de chacun des isotopes présents. Cette présentation des données est assez confuse et ne permet pas de mettre en évidence l'élément initialement présent qui conduit à tel ou tel phénomène. Par contre, il est pertinent dans l'optique d'une étude de stockage car la forme chimique de l'isotope à l'instant t est essentielle. Nous avons opté pour une représentation plus concise et plus adaptée au traitement des déchets, à savoir le calcul de la contribution de chacun des isotopes de l'inventaire initial [14]. Ainsi, à chaque instant t nous connaissons l'isotope initial responsable de la radiotoxicité calculée. D'où la possibilité d'une incinération ciblée en vue de réduire tel ou tel phénomène.

Pour cela nous disposons dans le cas d'une chaîne de décroissance (sans boucle⁵) d'une formule explicite, dite de Bateman, permettant de calculer à tout instant les populations de chaque isotope de la chaîne issue d'un noyau 0 donné :

$$N_{k,0}(t) = N_0(t) \left(\prod_{i=1}^{k-1} \lambda_i \right) \sum_{i=0}^k \frac{e^{-\lambda_i t}}{\prod_{j=1, j \neq i}^k (\lambda_j - \lambda_i)} \quad (1.3)$$

dans laquelle les N_k sont le nombre de noyaux d'un isotope donné indexés de manière croissante le long de la chaîne et les $\lambda_i = \frac{\ln 2}{T_{1/2}^i}$ les constantes radioactives.

5. Les équations de Bateman sont valables dans le cas d'une filiation directe. Si cette chaîne de décroissance se divise en deux, après deux décroissances différentes par exemple, pour ensuite se rejoindre sur un même noyau, autrement dit pour former une boucle, la formule explicite n'est plus adaptée. La résolution peut tout de même s'effectuer de cette manière si chacune des voies de la boucle est considérée comme une chaîne indépendante. La contribution de chaque isotope est alors la somme des contributions de chaque chaîne ainsi créée, pondérée par l'importance relative des voies de décroissances à l'origine de la boucle.

Compte-tenu de ces populations, il est possible d'exprimer la contribution $d_0(t)$ à la radioactivité totale, d'un isotope 0 présent à $t = 0$, comme la somme des contributions de chacun de ses fils :

$$d_0(t) = \sum_{k=0}^{\infty} \lambda_k N_{k,0}(t) F_k \quad (1.4)$$

avec F_k les facteurs de dose efficace, en Sv/Bq, pour chaque isotope k d'après la CIPR 72 [12].

Cette expression représente la contribution à tout instant de la radiotoxicité induite par un corps initialement présent.

1.2.4.1 Isotopes pris en considération

La formule de Bateman (1.3) ne permet pas de traiter exactement les cas de chemins multiples dans les chaînes de décroissance, ce qui est le cas notamment des éléments Pb et Bi (cf. figure 1.1). La solution est soit de multiplier le nombre de chaînes pour tenir compte de l'ensemble des branchements, soit de négliger les voies de décroissance les moins importantes. Nous avons retenu cette dernière solution. Les chaînes réduites sont présentées dans les tableaux B.2, B.3, B.4 et B.5 de l'annexe B, qui donnent aussi le rapport d'embranchement de la voie retenue et les facteurs de dose. On observe que les derniers éléments de la chaîne n'interviennent pas dans la valeur de la radiotoxicité, comme le montre la figure 1.2 de décroissance de l' ^{241}Am : les isotopes radioactifs du plomb et du bismuth ne contribuent pas à l'inventaire radiotoxique. Cette constatation justifie *a posteriori* les approximations faites.

1.2.4.2 Exemple de la décroissance de l' ^{241}Am

Il faut prendre garde que ce type de représentation ne conduise pas à des erreurs d'interprétation lorsqu'apparaissent des augmentations de radiotoxicité dues à l'apparition de fils plus nocifs que le père. Un tel cas est illustré par la figure 1.2: l' ^{241}Am décroît en 431 ans vers du ^{237}Np qui a une demi-vie de $2,14 \cdot 10^6$ ans. L'apparition tardive du ^{229}Th , très toxique (cf. table 1.5), provoque la remontée de la courbe de radiotoxicité au delà de 10^4 ans.

Isotope	Facteur F_k	$T_{1/2}$
^{241}Am	$2,0 \cdot 10^{-7}$	432 ans
^{237}Np	$1,1 \cdot 10^{-7}$	$2,1 \cdot 10^6$ ans
^{233}Pa	$8,7 \cdot 10^{-10}$	27 jours
^{233}U	$5,1 \cdot 10^{-8}$	$1,6 \cdot 10^5$ ans
^{229}Th	$4,9 \cdot 10^{-7}$	7880 ans
^{225}Ra	$9,9 \cdot 10^{-8}$	14,9 jours

TAB. 1.5: Facteurs de dose des principaux fils de l' ^{241}Am [12].

1.2.4.3 Les produits de fission

L'évaluation de la radiotoxicité totale engendrée par l'activité électro-nucléaire passe bien sûr par les calculs indiqués ci-dessus, mais aussi par la détermination de l'impact des produits de

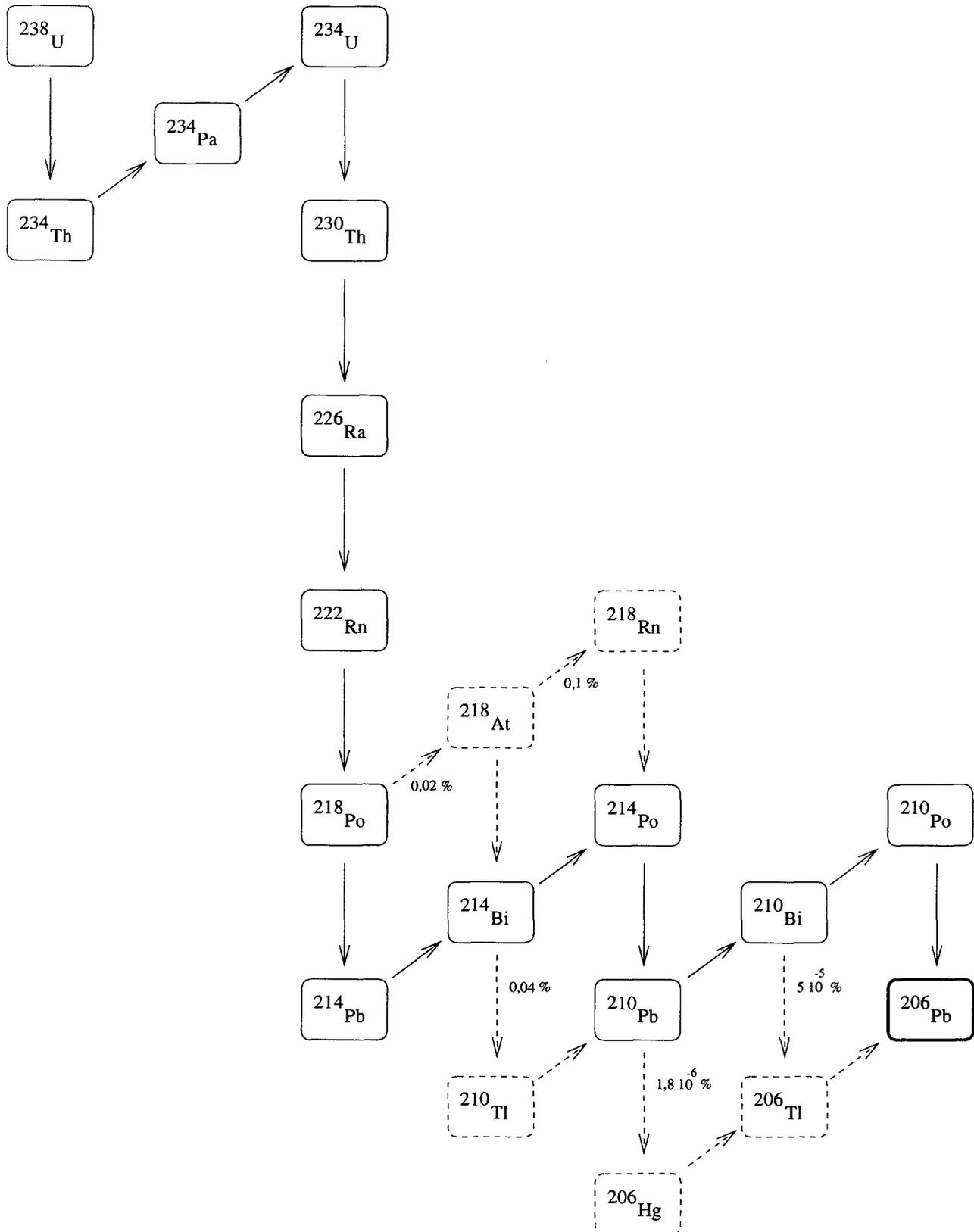


FIG. 1.1: Voies de décroissance radioactive de l' ^{238}U . La chaîne principale retenue pour les calculs de filiation est en traits pleins.

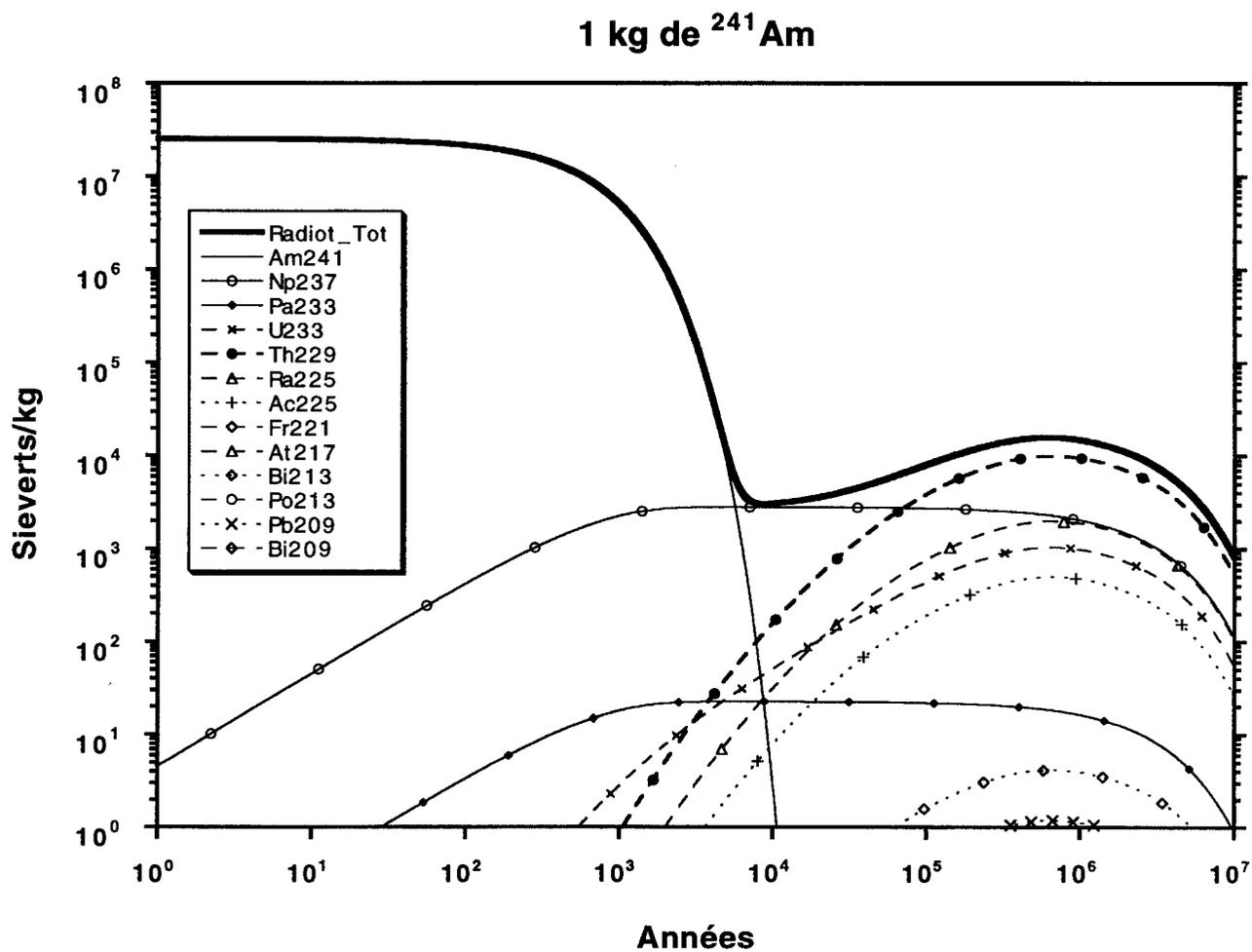


FIG. 1.2: Evolution de la radiotoxicité de l'américium. Les durées de vie sont telles que l' ^{233}U apparaît avec un certain retard entraînant celui du ^{229}Th très toxique.

fission. Afin de ne pas alourdir la démarche, seuls les produits de fission à vie longue (PFVL) ou ceux particulièrement toxiques [15], pour lesquels nous disposons de la courbe de radiotoxicité au cours du temps (cf. figure 1.3), ont été retenus dans la suite de ce travail. De plus nous ferons l'hypothèse selon laquelle les produits de fission toxiques, rapportés à l'énergie libérée (kg/TWh_{th}), qui apparaissent au cours d'une irradiation sont les mêmes que ceux du cycle ouvert (cf. tableau 1.6). Ceci permet de chiffrer l'ordre de grandeur de la contribution des PFVL sur la radiotoxicité totale. En effet, bien que la composition isotopique soit différente pour chaque incinération, nous pouvons estimer, à l'ordre 1, que la radiotoxicité totale des produits de fission à vie longue sera équivalente.

Isotope	$T_{1/2}$ (années)	masse	Facteur F_k
^{90}Sr	28	1,6	$2,8 \cdot 10^{-8}$
^{93}Zr	$1,5 \cdot 10^6$	2,5	$1,1 \cdot 10^{-9}$
^{99}Tc	$2,1 \cdot 10^5$	2,7	$6,4 \cdot 10^{-10}$
^{129}I	$1,6 \cdot 10^7$	0,6	$1,1 \cdot 10^{-7}$
^{135}Cs	$2,0 \cdot 10^6$	1,4	$2,0 \cdot 10^{-9}$
^{137}Cs	30	3900	$1,3 \cdot 10^{-8}$

TAB. 1.6: *Produits de fission pris en compte pour le calcul de la radiotoxicité et production en kg/TWh dans un réacteur N_4 [15].*

Une étude détaillée de l'incinération de l' ^{241}Am dans spectre thermique a été menée [16]. Cette étude tient compte du déplacement des bosses de fission en fonction du noyau fissionnant : la bosse haute est approximativement identique pour tous les actinides, par contre la bosse basse se décale avec la masse du noyau et son numéro atomique. En recensant plus de 180 produits de fission, il est possible d'étudier le comportement global des PF lors de l'incinération d'un actinide : les rendements de fission pour les PFVL qui nous intéressent. Seul le ^{107}Pd a un rendement de fission qui croît de manière sensible. Plus globalement, la proportion de produits de fission à vie longue décroît avec la durée d'incinération. Compte-tenu de ces indications, et pour tenir compte de manière adéquate des produits de fission à vie longue en spectre rapide (les bosses de fission évoluent moins qu'en spectre thermique car la propension à fissionner est importante), nous conserverons pour la suite du travail l'hypothèse pessimiste faite ci-dessus.

Notre étude nous amène donc à considérer quatre sources de radiotoxicité :

- les produits de fission à vie longue issus des centrales REP du parc dont une fraction peut faire l'objet d'une incinération spécifique ;
- les actinides mineurs qui ne sont pas totalement transmutés au cours du cycle d'incinération considéré plus loin ;
- les produits de fission à vie longue générés dans ce cycle d'incinération ;
- les pertes en actinides mineurs lors des opérations de retraitement.

D'où deux démarches possibles, la première consistant à totaliser l'ensemble de ces sources pour connaître la radiotoxicité globale du parc pour un an de fonctionnement⁶, la seconde ne prenant en compte que les produits issus des incinérations afin de les comparer plus finement à

6. Nous négligerons ici les écarts temporels de quelques années dus aux incinérations.

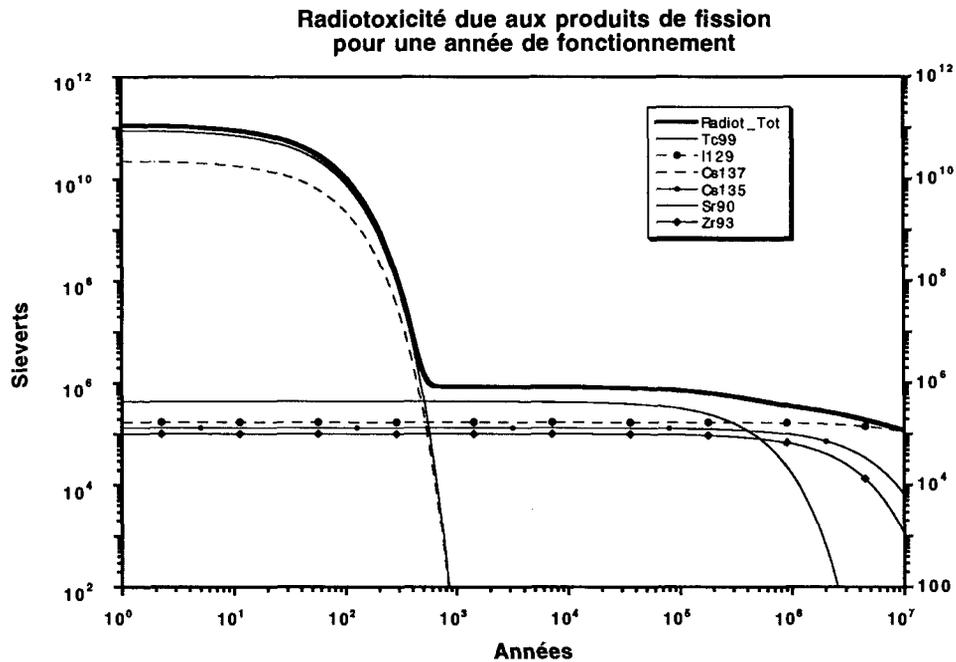


FIG. 1.3: Radiotoxicité de la production annuelle de produits de fission issus des réacteurs REP-UOX de 900 MWe [15].

l'inventaire radiotoxique initial. Nous opterons pour la première tout en traitant les pertes de retraitement du combustible REP séparément.

Enfin, un indicateur de risque nécessite une référence. Nous avons retenu celle de l'uranium naturel initial utilisé pour la fabrication du combustible nucléaire. Nous aurons ainsi une indication du niveau de toxicité relative entre les déchets produits *in fine* et les matériaux initiaux. Mais il ne faudrait pas pousser cette comparaison plus avant car les conditions de concentration et de stockage, entre autres, ne sont pas comparables : alors que l'uranium est enfoui sous terre à de très faibles teneurs, les déchets nucléaires sont concentrés et actuellement stockés en surface. Cette référence nous servira tout de même à relativiser le gain en terme d'inventaire radiotoxique obtenu par incinération.

1.3 Les solutions étudiées

Après avoir dressé ce panorama des déchets nucléaires et leur conséquences radiologiques, examinons les solutions retenues d'abord en France, puis par les autres pays confrontés à ce problème.

1.3.1 Les trois axes de la loi de 1991

En raison des difficultés rencontrées par l'ANDRA pour trouver des sites d'implantation de laboratoire souterrain et de stockage, le Parlement vota une loi le 30 décembre 1991 [1]. Elle donne le cadre des études à mener concernant la gestion des déchets radioactifs et détermine trois axes qui sont :

1. "la recherche de solutions permettant la séparation et la transmutation des éléments

radioactifs à vie longue” ;

2. “l’étude des possibilités de stockage réversible ou irréversible dans les formations géologiques profondes” ;
3. “l’étude des procédés de conditionnement et d’entreposage de longue durée en surface”.

Cette loi définit aussi les conditions de mise en place et d’exploitation des laboratoires souterrains destinés à étudier les formations géologiques.

1.3.2 Le stockage géologique en France

Trois sites pour l’installation de laboratoire ont été envisagés par l’ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs) : deux sites argileux, le site de l’est (dans les départements de la Meuse et de la Haute-Marne), et le site du Gard ; un site granitique dans le département de la Vienne [17]. Nous ne reviendrons pas sur la description de chacun des sites ni sur les laboratoires ou la méthode de stockage [17, 18]. De même pour les processus de dégradation des colis par lixiviation, dévitrification et dissolution [10].

Retenons seulement que l’enfouissement repose sur le concept dit des trois barrières. La première est la matrice de confinement, que ce soit du verre, des céramiques ou du béton, éventuellement dotée d’un surconteneur. La deuxième est la barrière ouvragée, les matériaux de remplissage des structures artificielles dans lesquelles sont déposés les colis. Et la troisième est la “roche” hôte : du granite, de l’argile ou du sel [7, 19].

Différentes études sont menées pour évaluer les possibilités de rétention des différents milieux en fonction de l’hydrologie du sol, de ses propriétés chimiques, de son taux de fissuration dans le cas du granite ... (expériences PAGIS, EVEREST et PACOMA) [18, 19]. Retenons les conclusions générales de ces études : les doses maximales qui seraient ingérées par l’homme sont très faibles dans toutes les configurations. Les produits de fission sont les éléments les plus mobiles et sont la source d’une fraction importante des doses reçues par l’homme [19].

Ces résultats montrent qu’un stockage géologique correctement conçu et réalisé n’entraînerait que des conséquences minimales et donne l’image d’innocuité du stockage. Pourtant, il existe de fortes réticences dans certains secteurs de l’opinion [7].

1.3.3 La situation dans le monde

Pour tous les pays confrontés au problème des déchets nucléaires, la solution de référence demeure, malgré le frein de l’opinion, le stockage géologique profond, que ce soit pour les combustibles irradiés ou pour les déchets issus du retraitement.

En Allemagne, deux sites sont examinés. Le projet Gorleben étudie un site dans un dôme de sel près de Gorleben en Basse-Saxe pour l’enfouissement des déchets de haute activité exothermiques. Le stockage pourrait débuter en 2012. Le projet Konrad reprend l’ancienne mine de fer Konrad pour y stocker des déchets de faible et moyenne activité non-exothermiques. Son exploitation est prévue courant 2001 [20].

Aux Etats-Unis, le site de stockage étudié est celui de Yucca mountain (tuf) dans le Nevada à 160 kilomètres de Las Vegas. Le DOE espère l’exploitation du site pour 2010 [21].

Enfin, les sols granitiques sont envisagés par le Canada, la Finlande, le Japon, la Suède et la Suisse ; l’argile par la Belgique et le Hongrie [7, 22].

1.4 Conclusion

Les déchets nucléaires produits par les centrales nucléaires s'accumulent progressivement. La NEA (Nuclear Energy Agency) estime que les capacités mondiales d'entreposage, qui sont à l'heure actuelle un peu moins du double de la production cumulée de combustibles irradiés, deviendraient insuffisantes à partir de 2010 [7]. Il s'agit de trouver une solution viable à la fois pour les déchets de faible et moyenne activité et pour les déchets de haute activité. Le stockage géologique représente pour tous les pays la solution de référence, et les conséquences radiologiques données par les études montrent leur "innocuité".

Mais ces solutions sont difficilement compréhensibles pour certains secteurs de l'opinion et d'autres voies sont à explorer. La loi française du 30 décembre 1991 distingue trois axes de recherche qu'il convient d'explorer de manière plus approfondie : la séparation - transmutation, le stockage géologique, l'entreposage. Nous plaçons notre étude dans le cadre de ce premier axe.

Nous allons donc étudier les possibilités de transmutation des déchets nucléaires en produits à vie plus courte. Pour évaluer les gains susceptibles d'être réalisés lors d'une incinération, nous sommes amenés à introduire un indicateur du risque engendré par les déchets. Nous avons retenu l'inventaire radiotoxique. Il nous faut maintenant examiner de plus près les conditions de ces incinérations.

Chapitre 2

Démarche

La transmutation des déchets nucléaires transforme ces noyaux toxiques à longue durée de vie en corps à plus courte durée de vie, les produits de leur fission dans le cas des actinides, ou en isotopes stables dans le cas des produits de fission à vie longue. Après avoir examiné succinctement les problèmes techniques de l'incinération en réacteurs critiques, nous détaillerons les caractéristiques d'un réacteur hybride, permettant d'envisager plus facilement, grâce à sa sous-criticité, des combustibles composés uniquement de transuraniens. Nous reviendrons ensuite sur les principaux projets.

Il est intéressant d'avoir un outil pour détruire les déchets, mais encore faut-il savoir l'adapter au besoin : réduire la nocivité des déchets. Afin de mener cette étude à bien, nous devons préciser les scénarios de référence : quels déchets et en quelle quantité ? Nous en retiendrons quatre.

Nous devons aussi préciser le cheminement que nous allons suivre, à l'opposé de la démarche habituellement suivie pour optimiser les réacteurs de puissance. En effet, l'objectif étant différent, l'optimisation ne peut se faire d'une manière identique. Ceci va mettre en place une approche que nous appliquerons tout au long de cette étude.

2.1 Le choix de l'incinération

La destruction des déchets nucléaires peut s'imaginer de bien des manières. Des propositions ont été formulées pour assurer la transmutation des actinides par réactions photonucléaires, par spallation directe ou indirecte, par les neutrons produits lors de la fusion catalysée par muons, ou encore par des hybrides fusion-fission [23]. Pour des raisons énergétiques, les seules alternatives encore envisagées concernent la transmutation dans des réacteurs à fission, qu'ils soient critiques ou alimentés par une source externe de neutrons. Nous allons examiner rapidement les problèmes rencontrés lors de l'incinération en réacteurs critiques avant de détailler les propositions des différents groupes de recherche concernant les réacteurs hybrides : réunion d'un cœur sous-critique et d'une cible de spallation pilotée par un accélérateur.

2.1.1 Réacteurs critiques

L'incinération des déchets nucléaires produits par les réacteurs de puissance dans ces mêmes réacteurs a fait l'objet de multiples études, à la fois en REP et en RNR [24, 25]. Des études ont vu le jour telles que CAPRA pour la consommation accrue de plutonium en réacteur rapide, ou les réacteurs à rapport de modération accrue (RMA) ... , et elles ont conduit à un grand nombre

d'expériences (Superfact 1 et 2 en réacteurs rapides, Actineau en spectre thermique, pour ne citer que celles-là) [14, 26]. Nous ne souhaitons pas faire ici la synthèse de toutes ces études, mais nous pouvons revenir rapidement sur les conséquences de l'incinération des actinides à la fois du point de vue du fonctionnement, du contrôle et de la sûreté. L'impact sur le fonctionnement est sensiblement identique en RNR et en REP [26].

Du point de vue du fonctionnement, l'introduction d'actinides mineurs conduit à une réduction de la perte de réactivité au cours du cycle d'irradiation. En effet, ces noyaux, peu fissiles initialement, sont progressivement transmutés en matière fissile (ex : $^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Am}$), compensant la baisse de la matière fissile initiale et l'apparition progressive des corps capturants. *A contrario*, la diminution de la teneur en ^{238}U dans un cœur RNR, au profit de celle en plutonium a, en général, pour effet d'accélérer la chute de réactivité durant un cycle et donc de diminuer la longueur du cycle [14, 26].

Du point de vue du contrôle du réacteur, deux effets sont à noter :

- la proportion de neutrons retardés¹ diminue avec l'introduction des actinides mineurs (cf. tableau 2.1) [14, 25, 28], ce qui réduit la marge entre la criticité et la criticité prompte [27]. Notons aussi que l'utilisation d'un combustible liquide, comme pour le réacteur expérimental d'Oak Ridge, accentue encore cette baisse, d'autant plus importante que la vitesse de circulation du combustible est élevée [29] ;
- l'efficacité des absorbants (barres de contrôle et bore soluble) est réduite en raison de la diminution de leur poids relatif dans les processus de capture [14].

Isotopes	β_{eff} en pcm
^{235}U	680
^{238}U	1580
^{239}Pu	215
^{240}Pu	310
^{241}Pu	515
^{242}Pu	720
^{237}Np	473
^{241}Am	138
^{242m}Am	247
^{243}Am	230
^{243}Cm	73
^{245}Cm	167

TAB. 2.1: Coefficient β_{eff} de quelques isotopes [25, 28].

Du point de vue de la sûreté le coefficient de vidange, qui dicte l'évolution de la réactivité en cas de perte de caloporteur, se dégrade avec l'introduction des actinides dans le cœur. Le coefficient Doppler, qui relie la réactivité à la variation de température du cœur [27], diminue. Cette dernière évolution est néfaste puisqu'elle ne conduit pas à la contre-réaction constatée en REP : une hausse de la température avec un coefficient Doppler important conduit à une baisse de réactivité donc de puissance, d'où une diminution de la température. Ce phénomène est donc moins important avec la présence d'actinides.

1. Les neutrons retardés permettent d'assurer le pilotage convenable d'un réacteur critique [27].

Globalement, l'introduction des actinides diminue l'importance de l' ^{238}U , principal isotope assurant les contre-réactions nécessaires à un fonctionnement adéquat d'un réacteur.

Ces conséquences imposent de limiter la quantité maximale admissible d'actinides mineurs dans le combustible, en mode homogène, à environ 5% de la masse totale des isotopes lourds pour les réacteurs rapides et à 1% ou 2% pour les réacteurs thermiques [26, 30]. Les conclusions sont similaires en voie hétérogène si les assemblages sont placés dans le cœur. S'ils sont placés en périphérie, leur impact est faible sur les caractéristiques physiques du cœur, mais la concentration est limitée par la puissance spécifique [24, 26, 30].

2.1.2 Réacteurs dédiés

En raison des problèmes évoqués ci-dessus concernant le fonctionnement, le contrôle et la sûreté des cœurs contenant des actinides mineurs, vouloir incinérer les déchets nucléaires sans support fertile conduit à étudier les réacteurs sous-critiques. Ils permettent aussi d'augmenter le nombre de neutrons disponibles pour la transmutation des déchets nucléaires par rapport à un réacteur critique. Mais la sous-criticité impose la présence d'une source externe de neutrons.

2.1.2.1 Les réacteurs hybrides

Les réacteurs hybrides couplent un accélérateur de protons à un massif sous-critique (cf. figure 2.1). La production de neutrons à partir de protons se fait dans une cible de spallation. Ces neutrons diffusent alors dans le massif sous-critique contenant les déchets nucléaires et siège des réactions nucléaires permettant leur transmutation.

Un incinérateur est constitué d'un accélérateur, d'une cible de spallation, d'un massif sous-critique, d'un ensemble échangeur + alternateur afin de convertir l'énergie thermique en électricité et, le cas échéant, d'une usine de retraitement. Nous allons décrire brièvement ces différentes composantes, en renvoyant aux références indiquées pour des études plus détaillées.

L'accélérateur Il fournit les protons nécessaires au maintien du flux neutronique dans le cœur. Dans les différentes propositions, détaillées par la suite, il est prévu un accélérateur de 10 à 50 mA pour une énergie de 1 GeV, soit une puissance comprise entre 10 et 50 MW. A titre de référence, l'accélérateur linéaire LAMPF (Los Alamos Meson Physics Facility) de Los Alamos fournit 1 MW à 800 MeV, et le cyclotron de PSI délivre 900 kW à 590 MeV depuis septembre 1995 [31, 32]. Parmi les études menées sur les accélérateurs linéaires citons le projet américain APT (Accelerator Production of Tritium) qui vise 100 mA à 1,3 GeV en mode continu, le projet français IPHI (Injecteur de Protons Haute Intensité), une source intense de protons en vue de produire des protons de 1 GeV avec un courant de 50 mA (voir [33] pour la source, [34] pour le projet d'injecteur et [35] pour les activités sur les accélérateurs en général en France), le projet japonais de JAERI de 10 mA, 1,5 GeV ou encore le projet de source de spallation ESS (European Spallation Source) [31].

Enfin, évoquons deux problèmes cruciaux pour les accélérateurs dans le cadre des réacteurs hybrides : les pertes et les interruptions de faisceau. Le premier induit la production des particules de hautes énergies, dont il faut se prémunir, et active les matériaux constitutifs de l'accélérateur, rendant les interventions de maintenance plus difficiles. Afin d'éviter ces problèmes, les pertes de faisceau doivent être maintenues à un niveau très faible, de l'ordre de 0,1 à 1 nA/m [36]. A titre de comparaison, les pertes au LAMPF pour un faisceau de 1 mA

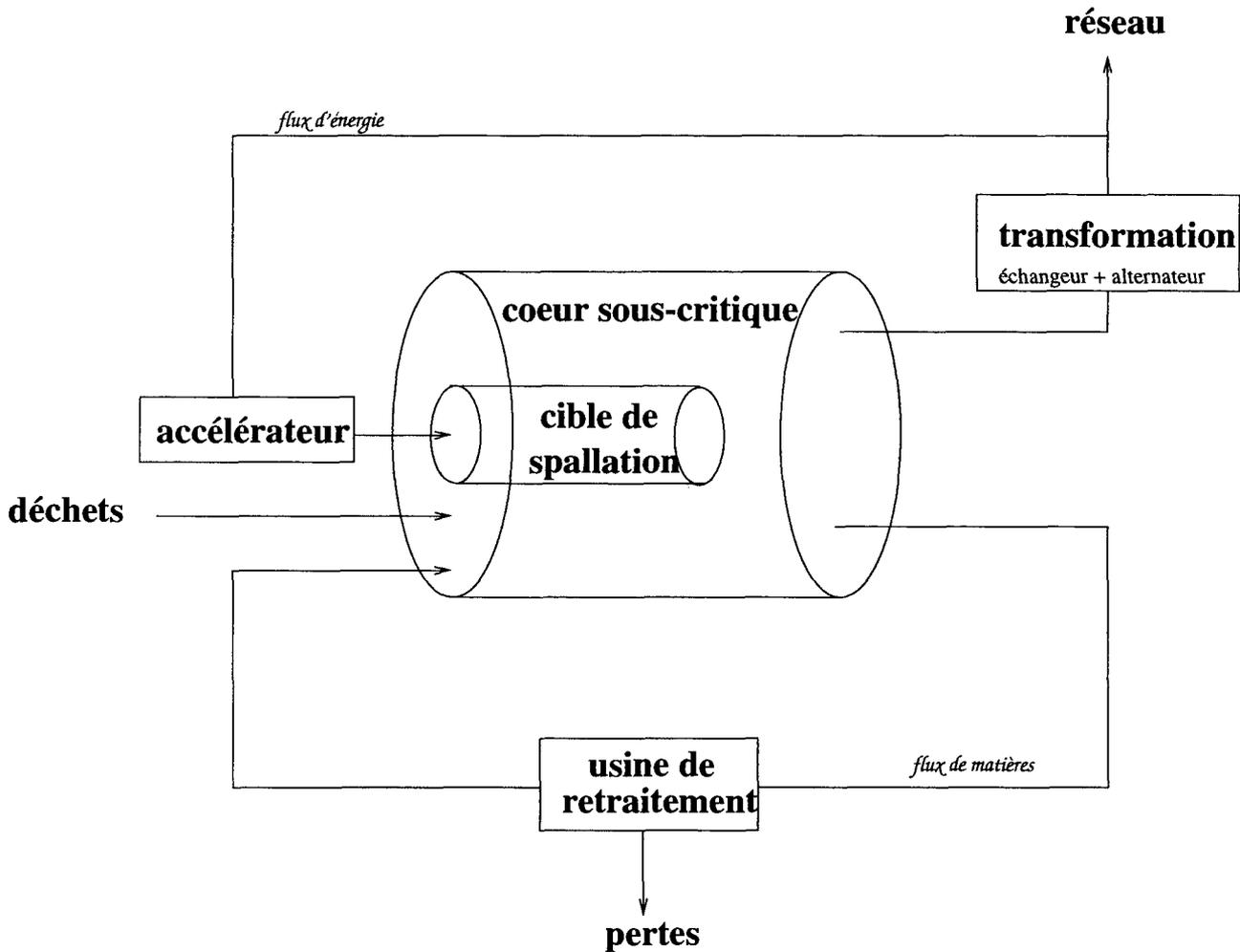


FIG. 2.1: Schéma d'un réacteur hybride pour la transmutation des déchets nucléaires. Il comprend le cœur assurant la fission des actinides et l'éventuelle usine de retraitement permettant la séparation des produits de fission des actinides. Une fraction de l'énergie produite par la fission des actinides sert à faire fonctionner l'accélérateur.

sont inférieures à 0,02%, soit 0,2 nA/m [31]. Le second problème conduit à des chutes de puissance du cœur et à des chocs thermiques. La solution peut passer par l'utilisation de plusieurs accélérateurs en parallèle.

La cible de spallation Elle assure la transformation des protons de haute énergie en neutrons qui jouent le rôle de source externe pour la couverture sous-critique. La physique de la spallation peut se décomposer en deux étapes principales : l'interaction primaire entre un proton et un noyau de la cible et la cascade internucléaire qui se développe dans une cible épaisse [14, 37]. Lors de la première phase, le proton pénètre dans le noyau et interagit avec un nucléon par diffusion élastique nucléon-nucléon libre (l'énergie incidente est très supérieure à l'énergie de liaison du nucléon dans le noyau). Une cascade intranucléaire se développe au sein du noyau conduisant à l'émission d'un grand nombre de nucléons, mésons et même de légers clusters (^2H , ^3He , ...). Une fois la cascade terminée, par manque d'énergie pour extraire de nouvelles particules, le noyau, dans un état excité, dit de pré-équilibre, "évapore" des particules. Lors de

tous ces processus, l'émission de neutrons est dominante pour les noyaux lourds car favorisée par la cascade intranucléaire. La deuxième phase correspond à la propagation des particules produites dans la cible de spallation : la cascade internucléaire. Les particules peuvent interagir avec les noyaux de la cible et déclencher les mêmes processus que lors de la première phase.

Le nombre de neutrons émis lors de la spallation dépend donc de la géométrie de la cible (la cascade internucléaire se développant plus ou moins) et croît avec l'énergie du proton incident (pour $E_p < 2,5$ GeV [14]). Dans les configurations envisagées pour les réacteurs hybrides, chaque proton produit 20 à 30 neutrons pour des protons de 1 GeV. Les caractéristiques de ces neutrons doivent être connues précisément, à la fois en énergie (le spectre allant de quelques keV à l'énergie du faisceau) et en distribution angulaire pour optimiser la géométrie de la cible et la positionner correctement dans le massif sous-critique. Des expériences sont en cours, à la fois sur cible mince et sur cible épaisse, pour évaluer les deux phases de la spallation indiquées plus haut [38, 39, 40, 41]. Des mesures importantes ont aussi lieu, à GSI par exemple (en cinématique inverse), afin de déterminer les résidus de spallation, les noyaux formés lors des réactions nucléaires et qui peuvent modifier le comportement physico-chimique de la cible (ex : corrosion accrue) et conduire à la production d'isotopes toxiques (ex : polonium)[42, 43].

Il se présente plusieurs solutions quant à la composition de la cible [44], les noyaux lourds étant largement favorisés par leur rendement neutrons/proton. Elle peut s'envisager solide ou liquide, être le combustible lui-même ou séparée et composée de tungstène, plomb, bismuth, tantale ... [31]. Une solution retenue est celle d'une cible liquide séparée, en eutectique plomb-bismuth dont la contraction à la solidification est nulle et dont le point de fusion est suffisamment bas, 125°C.

Indiquons qu'il existe environ 4 cibles de spallation en fonctionnement actuellement, mais les paramètres technologiques sont encore loin de ceux envisagés pour la réalisation industrielle d'un hybride : SINQ à PSI (Suisse), ISIS au laboratoire Rutherford Appleton (UK), IPNS à Los Alamos (USA) et KENS au laboratoire national pour la physique des hautes énergies de Tsukuba (Japon) [31]. Certains projets sont en cours de développement comme le projet ESS ou la cible de démonstration en cours d'élaboration à Obninsk (Russie) pour le compte du projet ISTC 559 [45].

La fenêtre L'interface entre la cible de spallation et l'accélérateur est un élément critique du réacteur hybride. Il existe des propositions qui se passent de fenêtre et assurent la séparation par la convection forcée de la cible (liquide) [46]. Mais, si elle est présente, elle est le siège de réactions nucléaires (induites par les protons du faisceau et les neutrons du milieu sous-critique) et subit des chocs thermiques. La présence d'une cible liquide engendre aussi des problèmes de corrosion. Les dommages dus aux protons ont été évalués en tenant compte des réactions de spallation [47]. Nous proposons une autre évaluation de ces dommages car il nous semble que ces calculs oublient une contribution importante des protons aux dommages : les diffusions élastiques (cf. publication associée A). En effet, l'énergie des protons (≈ 1 GeV) est suffisante pour que l'énergie de recul des noyaux de la fenêtre, lors de diffusion élastique à très faible angle de déviation (seul cas où les sections efficaces sont suffisamment élevées), permette aux noyaux de quitter leurs sites et d'engendrer des cascades de déplacements. Il ressort que les déplacements par atomes dus à ce phénomène sont au moins aussi importants que ceux induits par la spallation.

Le massif sous-critique La couverture est le siège des réactions nucléaires qui assurent la fission des actinides. Elle contient le combustible, le caloporteur et, en spectre thermique, un modérateur.

Les combustibles solides sont envisagés sous forme d'oxydes classiques, sous forme de nitrures ou encore sous forme métallique : ces deux derniers favorisent les spectres rapides et permettent d'obtenir de meilleurs bilans neutroniques car ils sont plus denses en noyaux lourds [31, 48]. Notons qu'il n'existe pas de proposition en spectre thermique avec un combustible solide, toutes font appel à un sel fondu. Les combustibles métalliques bénéficient de l'expérience acquise lors des études américaines de l'IFR (Integral Fast Reactor) [49] : taux de combustion supérieurs à 170 GWj/tML et une meilleure conductivité thermique que les oxydes. Le combustible nitrure a un point de fusion élevé (≈ 3100 K), une bonne conductivité thermique (≈ 15 W/mK contre ≈ 2 W/mK pour l'oxyde) et une densité élevée, faisant de lui une alternative au combustible oxyde, d'où son étude dans le cadre de CAPRA mais aussi à JAERI [50, 51]. Parmi les difficultés rencontrées, les captures sur ^{14}N (99,6% de l'azote naturel), nécessitant un enrichissement en ^{15}N jusqu'à 99,9% dont la réalisation, techniquement prouvée, entraîne un surcoût de fabrication de combustible de 17 à 27% [31].

Les caloporteurs envisagés pour les combustibles solides sont principalement des métaux liquides : le sodium et l'eutectique plomb-bismuth (pour son point de fusion à 125°C) sont souvent cités. Les propriétés nucléaires et chimiques du caloporteur sont importantes à la fois (i) pour le bilan neutronique et pour limiter son activation et (ii) pour les problèmes de corrosion et pour disposer d'une plage de fonctionnement (en température) suffisamment large (point de fusion faible, point d'ébullition élevé, dans le cas d'un caloporteur liquide). Notons que des propositions de réacteur hybride refroidi au gaz sont en cours de d'élaboration.

Les combustibles liquides ont fait l'objet de nombreuses études, de la dissolution des actinides directement dans de l'eau lourde à la dissolution dans des métaux liquides, en passant par les sels fondus. Ainsi le réacteur expérimental MSRE (Molten Salt Reactor Experiment) de 8 MW_{th} d'Oak Ridge a fonctionné dans les années 60 en utilisant un sel de type LiF-BeF₂. Celui-ci circulait à 720°C (température de sortie) dans un réseau de graphite. Ce réacteur a fonctionné avec de l' ^{235}U comme combustible entre 1965 et 1968, totalisant 9 000 HEPP (Heure Equivalente à Pleine Puissance) avec un taux de charge de 80% pendant les 15 derniers mois. Puis, il a été adapté au cycle Th-U, cumulant 2 500 HEPP entre 1968 et 1970 et démontrant par là les possibilités de surgénération en spectre thermique (taux de 1,02) [52, 53, 54].

Parmi les propositions existantes, on retiendra surtout les sels à base de fluorures ou de chlorures. D'une manière générale le sel doit posséder les caractéristiques suivantes :

- propriétés adaptées au spectre de neutrons souhaité ;
- propriétés physiques et chimiques du fluide convenables, ainsi qu'une compatibilité suffisante avec les matériaux de structure ;
- solubilité adéquate des actinides.

Seront aussi à traiter les problèmes d'activation et de corrosion.

L'avantage des combustibles liquides est triple : (i) ils permettent d'extraire en ligne les produits de fission, ouvrant la voie à des taux d'incinération élevés, (ii) ils n'imposent pas des temps de refroidissement entre la fin de l'irradiation et le début des opérations de retraitement (3 ans actuellement en France), et (iii) ils permettent des distributions de puissance (d'autant moins plates que le k_{eff} est loin de 1) et de flux moins plates que dans des réacteurs critiques. Par ailleurs, l'homogénéité du combustible assure une incinération uniforme des actinides.

La production d'électricité L'énergie thermique produite par le cœur doit être évacuée et les moyens mis en œuvre sont identiques à ceux des réacteurs critiques. La différence provient de la nécessité d'alimenter l'accélérateur. En écrivant les relations entre la puissance thermique du réacteur et la puissance de l'accélérateur, nous pouvons écrire une condition sur le coefficient de multiplication k_{eff} du cœur pour que le bilan énergétique net soit positif: le réacteur produit plus d'énergie que n'en consomme l'accélérateur qui l'alimente. En notant R_1 et R_2 les rendements de conversion thermique du réacteur et électrique de l'accélérateur, nous obtenons la condition [14]:

$$k_{eff} \geq \frac{1}{1 + R_1 R_2 \frac{E_f \nu_s}{E_p \nu}} \quad (2.1)$$

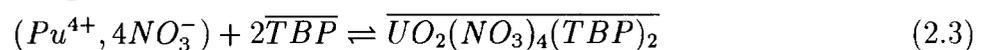
dans laquelle E_f est l'énergie libérée par fission, E_p est l'énergie des protons, ν_s le rendement de la cible de spallation, en neutrons par proton et ν le nombre moyen de neutrons émis par fission.

La valeur de "break-even" est comprise entre 0,61 et 0,72 en fonction des rendements de conversion. Notons que R_1 dépend essentiellement de la température du cœur, nous y reviendrons dans notre analyse des solutions possibles d'incinérateurs en évoquant la possibilité de fonctionner à faible température.

L'usine de retraitement Dans le cas d'un cycle de combustible avec retraitement, il est possible d'envisager deux séparations chimiques: le procédé PUREX (Plutonium and Uranium Recovery by EXtraction) actuellement utilisé à La Hague ou un procédé voisin, et la pyrométallurgie. Le procédé PUREX repose sur une opération unitaire d'extraction liquide-liquide, ce qui implique la dissolution des combustibles irradiés en solution aqueuse, permettant les séparations chimiques [55]:

- uranium + plutonium vis-à-vis des produits de fission et métaux étrangers;
- uranium / plutonium.

La dissolution des combustibles doit se faire en solution nitrique et l'extraction s'opère grâce à un solvant constitué d'une solution de phosphate tributylque (TBP) présentant une très forte affinité pour l'uranium au degré d'oxydation VI et pour le plutonium au degré d'oxydation IV. Les deux réactions principales de la première séparation chimique sont:



Elles sont fortement déplacées vers la droite si la concentration en acide nitrique est importante.

La deuxième séparation chimique est obtenue grâce aux mêmes réactions mais en ayant préalablement changé le degré d'oxydation du plutonium avec un réducteur spécifique [55].

Les rendements réalisés à La Hague pour la séparation du plutonium sont de l'ordre de 99,999% pour la phase chimique, mais cette efficacité n'est plus que de 99,88% pour l'ensemble de l'opération de retraitement à cause des insolubles lors de la dissolution des combustibles.

Indiquons finalement que de nombreuses voies de recherche sont poursuivies pour l'extraction performante des actinides mineurs, grâce au TBP ou à d'autres composés (à titre d'exemples: TRPO - mélanges d'oxydes de trialkylphosphine -, HDEHP - acide di-2-éthylhexylphosphorique

- ou DIDPA - acide di-isodecylphosphorique), toujours sur le principe d'extraction liquide-liquide : procédés DIAMEX (DIAmides EXtraction), TRUEx (TRansUranic EXtraction) ou SESAME (Séparation par EXtraction Sélective de l'Américium par Méthodes Electrochimiques), ce dernier utilisant un processus électrochimique pour changer le degré d'oxydation de l'américium avant son extraction [30, 55].

Outre ces extractions par solvant, des procédés pyrométallurgiques, basés sur des différences de potentiel d'électrolyse, pourraient offrir des perspectives intéressantes dans la mesure où les actinides forment des composés plus facilement réductibles vers l'état métallique que les lanthanides et la plupart des autres produits de fission. D'une manière générale, ils reposent sur des techniques d'extraction dans un sel fondu par électroraffinage (chlorure ou fluorure) ou entre un sel et un métal fondu.

Cette solution, défendue par Rubbia *et al.* en particulier, a plusieurs avantages [56, 57]:

- des unités compactes, en raison, à la fois, des fortes concentrations de soluté et des temps de séjour faible, pouvant s'intégrer sur le site avec le réacteur hybride et conduisant à des coûts d'investissement plus faibles que les procédés hydrométallurgiques ;
- des propriétés thermodynamiques différentes des solvants aqueux permettant la dissolution de certaines cibles ou combustibles insolubles dans l'acide nitrique, et, mais il faut le confirmer, la séparation des actinides mineurs des lanthanides (tous deux au degré d'oxydation III) ;
- des milieux peu sensibles à la radiolyse et n'imposant pas de limite à la radioactivité du soluté ou son taux d'incinération. Ces procédés pourraient donc traiter les combustibles juste à leur sortie de cœur, sans temps de refroidissement en piscine comme c'est le cas actuellement ;
- d'extraire tous les transuraniens simultanément sur une seule cathode, après la séparation de l'uranium ;
- de limiter les risques de criticité car les masses traitées à chaque cycle sont faibles et les milieux ne sont pas modérateurs.

Les inconvénients de ce procédé sont (i) la nécessité de fonctionner à haute température et dans des milieux très corrosifs en présence d'une atmosphère inerte et (ii) des taux de séparation faibles par opération unitaire [30, 57, 58]. A titre d'exemple, le procédé de pyrométallurgie de Los Alamos est fondé sur l'eutectique sel fondu NaCl-KCl et nécessite une température de fonctionnement de 700°C [59].

En opérant plusieurs phases d'extraction, Rubbia *et al.* présentent un schéma complet conduisant à un niveau de pertes (fraction de la masse d'actinides qui n'est pas récupérée) de $4 \cdot 10^{-6}$ [56]. Le projet ATW, à spectre rapide et combustible solide, prévoit des pertes pour l'ensemble des opérations à hauteur de 10^{-3} [59].

2.1.2.2 Les projets

Parmi l'ensemble des projets de réacteurs hybrides, certains sont voués à la transmutation de déchets nucléaires, d'autres envisagent la production d'énergie comme principal objectif. Nous allons évoquer rapidement certains de ces projets.

Le projet Rubbia. L'équipe du CERN a présenté en 1993 un concept de cœur sous-critique à neutrons thermiques en utilisant le cycle du thorium. Le flux est limité à 10^{14} n/cm²s pour permettre au ²³³Pa, produit par capture sur le ²³²Th, de décroître en ²³³U, isotope assurant la production d'énergie du système. La sous-criticité retenue était de $k_{eff} = 0,93$. Elle conduit à une décroissance rapide du flux entre la cible de spallation et la périphérie du cœur [60]. Il était dédié à la production d'énergie et le cycle Th-U permet de réduire la production de transuraniens donc l'inventaire radiotoxique des déchets.

Cette solution a été progressivement abandonnée au profit d'une solution à spectre rapide [47]. Le cycle du combustible demeure Th-U car l'objectif reste de produire de l'énergie, d'où son nom d'Energy Amplifier, en produisant moins de déchets toxiques. Le réacteur se présente comme une colonne de plomb 30 m de haut et de 6 m de diamètre. Ce métal fondu sert à la fois de cible de spallation et de caloporteur. Le combustible, sous forme oxyde, est placé au fond de la cuve et reste dans le cœur pendant 5 ans. La puissance de chaque unité est de 1 500 MW_{th}, soit 625 MW_é. L'accélérateur est un cyclotron produisant des protons de 1 GeV avec un courant nominal de 12,5 mA (20 mA pour l'intensité maximale). Le coefficient multiplicateur du cœur est de $k_{eff} = 0,98$.

La hauteur de plomb, 30 mètres, assure le refroidissement du cœur en partie par convection naturelle, qui, en particulier, évacue la chaleur résiduelle en cas d'arrêt du réacteur, ce qui évite les problèmes de hausse de température et d'éventuelle fonte du cœur (accident de Three Mile Island). D'autres solutions passives ont été envisagées comme l'arrêt automatique du faisceau en cas de hausse de température.

L'accueil de ce projet de réacteur hybride à vocation énergétique ne correspondait pas aux besoins exprimés par les différents interlocuteurs. L'équipe du CERN a donc été menée à étudier les possibilités d'incinération dans un tel système, sans en changer les grandes lignes [56]. Appliqué au cas précis de l'Espagne, il ressort de sa proposition que les déchets nucléaires de haute activité cumulés par ce pays en 2029, soit 73,42 tonnes de transuraniens (sur les 9628 tonnes de déchets nucléaires) peuvent être traités en 60 ans dans cinq unités d'Energy Amplifier. Deux phases découpent ce schéma : une première de 37 ans pendant laquelle des transuraniens "neufs" sont continuellement alimentés dans le cœur, une deuxième qui se poursuit jusqu'à la fin de la vie du réacteur (prise à 60 ans), correspondant à la fin du stock de transuraniens et pendant laquelle l'incinération doit se poursuivre pour détruire complètement les transuraniens dans le cœur. Les quelques modifications apportées sont des cycles de deux ans, une cible de spallation indépendante du caloporteur, un combustible métallique et une sous-criticité légèrement plus prononcée : $k_{eff} = 0,97$. Cette sous-criticité varie avec la durée d'incinération et elle est compensée par l'accélérateur, qui passe du simple au double au cours de la vie du réacteur, afin de conserver une puissance totale constante.

Les transuraniens sont chargés dans le cœur avec du thorium pour assurer le maintien de la réactivité au cours de l'incinération. Après un taux d'incinération de 120 GWj/t, le combustible est retraité et les transuraniens récupérés alimentent de nouveau le réacteur, auquel on rajoute une quantité de thorium et de transuraniens "neufs". Les courbes de chargement en fonction du cycle sont données en référence [56]. Les performances globales du système, une fois le régime asymptotique de la première phase atteint au bout d'une dizaine d'années, sont une destruction de transuraniens de 402 kg par an par unité et un chargement annuel par unité de :

- 850 kg de thorium "frais" ;
- 740 kg de transuraniens "neufs" ;

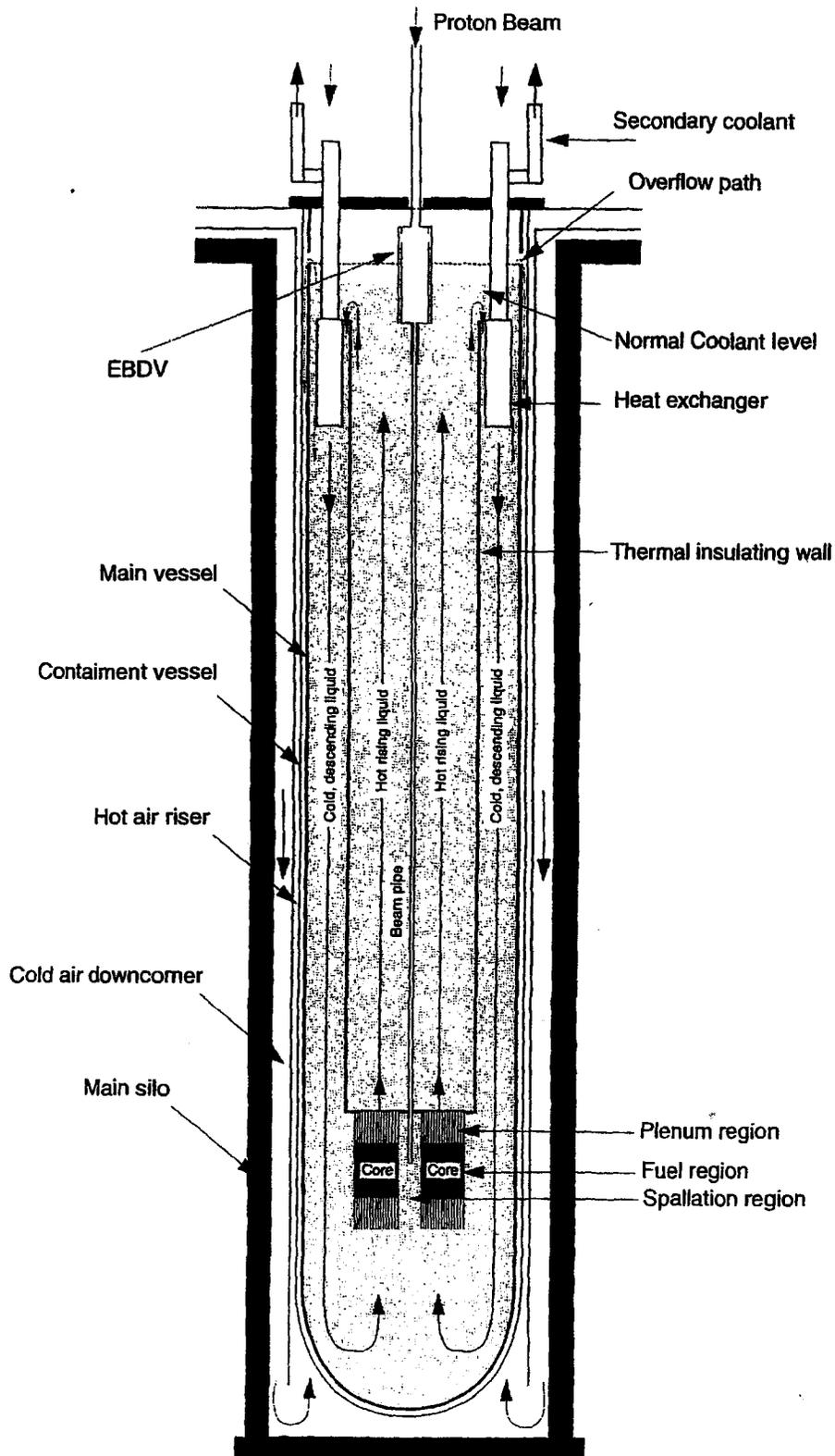


FIG. 2.2: Réacteur proposé par le CERN.

- 5,35 tonnes de thorium récupéré des cycles précédents par séparation pyrométallurgique ;
- 2,26 tonnes de transuraniens.

A noter que l'uranium produit par capture sur le thorium n'est pas réinjecté dans le système mais stocké.

Remarquons aussi que l'efficacité réelle de ce schéma n'est pas indiquée, en particulier la réduction effective de l'inventaire radiotoxique.

Les projets de Bowman. C. Bowman s'est focalisé, dès le début de ses études, sur l'incinération des déchets nucléaires issus des centrales REP actuelles et ce en spectre thermique [52, 61]. Il se fonde essentiellement sur les expériences menées à Oak Ridge sur le combustible liquide et le réacteur expérimental MSRE. Le projet a continuellement évolué depuis 1992 et nous ne présenterons que la dernière version [61].

Un réacteur hybride est installé sur chaque site de réacteur nucléaire et il sera dédié à l'incinération des déchets de ce réacteur. Après avoir envisagé des cycles avec retraitement en ligne, la solution adoptée consiste à limiter les opérations de séparation chimique (source de pertes et donc de toxicité résiduelle) : les combustibles irradiés subissent une fluorination permettant de séparer l'uranium (élément principal des combustibles irradiés) sous forme gazeuse, UF_6 , et les produits de fission gazeux. Les autres noyaux, actinides, produits de fission et matériaux de structure (principalement du zirconium) sont incorporés à un sel $NaF-ZrF_4$: le zirconium des gaines sert de sel au réacteur hybride. Ce sel, à hauteur de 300 kg par an de transuraniens et 1200 kg par an de produits de fission, alimente le réacteur hybride d'une puissance de 750 MW_{th} . Le cycle est du type "once-through", à savoir que le sel prélevé périodiquement n'est pas retraité mais stocké², soit 65 kg de transuraniens par an et 1435 kg de produits de fission. Ceci correspond à un taux d'incinération de 80%.

Le réacteur hybride en lui-même est composé de blocs de graphite transpercés de 122 canaux contenant le sel entre 600 et 700°C, avec une proportion volumique de 5% (sel/graphite). Le flux est de $2 \cdot 10^{14}$ n/cm²s, correspondant à une durée d'irradiation de 5 ans. Finalement, la sous-criticité de 0,96 est assurée par un accélérateur de protons à 1 GeV et 13,5 mA. Ces chiffres sont des estimations et doivent être vérifiées avec des calcul Monte-Carlo.

Ces unités, une par réacteur critique, permettent de réduire l'inventaire des déchets nucléaires d'un facteur 5 et traitent à la fois les transuraniens et les produits de fission, sans distinction.

Projet ATW de Los Alamos. Ce nouveau projet repose sur un concept voisin de celui de l'Energy Amplifier avec un spectre rapide et l'eutectique plomb-bismuth à la fois caloporteur et cible de spallation. Les objectifs d'ATW (Accelerator Transmutation of Waste) sont [59, 62] :

- détruire 99,9% des transuraniens ;
- transmuter 99,9% du technétium et de l'iode ;
- séparer le strontium et le césium pour un stockage optimal ;
- isoler l'uranium pour stockage en vue d'une possible réutilisation ;
- produire de l'électricité.

2. C. Bowman évoque la possibilité de construire, pour les actinides qui restent après ce premier passage en cœur, un complexe centralisé permettant de détruire complètement les déchets, en utilisant un retraitement en ligne.

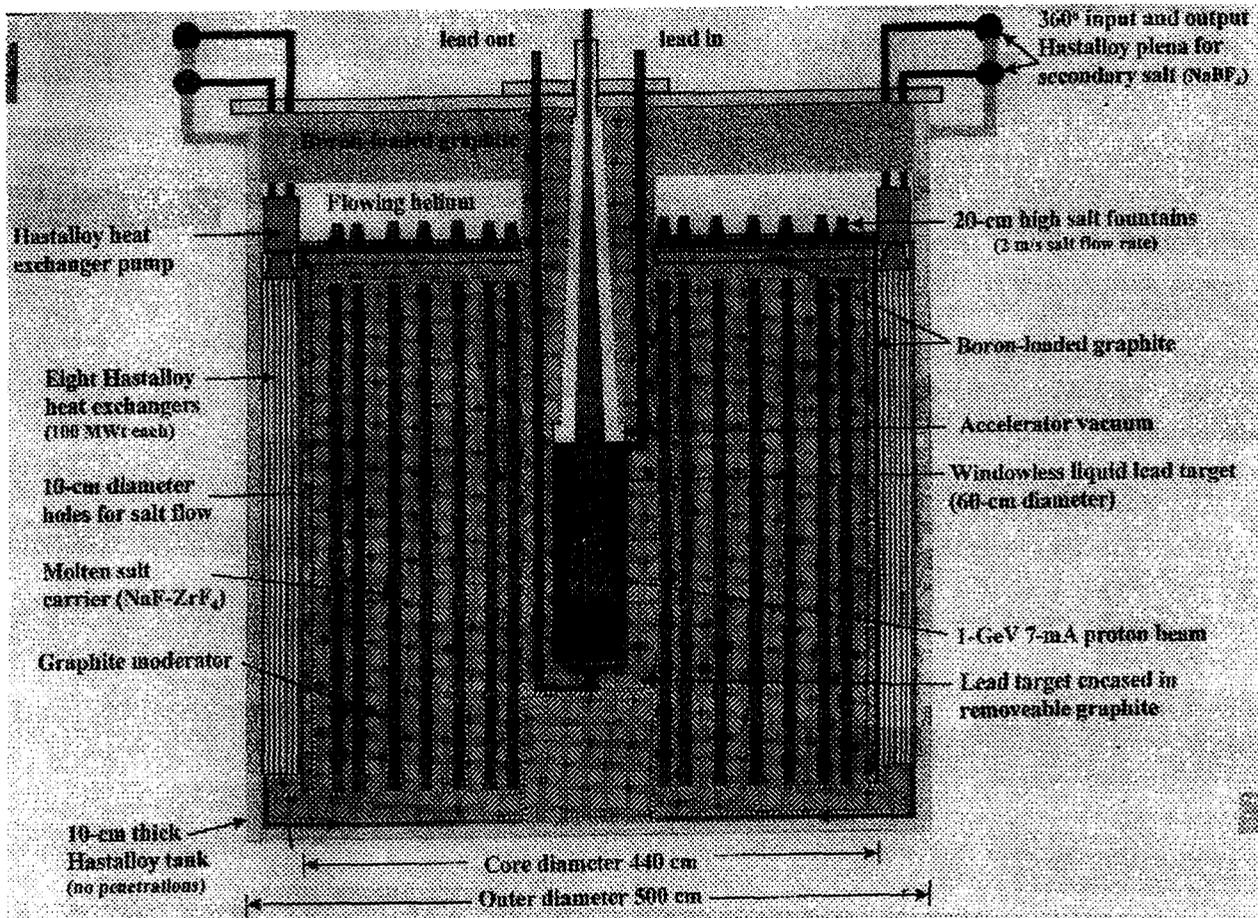


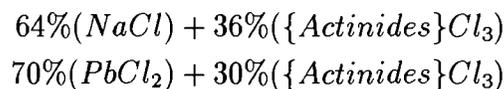
FIG. 2.3: Réacteur proposé par C. Bowman

Comme pour le projet de C. Bowman, il s'agit de la transmutation des déchets des REP. L'accélérateur est un LINAC de 40 MW, utilisant le développement de APT (Accelerator Production of Tritium), soit 1 GeV et 40 mA. Le cœur, 2 m de hauteur et 2 m de diamètre avec la cible de spallation de 60 cm de diamètre en son centre, contient un combustible métallique à base de zirconium et des produits de fission à vie longue à transmuter. Après irradiation, les combustibles irradiés sont retraités par pyrométallurgie afin de récupérer les transuraniens pour refaire du combustible.

Un scénario a été développé pour incinérer sur une période de 65 ans, les 600 tonnes de plutonium et actinides mineurs prévus en 2015 aux Etats-Unis. Il considère la mise en place de trois complexes identiques. L'unité élémentaire est un réacteur hybride de 2000 MW_{th} , d'une durée de vie de 40 ans, permettant la destruction de 650 kg de transuraniens par an. Ces unités sont mises en service progressivement : deux supplémentaires tous les deux ans (cf. figure 2.4). Au terme de la vie du réacteur, 40 ans, son cœur sert de combustible à un autre, jusqu'à l'épuisement du stock de déchets. Une incinération finale de 5 ans permet ensuite de réduire l'inventaire des déchets à moins d'une tonne. La mise en place de ce schéma dynamique permet de diminuer de façon importante la durée totale d'incinération (cf. figure 2.5) [59].

Les projets de JAERI. Deux projets ont progressivement vu le jour depuis la création du projet OMEGA de JAERI (Japanese Atomic Energy Research Institut) : un concept de réacteur à sel fondu et une image de cœur avec un combustible solide. Ils sont tous deux à spectre rapide et destinés à l'incinération des transuraniens [63, 64].

Le réacteur à sel fondu, d'une puissance de 800 MW_{th} , alimenté par un faisceau de protons de 1,5 GeV, peut s'envisager avec deux sels différents :



Ces sels, à bases de chlorures, peuvent contenir des grandes quantités d'actinides. Le second peut aussi servir de cible de spallation, mais les rendements ne sont pas aussi bons que pour les cibles métalliques. Finalement, les problèmes de corrosion et d'activation ne sont pas à négliger.

Le concept de cœur à combustible solide est basé sur la technologie des réacteurs rapides refroidis au sodium. Il utilise un combustible nitrure dense :



La puissance du réacteur est de 360 MW_{th} et l'énergie du faisceau identique au premier projet. Nous avons déjà évoqué les avantages du combustible à base de nitrure quant au spectre et au comportement thermique.

Cette liste de projets de réacteurs hybrides, pour la transmutation de déchets nucléaires ou la production d'énergie, n'est en rien exhaustive puisque des études sont menées en France (projet INCAD ou HADRON [65]), en Suède ... mais elle permet d'avoir une idée de l'état de la réflexion concernant ces nouveaux systèmes.

Munis de ces exemples, nous allons pouvoir examiner de plus près l'intérêt d'un réacteur hybride au sein du parc français pour la destruction des déchets.

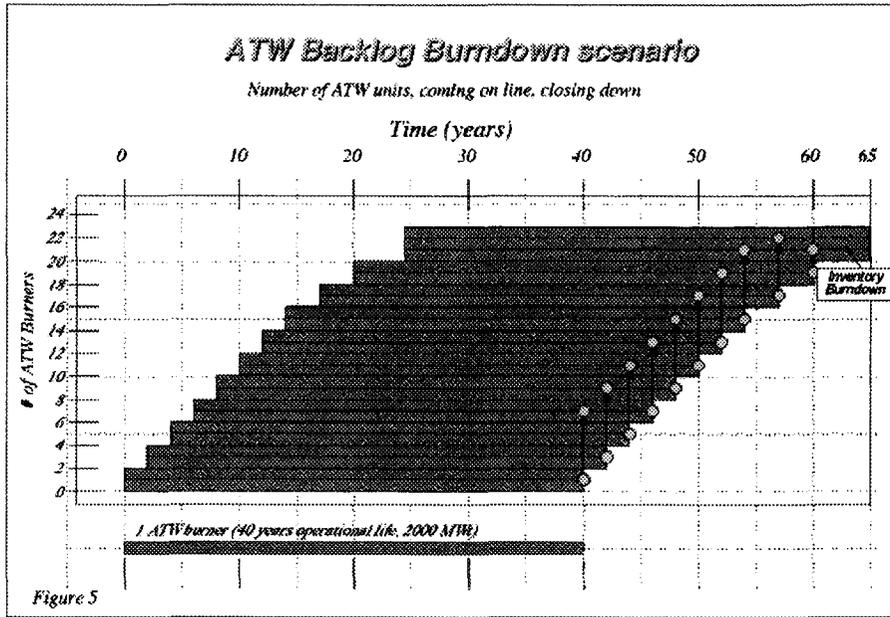


FIG. 2.4: Scénario d'incinération des déchets proposés par Los Alamos pour traiter le stock américain. Les unités sont mises progressivement en service, pour une durée de 40 ans, aux termes desquelles, le cœur est transféré vers un autre réacteur. L'incinération finale de 5 ans permet de réduire l'inventaire massique à moins d'une tonne [59].

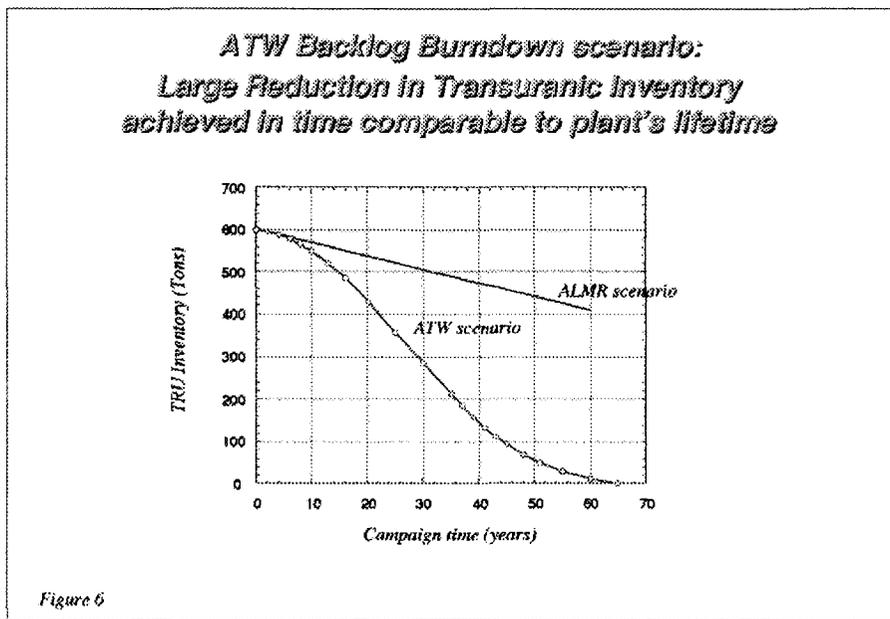


FIG. 2.5: Le scénario proposé par ATW permet de réduire l'inventaire en transuraniens plus rapidement qu'un réacteur rapide seul (ALMR - Advanced Liquid Metal Reactor). Au bout de 65 ans, en ayant construit 21 unités, le stock de déchets peut être réduit de 600 à 1 tonne [59].

2.1.3 Un parc à deux niveaux

L'élaboration d'incinérateurs dédiés permet d'envisager un parc électronucléaire à deux niveaux ou strates [66]. Le premier correspond aux réacteurs critiques de puissance, des REP, assurant la production électrique nécessaire. Le second regroupe les réacteurs hybrides spécifiques consacrés à la destruction des déchets nucléaires produits par le premier niveau. Chaque ensemble de réacteurs a un objectif précis ; leur optimisation est ainsi découplée.

L'objet du travail présenté ici est l'étude de ce deuxième niveau, et uniquement celui-ci, entièrement consacré à la destruction des déchets nucléaires. Toutes les terminologies utilisées feront donc référence implicitement à cette approche vouée aux incinérateurs. Ainsi, parler d'incinération sans recyclage signifie que les déchets nucléaires issus de la première strate, ayant subi un retraitement pour isoler les produits de fission et l'uranium de retraitement, sont irradiés en un seul passage dans les réacteurs hybrides.

Afin d'apporter une réponse que l'on souhaite la plus complète possible, nous allons envisager différents scénarios pour le premier niveau, en fonction du nombre de passages en combustible MOX et analyser leurs conséquences sur les incinérateurs.

2.2 La finalité des incinérateurs

Avant de commencer notre étude de l'incinération des déchets nucléaires dans des réacteurs hybrides, il est utile de bien cerner les objectifs à atteindre et les hypothèses de travail.

2.2.1 L'incinération des déchets

La réduction de la nocivité des déchets peut s'interpréter de manières très diverses suivant le critère retenu : volume, masse, inventaire radiotoxique, retour à la biosphère à partir d'un stockage géologique ... Afin de quantifier les gains susceptibles d'être réalisés par l'incinération des déchets nucléaires, nous avons opté pour l'inventaire radiotoxique qui permet de tenir compte des effets sur l'homme sans faire d'hypothèses sur d'éventuelles barrières de stockage limitant la diffusion des déchets vers le milieu environnant. Nous mettrons en relation les inventaires radiotoxiques après incinération avec ceux des scénarios de référence et de l'uranium naturel initial utilisé par le premier niveau du parc.

Parmi les déchets nucléaires, nous nous concentrerons sur les actinides transuraniens produits par le parc de réacteurs de puissance, sans séparation isotopique. Nous tiendrons compte de l'inventaire radiotoxique des produits de fission à vie longue issus des réacteurs de puissance et des incinérateurs, mais nous omettrons la radiotoxicité de l'uranium appauvri et celle de l'uranium de retraitement³. La référence pour l'inventaire radiotoxique sera le niveau de l'uranium naturel de départ.

A partir d'un certain nombre de scénarios de référence, nous étudierons les possibilités de réduire cet inventaire radiotoxique en s'intéressant à la transmutation des actinides et de certains PFVL, principalement l'¹²⁹I, le ⁹⁹Tc et le ¹³⁵Cs car les simulations indiquent que ces

3. Ceci introduit un "décalage" de la radiotoxicité car le niveau de toxicité de l'uranium appauvri et de retraitement est du même ordre de grandeur que celui de l'uranium naturel nécessaire au parc. En effet, la source de la radiotoxicité de l'uranium naturel provient de la mise à l'équilibre de la famille de l'²³⁸U et la masse de cet isotope n'est que très faiblement réduite par l'irradiation en cœur : 70 tonnes sont transmutes sur les 8 100 tonnes initiales. Limiter la toxicité des déchets au niveau de l'uranium naturel demandera donc de s'attaquer au problème de l'uranium actuellement entreposé.

isotopes sont responsables de l'essentiel de la radiotoxicité qui retourne à la biosphère [19]. Il s'agit de concevoir des réacteur hybrides sans support fertile afin d'éviter la production de transuraniens supplémentaires alors que l'on cherche à les détruire. Ils doivent assurer la fission des déchets, c'est-à-dire la production d'une puissance donnée, fonction du scénario du premier niveau. Certaines contraintes de ces incinérateurs ne sont pas du même type que celles des réacteurs de puissance. Nous reviendrons sur les caractéristiques techniques principales qui nous seront utiles pour les dimensionner, mais notons quelques aspects essentiels :

- le support est inerte. Le taux de combustion et le taux d'incinération sont donc équivalents ;
- la production d'énergie n'est pas un objectif prioritaire. L'auto-suffisance énergétique apparaît alors comme une limite naturelle, à savoir que l'énergie thermique produite par fission, convertie en électricité par des alternateurs, doit suffire au fonctionnement de l'accélérateur et des différentes pompes, vannes, etc., du réacteur. Ceci peut se traduire par une température de fonctionnement plus faible (diminuant le rendement de Carnot) ;
- un nombre limité d'unités doivent être mise en œuvre.

Une dernière contrainte, plus difficilement quantifiable à ce stade de l'étude, est de limiter les déchets nucléaires résultant de cette transmutation (gainés, matériaux de structure irradiés) afin d'assurer un bilan largement positif pour l'ensemble de l'industrie nucléaire.

2.2.2 Les scénarios de production de déchets

Pour quantifier l'étude de l'incinération des déchets nucléaires, il faut travailler sur des compositions isotopiques clairement établies. Nous devons définir un certain nombre de scénarios pour le parc électronucléaire, tirés des études menées à la Direction des Réacteurs Nucléaires du CEA [67, 68, 69]. Nous allons les énumérer en indiquant à chaque fois les déchets dus à un an de fonctionnement du parc et les pertes liées au retraitement nécessaire à la fabrication des éventuels combustibles mixtes. Précisons que le parc de réacteurs critiques est supposé de puissance constante, 60 GWé, quel que soit le scénario, et qu'il délivre 400 TWhé par an. Nous reviendrons plus loin sur cette hypothèse pour évoquer les autres configurations possibles (cf. page 55).

Nous dénommons par déchets l'ensemble des transuraniens, plutonium compris, qui sont produits par les réacteurs de puissance et qui n'y sont pas recyclés. Cette définition fait abstraction de toute notion de combustible qui pourrait être associé à ces matériaux, le plutonium par exemple.

Les pertes en transuraniens dues au retraitement seront calculées en utilisant les rendements actuels de l'extraction liquide-liquide à La Hague en extrapolant le niveau de pertes qui prévaut pour le plutonium, 10^{-3} , aux autres éléments [70, 71]. Remarquons que l'efficacité de la séparation chimique est de l'ordre de 10^5 mais la dissolution dans l'acide nitrique du combustible solide n'est pas totale car elle s'accompagne d'insolubles contenant des actinides, d'où les pertes effectives de 10^{-3} .

2.2.2.1 Le cycle ouvert

Dans ce schéma, les réacteurs du parc (réacteurs à eau pressurisée – REP) sont de type N4 chargés uniquement en uranium enrichi à 4,5% avec une taux de combustion de 55 GWj/t.. La durée d'irradiation étant de 5,3 ans, celle du cycle complet fabrication-irradiation-refroidissement

est de 12,3 ans. L'alimentation du parc nécessite annuellement 8100 tonnes d'uranium naturel (U_{nat}) conduisant aux déchets indiqués dans le tableau 2.2 (cf. figure 2.6). Nous avons représenté dans cette figure et les suivantes uniquement les flux de déchets⁴.

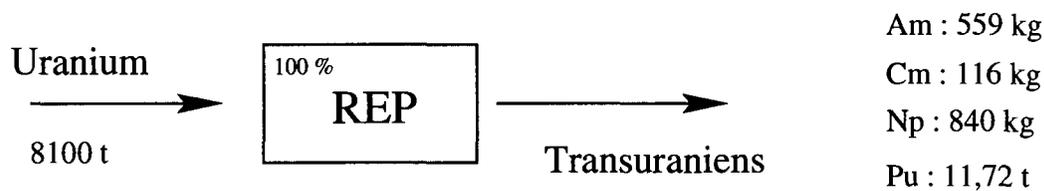


FIG. 2.6: Bilan annuel des déchets du cycle ouvert. Le parc est constitué à 100 % de réacteurs à eau pressurisée chargés en combustible oxyde UOX. Les masses de déchets en transuraniens sont indiquées par élément.

Isotope	kg/TWhé	tonnes
^{237}Np	2,10	0,84
^{241}Am	0,76	0,304
^{242m}Am	0,01	0,004
^{243}Am	0,63	0,251
^{244}Cm	0,27	0,108
^{245}Cm	0,02	0,008
^{238}Pu	1,19	0,476
^{239}Pu	14,95	5,980
^{240}Pu	6,82	2,728
^{241}Pu	3,65	1,460
^{242}Pu	2,69	1,076
Total	33,09	13,24

TAB. 2.2: Composition isotopique des déchets pour un parc en cycle ouvert.

Les pertes dues au retraitement, en prenant des facteurs d'extraction de 10^{-3} pour tous les éléments, sont de l'ordre de 13,2 kg par an.

La radiotoxicité (cf. figure 2.7) est principalement due au plutonium ($\sim 90\%$). Ce plutonium, contenant du ^{239}Pu fissile à hauteur de $\approx 51\%$, peut servir de source d'énergie, ce qui permettrait d'améliorer l'utilisation de l'uranium initial et aussi d'espérer une baisse de la radiotoxicité. La contribution du ^{237}Np est négligeable avant le million d'années et ne constitue un risque que dans un scénario d'enfouissement (cf. section 1.3.2).

L'inventaire radiotoxique de l'uranium combustible (8100 t) est de $2,5 \cdot 10^8$ Sv (cf. figure 2.7). Le temps nécessaire aux déchets transuraniens pour rejoindre ce niveau est de 150 000 ans.

4. La masse initiale d'uranium naturel n'est évidemment pas conservée dans ce schéma, car il faudrait tenir compte des produits de fission, de l'uranium appauvri et de l'uranium de retraitement, retraitement nécessaire si l'on souhaite isoler les transuraniens en vue de leur destruction.

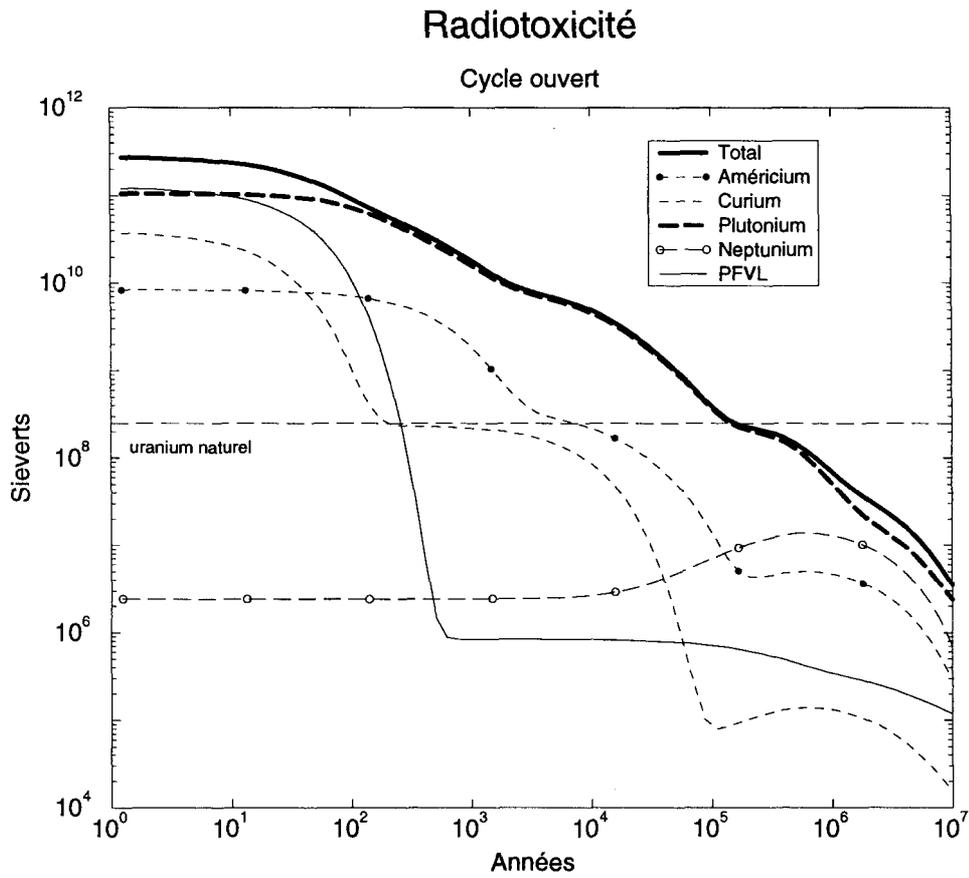


FIG. 2.7: Radiotoxicité des déchets du parc dans le cas du cycle ouvert. L'élément dominant de la radiotoxicité est le plutonium, d'où l'intérêt de son multirecyclage car il peut aussi servir de source d'énergie.

Isotope	kg/TWhé	tonnes
²³⁷ Np	1,88	0,752
²⁴¹ Am	1,62	0,648
^{242m} Am	0,01	0,004
²⁴³ Am	1,25	0,5
²⁴³ Cm	0,01	0,004
²⁴⁴ Cm	0,55	0,22
²⁴⁵ Cm	0,08	0,032
²³⁸ Pu	1,05	0,42
²³⁹ Pu	6,60	2,64
²⁴⁰ Pu	5,24	2,096
²⁴¹ Pu	2,54	1,016
²⁴² Pu	2,68	1,072
Total	23,51	9,404

TAB. 2.3: Composition isotopique des déchets pour un parc comprenant 1 passage MOX

2.2.2.2 Scénario MOX1

Le plutonium produit par le cycle ouvert peut être considéré comme une source d'énergie et servir à la fabrication de combustible mixte (MOX) pour les réacteurs à eau pressurisée (cf. figure 2.8). Les besoins en uranium naturel sont diminués d'autant et passent de 8100 tonnes à 7150 tonnes pour maintenir une puissance totale de 60 GWé. Les déchets qui en découlent proviennent à fois du combustible UOX et du combustible MOX et sont précisés dans le tableau 2.3.

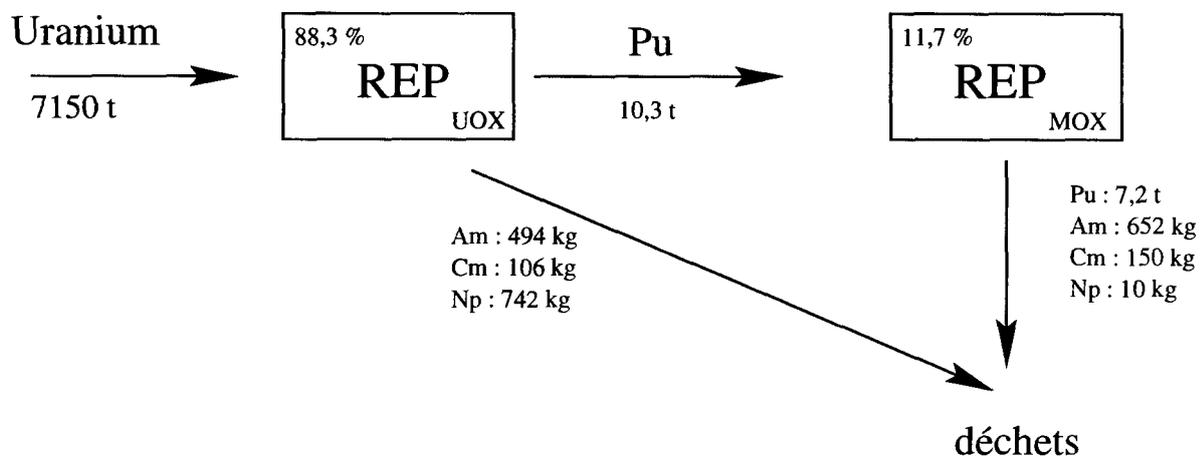


FIG. 2.8: Bilan annuel des déchets du scénario MOX1. La consommation annuelle en uranium naturel est plus faible que dans le scénario de cycle ouvert suite à une meilleure utilisation de l'uranium par l'intermédiaire du combustible mixte MOX contribuant à hauteur de 11,7% à l'énergie produite.

La radiotoxicité des actinides est due principalement au plutonium, mais on constate une importance croissante de l'américium, alors que le neptunium est moins présent (cf. figure 2.9).

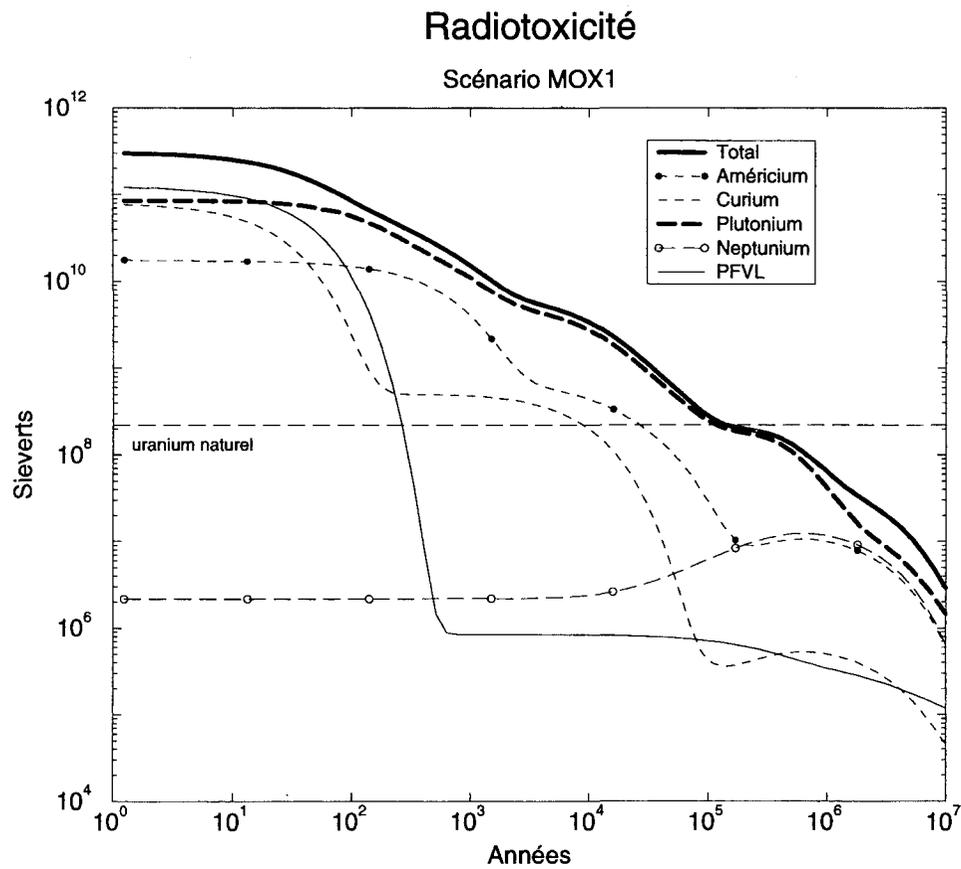


FIG. 2.9: Inventaire radiotoxique des actinides issus du scénario MOX1. Le plutonium reste la source principale de la radiotoxicité même si on constate une augmentation de l'américium.

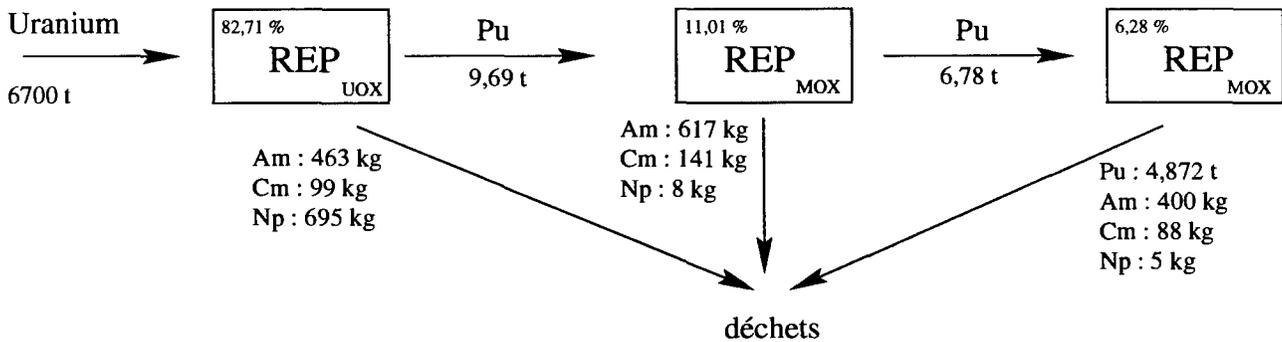


FIG. 2.10: Bilan annuel des déchets du scénario MOX2.

Le recyclage sous forme MOX entraîne une formation plus importante d'américium et de curium et une destruction du plutonium. Par ailleurs, la masse totale de neptunium, provenant essentiellement du combustible UOX, est plus faible car la part énergétique de ce dernier est plus faible que pour le cycle ouvert (88,3% au lieu de 100%).

Les pertes ont deux origines correspondant aux séparations effectuées :

- le retraitement du combustible UOX pour en extraire le plutonium et les actinides mineurs ;
- la séparation des transuraniens du combustible MOX,

et elles s'élèvent à 19,7 kg. Il s'agit principalement de plutonium (88,8 %).

Par ailleurs, ce plutonium recyclé permet une meilleure utilisation du combustible de départ. Puisque nous considérons un parc de réacteurs critiques de puissance constante, les besoins en U_{nat} baissent à 7150 tonnes correspondant à un inventaire radiotoxique de $2,2 \cdot 10^8$ Sv. Le temps de retour à cette limite est de l'ordre de 140 000 ans.

Le principal avantage de ce scénario est la réduction de la masse des déchets (-29 %).

2.2.2.3 Scénario MOX2

En poursuivant dans la même direction, il est possible d'envisager un deuxième passage en combustible MOX pour le plutonium restant (cf figure 2.10), même si la réduction en plutonium est un peu moins importante lors de ce deuxième passage (32 % par rapport à 38 % pour le premier passage). La contrepartie est l'accumulation d'importantes quantités d'américium (cf. tableau 2.4).

Le phénomène constaté lors du scénario MOX1 est amplifié : l'américium contribue de manière accrue à l'inventaire radiotoxique (≈ 45 % après 500 jours de décroissance). Le neptunium diminue, mais faiblement : -16% par rapport au cycle ouvert.

Les pertes s'élèvent à 23,9 kg, toujours majoritairement du plutonium.

La radiotoxicité de l'uranium de départ est $2,07 \cdot 10^8$ Sv, correspondant à 6 700 tonnes, et il faut environ 90 000 ans pour passer sous ce seuil.

2.2.2.4 Le Multirecyclage MOX

En poussant un cran plus loin le recyclage en réacteurs de puissance, nous pouvons envisager le multirecyclage MOX. Il s'agit d'un recyclage en réacteur REP type N4 de rapport de

Isotope	kg/TWhé	tonnes
²³⁷ Np	1,77	0,708
²⁴¹ Am	2,02	0,808
^{242m} Am	0,02	0,008
²⁴³ Am	1,66	0,664
²⁴³ Cm	0,01	0,004
²⁴⁴ Cm	0,70	0,28
²⁴⁵ Cm	0,11	0,044
²³⁸ Pu	0,70	0,28
²³⁹ Pu	4,81	1,924
²⁴⁰ Pu	3,30	1,32
²⁴¹ Pu	1,61	0,644
²⁴² Pu	1,76	0,704
Total	18,47	7,388

TAB. 2.4: Composition isotopique des déchets pour un parc comprenant deux passages MOX.

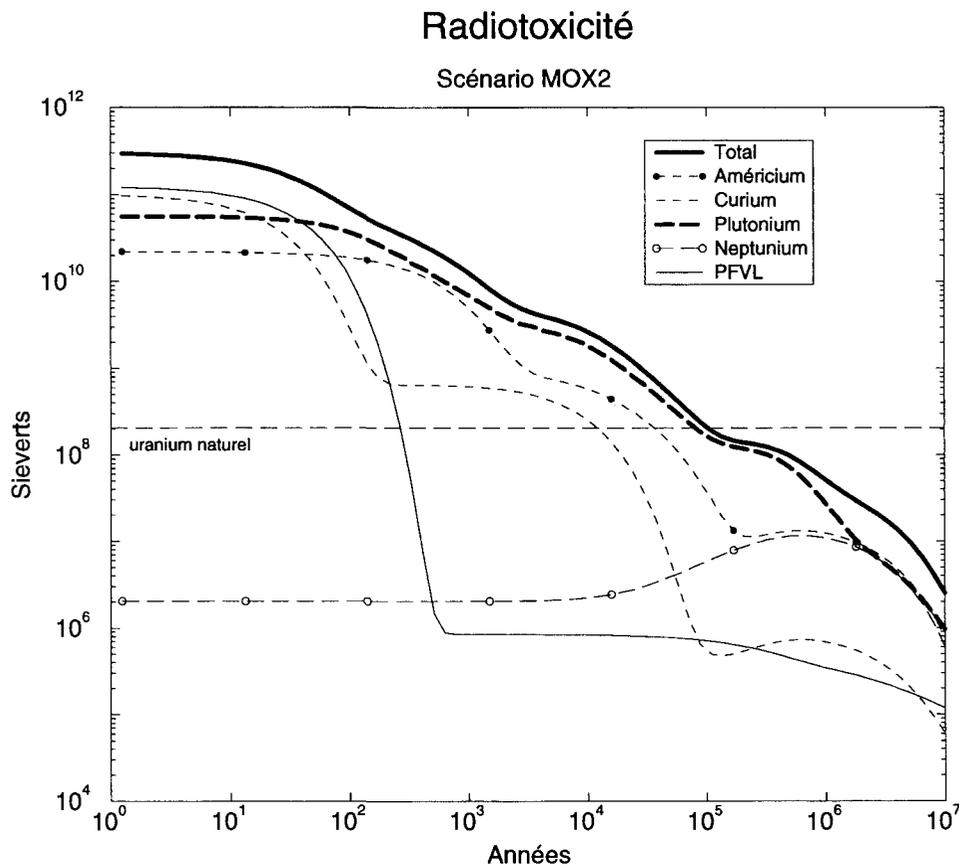


FIG. 2.11: Inventaire radiotoxique des déchets issus du scénario MOX2. La contribution de l'américium est de plus en plus significative.

modération 2 utilisant un combustible MOX avec un support à uranium appauvri avec mise à l'équilibre du vecteur isotopique du plutonium [69]. Cet équilibre se traduit par une teneur en plutonium de 21% dans le combustible initial, 22% des réacteurs REP fonctionnant avec du combustible MOX. Le cycle correspond à 2 ans de vieillissement, 5,3 ans d'irradiation et 5 ans de refroidissement. La masse de plutonium en circulation en régime d'équilibre est alors de 550 tonnes (cf. figure 2.12). Des configurations ayant moins de plutonium en circulation à l'équilibre existent [69], mais ce cas de référence permet de déterminer les lignes directrices du comportement des déchets radioactifs lors de la transmutation.

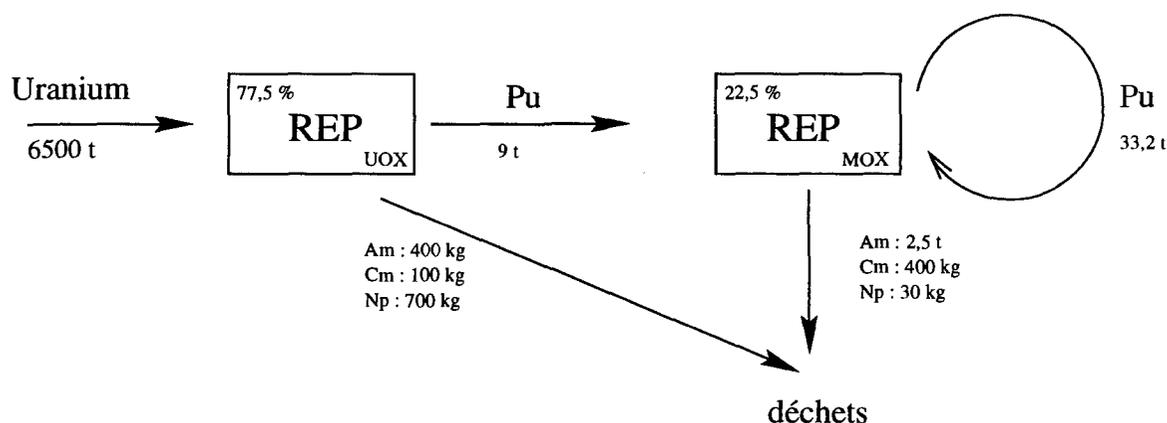


FIG. 2.12: Bilan annuel des déchets du scénario de multirecyclage MOX [69].

Isotope	kg/TWhé	tonnes
²³⁷ Np	1,825	0,73
²⁴¹ Am	4,4	1,76
^{242m} Am	0,05	0,02
²⁴³ Am	2,8	1,12
²⁴³ Cm	0,01	0,004
²⁴⁴ Cm	1,05	0,42
²⁴⁵ Cm	0,18	0,072
²⁴⁶ Cm	$7,5 \cdot 10^{-3}$	0,003
²⁴⁷ Cm	$1,25 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$
Total	10,32	4,13

TAB. 2.5: Déchets du multirecyclage MOX pour un an de fonctionnement du parc.

Le vecteur isotopique à l'équilibre du plutonium est donné table 2.6 et les déchets correspondants table 2.5.

Ces déchets conduisent à une radiotoxicité (cf. figure 2.13) légèrement plus faible après les cent premières années. Mais il apparaît une inversion entre le plutonium et l'américium. Le plutonium n'est présent que par les pertes de retraitement, à hauteur de quelques 10^8 Sv, et l'américium domine, avec le curium au début.

Les pertes de retraitement s'élèvent à 46,2 kg, dont 91 % de plutonium. La radiotoxicité de la contribution du plutonium est représentée figure 2.13.

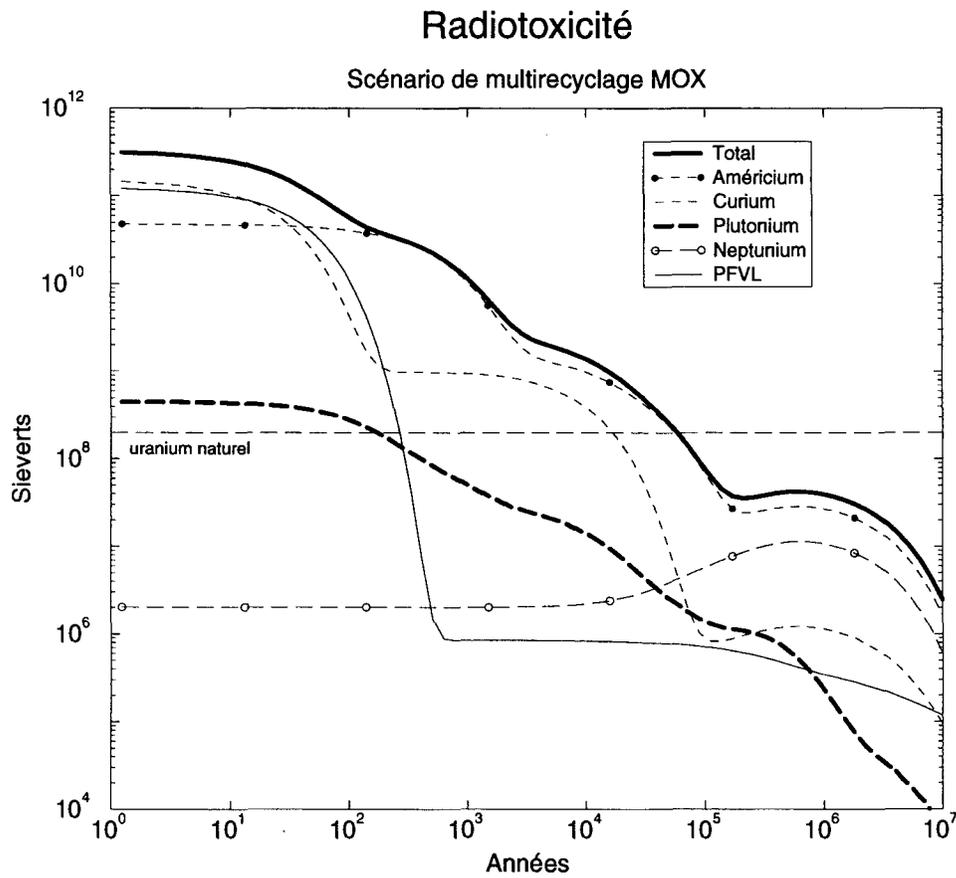


FIG. 2.13: Radiotoxicité des déchets du parc dans le cas du multirecyclage MOX. L'américium domine l'inventaire au-delà de quelques centaines d'années, après la décroissance du ^{244}Cm , et le plutonium n'apparaît que par les pertes de retraitement et se situe au voisinage de l'uranium naturel initial.

Isotope	pourcentage
^{238}Pu	6 %
^{239}Pu	29 %
^{240}Pu	30 %
^{241}Pu	10 %
^{242}Pu	25%

TAB. 2.6: Vecteur isotopique du plutonium à l'équilibre

L'alimentation en uranium naturel correspond à un inventaire radiotoxique de $2,0 \cdot 10^8$ Sv. Il faut 55 000 ans pour que la radiotoxicité soit inférieure à cette limite. Le gain important (facteur 2) sur ce temps de retour à l'uranium naturel provient de la transmutation du ^{239}Pu en isotopes d'américium dont la durée de vie est plus courte : 24 110 ans pour le ^{239}Pu et 7 340 ans pour l' ^{243}Am , éléments dominant la radiotoxicité.

Isotope	Cycle ouvert	MOX1	MOX2	multirecyclage MOX
^{239}Pu	5,98	2,69	1,924	0
^{241}Pu	1,46	1,016	0,644	0
^{245}Cm	0,02	0,032	0,044	0,072

TAB. 2.7: Evolution de la masse des isotopes fissiles contenus dans les déchets. Le plutonium disparaît progressivement au profit des isotopes plus lourds dont le ^{245}Cm .

Ce scénario se distingue des précédents par l'absence totale de plutonium dans les produits à détruire. L'évolution des isotopes fissiles d'un scénario à l'autre est indiqués tableau 2.7. Citons par ailleurs que des teneurs si importantes de plutonium dans les REP posent des problèmes de sûreté, principalement à cause du coefficient de vidange très dégradé. Mais il peut tout de même servir de référence pour évaluer les caractéristiques du parc d'incinérateur.

Revenons maintenant à l'hypothèse sous-jacente dans l'ensemble des scénarios considérés : un parc de réacteurs critiques de puissance constante. Il aurait été envisageable de considérer que c'est l'ensemble des réacteurs nucléaires, critiques et hybrides, qui doivent produire une quantité fixe d'énergie pour que l'énergie disponible sur le réseau électrique soit toujours la même. Examinons de plus près cette dernière hypothèse et considérons des scénarios différents. Puisque les masses de déchets ne sont pas identiques, la puissance thermique totale dissipée par les réacteurs hybrides va dépendre du scénario retenu mais aussi du taux d'incinération réalisé et du coefficient de multiplication k_{eff} . Corréler la puissance du premier niveau à l'efficacité de transmutation du second niveau ne me semble pas permettre d'analyser de manière adéquate la physique et l'intérêt des réacteurs hybrides. La déconvolution des différents paramètres n'en serait que plus délicate. Il nous semble plus fructueux de faire une étude pour un premier niveau de puissance constante afin de bien comprendre la transmutation des déchets dans des réacteurs hybrides et, au besoin, de "renormaliser" *in fine* les solutions obtenues⁵.

5. Cette procédure s'avèrera plus complexe qu'une élémentaire règle de trois à cause de la dépendance spatiale des caractéristiques du cœur d'un réacteur hybride. A titre d'exemple, un flux annuel plus faible de déchets pour un même nombre de réacteurs hybrides conduira à des volumes de cœur et des concentrations d'actinides différents dont il faudra tenir compte lors de l'optimisation.

2.2.3 Comparaison des inventaires radiotoxiques

Les scénarios présentés ci-dessus conduisent à des inventaires radiotoxiques différents pour les siècles à venir. Les rapports de ces inventaires à celui du cycle ouvert sont donnés figure 2.14 avec, en référence, le niveau de l'uranium naturel initial du cycle ouvert.

Cette figure montre le gain en inventaire radiotoxique de chaque scénario envisagé en indiquant le rapport de cet inventaire à celui du cycle ouvert. Par la suite, nous utiliserons ce type de représentation pour évaluer les gains des différents schémas d'incinération.

Nous remarquons :

- l'inventaire radiotoxique entre 1 et 10 ans est plus important pour les scénarios avec recyclage, principalement à cause de la proportion croissante de ^{244}Cm qui n'est pas compensée par la diminution de la quantité de plutonium⁶ ;
- entre 10^2 et 10^5 ans, la réduction de la masse de plutonium conduit à des gains importants ;
- la forte concentration en ^{241}Am dans le scénario de multirecyclage MOX explique le "plafonnement" du gain vers 400 ans.

La réduction de l'inventaire radiotoxique atteint au plus un facteur 4 avant que le niveau de l'uranium naturel initial soit atteint, pour le multirecyclage, et au plus un facteur 2 pour les autres scénarios.

Les pertes de retraitement ne contribuent que très faiblement à cet inventaire et se situent, pour des temps supérieurs à quelques centaines d'années, en-dessous du niveau de l'uranium naturel de départ. Elles peuvent tout de même constituer une seconde référence au même titre que l'uranium naturel de départ pour les gains à réaliser sur la radiotoxicité.

2.3 L'espace des solutions

Les réacteurs hybrides concevables pour l'incinération des déchets nucléaires couvrent un très large spectre de possibilités, du cœur à sel fondu au cœur classique à combustible solide sous forme d'assemblages ou d'aiguilles, des neutrons rapides aux neutrons thermiques, etc. Pour chaque dessin de réacteur, les paramètres technologiques comme la puissance volumique, les dommages aux matériaux, seront très différents et correspondront à des solutions techniques distinctes en fonction de l'importance attachée à telle ou telle grandeur. Afin d'explorer correctement l'ensemble de cet espace, il faut procéder à une démarche cohérente que nous allons exposer.

2.3.1 Approche globale

Il est possible de concevoir deux approches différentes pour caractériser un parc de réacteurs hybrides destinés à la transmutation des déchets nucléaires.

La première de ces voies, calquée sur la démarche d'optimisation des réacteurs critiques existants, consiste à imaginer un système sous-critique ayant des caractéristiques physiques (géométrie du cœur, concentrations, etc.) proches de celles des réacteurs en opération. Une fois

6. L'impact de la diminution de plutonium est perceptible dans le scénario MOX 2 pour lequel l'inventaire radiotoxique à 1 ans est plus faible que celui du scénario MOX 1. La proportion de ^{244}Cm ne devient suffisamment importante pour compenser cette diminution qu'avec le scénario de multirecyclage MOX.

Comparaison des scénarios

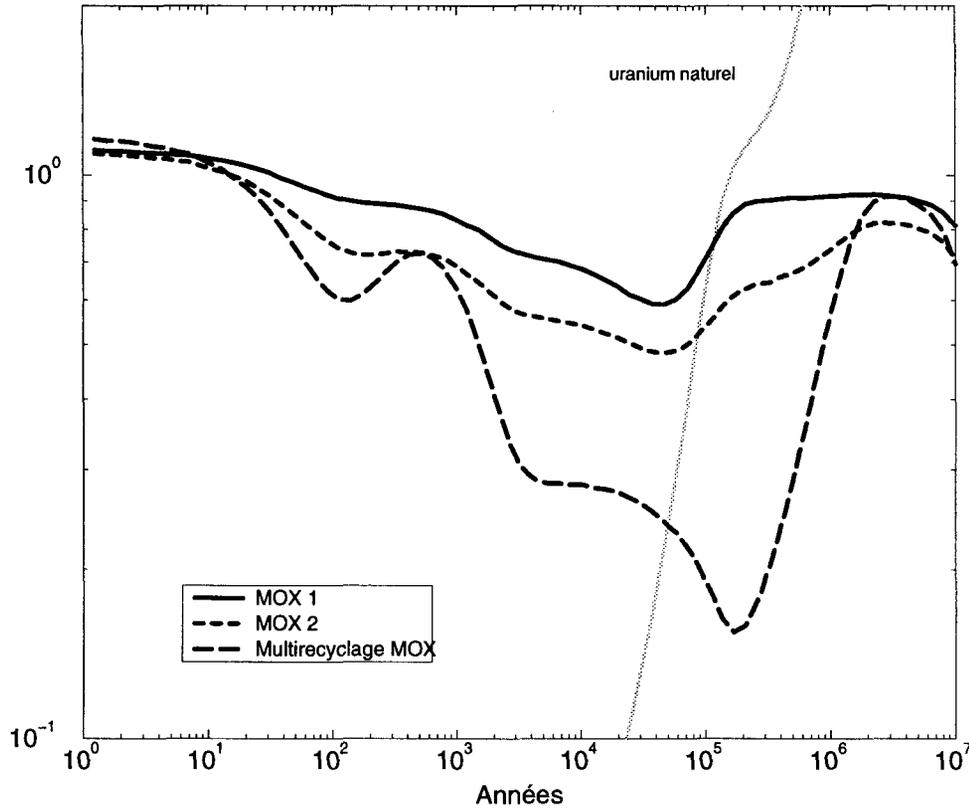


FIG. 2.14: Rapport des inventaires radiotoxiques du scénario MOX1, MOX2 ou multirecyclage, et de l'inventaire du cycle ouvert. L'utilisation du plutonium sous forme de combustible MOX permet de réduire l'inventaire mais les gains restent faibles, au plus un facteur 2 dans le cas du scénario MOX 2. Le multirecyclage quant à lui permet d'éliminer la contribution du plutonium, d'où le pic d' ^{241}Am autour de 400 ans, et les gains sont plus importants. La courbe de l'uranium naturel est croissante car l'inventaire du cycle ouvert décroît au cours du temps.

ces caractéristiques fixées, il est possible de calculer différents cœurs en fonction du chargement en actinides. Une fois optimisé un type de cœur particulier, il convient de faire des “remontages de scénario”, c’est-à-dire de dimensionner le parc de réacteurs hybrides en fonction de l’objectif initial qui nous est donné, à savoir la destruction des déchets nucléaires. Il faut bien voir que les hypothèses derrière cette démarche sont contraignantes puisque concevoir *a priori* une géométrie et des contraintes de puissance (essentiellement la puissance volumique) impose une concentration donnée d’actinides dans le cœur, donc une certaine auto-protection des sections efficaces⁷, etc. Il est possible de laisser de côté un certain nombre de possibilités qui ne correspondent pas à ces hypothèses, comme les combustibles liquides très dilués pour lesquels les sections efficaces moyennes peuvent être très différentes des sections efficaces pour les combustibles solides. En effet, rien n’indique que l’optimum en terme d’incinération de déchets corresponde nécessairement à une puissance volumique maximale obtenue en concentrant les actinides.

Cette première approche repose sur une correspondance entre la production d’électricité (les réacteurs critiques) et l’incinération des déchets (les réacteurs hybrides pour lesquels les contraintes et objectifs sont différents), qui peut *a posteriori* se justifier et qui suppose une très grande expertise dans tous les domaines du nucléaire : neutronique, mais aussi toutes les disciplines connexes essentielles pour l’optimisation de tout le parc d’hybrides et non d’un unique réacteur isolé. Un certain nombre d’études ont été menées en suivant cette démarche [47, 48, 65, 66]. Elles se fondent toutes sur des schémas tirés des réacteurs critiques existants.

La deuxième voie possible pour explorer cet espace de solutions, voie que nous avons retenue dans cette étude, consiste à partir de l’objectif principal du parc de réacteurs hybrides, la réduction de l’inventaire radiotoxique, qui peut, sous certaines conditions, être traduite par une contrainte sur la puissance thermique globale de ce parc d’hybrides (voir section 2.2). Il s’agit de considérer un milieu support dans lequel les neutrons vont évoluer. Ce milieu peut être de nature diverse (plomb liquide, eau lourde, graphite ou sel fondu) pourvu qu’il conduise à un certain type de spectre de neutrons. Dans le cas du graphite, nous obtiendrons un spectre très thermalisé⁸, dans le cas du plomb un spectre très dur. Pour l’étude que nous souhaitons mener, nous avons retenu deux spectres, un spectre thermique et un spectre rapide. Ils sont détaillés à

7. Avant de décrire le phénomène d’auto-protection, il nous faut faire un *a parte* sur les sections efficaces en physique des réacteurs. Par définition, une section efficace est une propriété intrinsèque du noyau, indépendante de son état physico-chimique. Il s’agit d’une probabilité de réaction entre deux particules. Si on considère maintenant un barreau d’actinides, le flux neutronique va varier d’un point à l’autre : les captures progressives de neutrons vont conduire à une chute du flux au centre du barreau et à un changement du spectre en énergie des neutrons. Il est possible de tenir compte de tous ces effets locaux sur le flux et le spectre neutronique grâce à un Monte-Carlo par exemple. Mais, avec une approche déterministe (résolution des équations de diffusion ou de transport), cela n’est plus possible directement : il faut faire une moyenne et le découpage en énergie du spectre se fait suivant plusieurs “groupes”. La solution adoptée en physique des réacteurs consiste à évaluer le changement de spectre provoqué par le contenu et la géométrie du barreau, et de calculer une section efficace, toujours multigroupe et pour un flux constant dans le barreau, afin de conserver le taux de réaction donc de reproduire correctement le taux de fission, la puissance dissipée, etc. Les sections efficaces ne sont plus des grandeurs physiques fondamentales, mais des paramètres ajustables. Ayant dit cela, l’auto-protection des sections efficaces vient du changement du spectre en énergie des neutrons : une probabilité de capture importante à une énergie conduira à la disparition de ces neutrons très près du bord du barreau. Les noyaux au centre de celui-ci verront un spectre très différent. La moyenne des sections efficaces est alors beaucoup plus faible que le spectre aux bords du barreau ne laissait penser.

8. Dans le cas d’un spectre thermique, il est plus réaliste de prendre un milieu composé de graphite et d’un noyau fissile très dilué (ex : ^{239}Pu) afin de reproduire la partie rapide du spectre due aux neutrons de fissions.

la fin de cette présentation de l'approche suivie.

Avec les sections efficaces moyennes obtenues grâce à ces spectres, il est possible de faire une étude de l'incinération des déchets en fonction de paramètres comme le flux intégré, le taux d'incinération, le bilan neutronique ou le temps d'incinération. Munis de ces résultats et en utilisant les trois modèles décrits au chapitre 3, nous pouvons caractériser entièrement un nombre réduit de parcs de réacteurs hybrides nécessaires pour l'incinération des déchets, suivant le scénario retenu (cf. section 2.2.2), à savoir :

- le nombre d'unités ;
- le courant de protons par unité ;
- la taille des cœurs ;
- le k_{eff} de chaque installation ;
- les paramètres de puissance ;
- les besoins de retraitement ;
- l'efficacité de l'incinération.

En effet, les paramètres globaux décrivant un ensemble de réacteurs hybrides recouvrent des domaines techniques et sociologiques qui ne sont pas quantitativement comparables. Comment mettre en rapport les gains en terme de sûreté (par un coefficient de multiplication plus faible par exemple) et une efficacité d'incinération plus faible (conduisant à des volumes de déchets stockés plus importants) ? Cela suppose des choix "stratégiques" et non scientifiques pour trancher entre plusieurs configurations possibles. Ce travail consiste justement à proposer plusieurs solutions correspondant à des attentes différentes en terme de sûreté nucléaire, de risque chimique, de résidus à stocker, etc.

Les solutions obtenues par cette démarche ne sont bien évidemment que des ébauches : il faut les considérer comme des domaines au sein de l'espace multidimensionnel des paramètres dans lesquels se trouve une solution possible au problème des déchets correspondant aux contraintes retenues. Il faut rechercher une solution optimisée au voisinage de cette ébauche, en partie en vérifiant la cohérence entre l'hypothèse de spectre (et de sections efficaces moyennes qui en découlent) et le spectre obtenu dans la configuration retenue.

Les caractéristiques essentielles de cette démarche sont (cf. figure 2.15) :

1. de ne pas partir d'une image figée de réacteur⁹, afin de disposer de toute latitude quant à la disposition des actinides dans le cœur ;
2. d'élaborer une hypothèse, sur laquelle on rétroagit par la suite, concernant le spectre neutronique et les sections efficaces moyennes ;
3. de partir de l'objectif principal pour en déduire les caractéristiques essentielles des réacteurs, et non d'imaginer un réacteur pour ensuite faire des "remontages de scénario", afin que la solution finale soit adaptée au problème posé.

Finalement, il ne faut pas oublier que l'efficacité d'incinération n'est pas un paramètre fixé *a priori* de façon absolue. Il ne s'agit pas, non plus, d'assurer le taux d'incinération le plus élevé possible ou de réduire au maximum l'inventaire radiotoxique des déchets ultimes ! Ces déchets doivent se comparer aux autres pertes, essentiellement celles du retraitement relevant du premier niveau, celui des réacteurs de puissance.

9. Nous verrons que le modèle de cœur, nécessaire pour pouvoir caractériser la taille, la concentration, le k_{eff} , etc., est très souple et laisse ouvert le choix de la solution finale, comme c'est le cas dans la première démarche évoquée plus haut (cf. page 56).

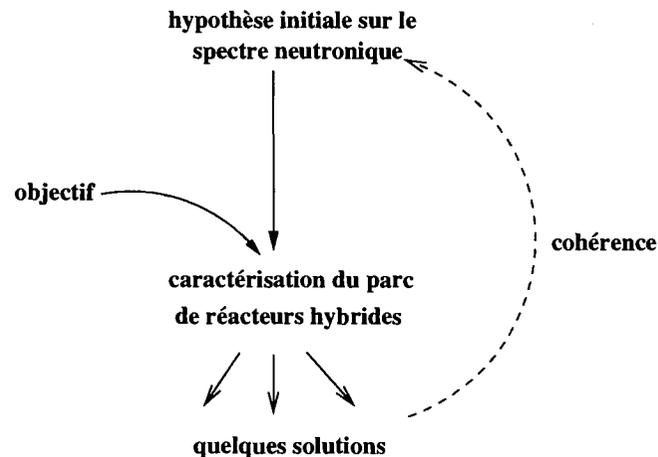


FIG. 2.15: La démarche retenue consiste à partir des sections efficaces physiques pour déterminer, en fonction de l'objectif poursuivi, les caractéristiques essentielles des réacteurs hybrides pour un nombre restreint de solutions. Il convient, pour l'une ou l'autre de ces solutions, de vérifier la cohérence de l'ensemble en s'assurant que l'hypothèse faite initialement sur le spectre neutronique peut être satisfaite dans la configuration retenue.

2.3.2 Le choix des spectres

2.3.2.1 Le spectre thermique

Le but du spectre thermique est de mettre en avant les neutrons très lents pour lesquels les sections efficaces sont élevées, afin d'étudier les possibilités d'incinération. Ce spectre dépend de la concentration des actinides dans le mélange, que ce soit avec un combustible solide ou avec un combustible liquide, à cause des captures au cours du ralentissement des neutrons. Puisque nous avons décidé de ne pas partir d'une conception précise de réacteur, nous n'avons *a priori* aucune indication sur les concentrations possibles. De plus celles-ci dépendent aussi de la quantité de produits de fission, du taux d'incinération, c'est-à-dire l'objectif que l'on souhaite atteindre. Il faut donc commencer l'analyse avec un spectre clairement défini afin de comprendre la physique et de faire des itérations successives (cf. schéma 2.15).

Nous avons donc calculé le spectre neutronique dans un support en graphite contenant du ^{239}Pu à hauteur de $1,0 \cdot 10^{-4} \text{ g/cm}^3$, pour une température de $700 \text{ }^\circ\text{C}$ (cf. figure 2.16). Nous avons introduit du plutonium dans le système afin de reproduire la partie haute énergie du spectre. Sans élément fissile, le spectre neutronique, après quelques centimètres, serait un pur spectre maxwellien centré autour de l'énergie thermique, ce qui ne correspond pas à l'objectif poursuivi. L'incinérateur final doit en effet être auto-suffisant du point de vue énergétique, ce qui se traduit par un coefficient de multiplication nettement supérieur à 0,75 (cf. section 2.1.2.1). La configuration retenue conduit à $k_{eff} = 0,95$.

Le choix de la température, proche d'une température théorique de fonctionnement, permet de tenir compte du décalage de la maxwellienne, ou pic thermique. Ceci peut conduire à décaler le pic thermique jusqu'au niveau d'une résonance, comme pour le ^{239}Pu . En effet, la même géométrie à $20 \text{ }^\circ\text{C}$ conduit à un coefficient de multiplication de 0,79.

Spectre thermique

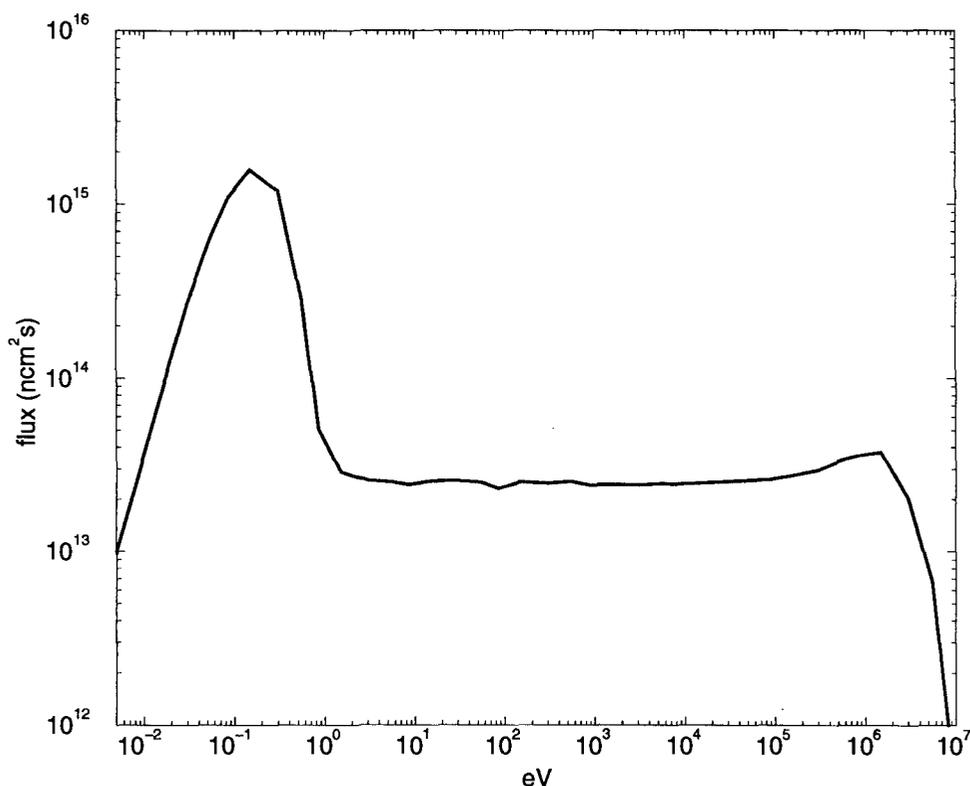


FIG. 2.16: Spectre thermique retenu comme hypothèse. Il provient d'un cœur de graphite contenant $\approx 10^{-4}$ g/cm³ de ²³⁹Pu dilué, à 1 mètre de la cible de spallation. La température est de 700 °C afin de tenir compte du décalage du pic thermique.

2.3.2.2 Le spectre rapide

Le spectre rapide utilisé correspond au spectre calculé pour l'Energy Amplifier de Rubbia *et al* (cf. figure 2.17) [47]. La question se pose ici encore d'avoir un spectre représentatif et proche du spectre final après itération. Il aurait été possible d'envisager un spectre obtenu dans un massif de plomb pur avec une très faible quantité de plutonium (pour les mêmes raisons que pour le spectre thermique). Mais, une fois les premiers calculs effectués, nous verrons que les masses en cœur pour les configurations rapides envisagées sont importantes, à savoir que les concentrations d'actinides sont élevées. Le calcul du nouveau spectre conduit à des écarts importants. En effet, le plomb ne capture que très peu les neutrons, ils atteignent donc des énergies de quelques eV. La présence des actinides par contre, conduit à des captures, ce qui durcit nettement le spectre¹⁰. Nous avons donc préféré utiliser le spectre d'une configuration déjà amplement étudiée.

10. Toutes ces considérations seront reprises section 6.3.

Spectre rapide

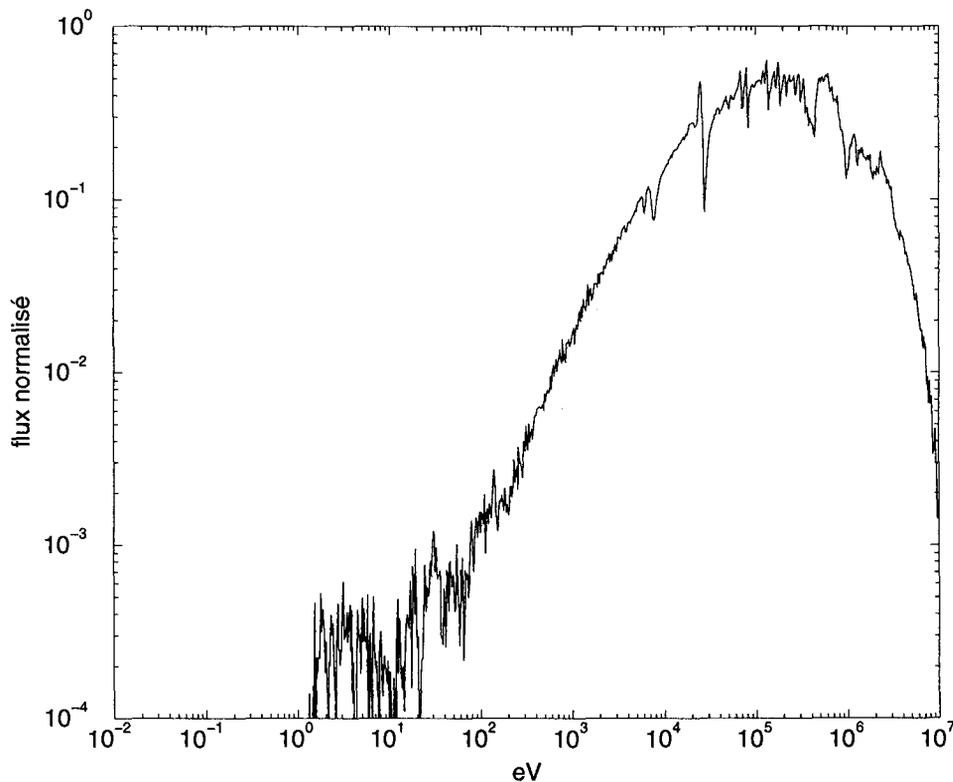


FIG. 2.17: Les moyennes de sections efficaces pour le spectre rapide sont obtenues sur le spectre représenté ci-dessus correspondant à l'Energy Amplifier de Rubbia et al [47].

2.3.2.3 Les incertitudes sur les sections efficaces moyennes

Les sections efficaces moyennes ainsi calculées donnent lieu à deux types d'incertitudes. La première provient du caractère déductif de la démarche et de l'hypothèse initiale du spectre : les sections efficaces moyennes sont fixées. Les configurations calculées ne conduiront donc pas aux mêmes sections efficaces, mais c'est l'objet de la vérification de la cohérence (cf. figure 2.15) que d'estimer l'écart entre les valeurs initiales et celles calculées pour une configuration précise. En fait, la démarche présentée ici se prête naturellement à l'itération : un spectre donne une configuration qui permet d'avoir un autre spectre ... La programmation en est relativement aisée et la solution finale, si l'itération converge, sera parfaitement cohérente du point de vue des sections efficaces moyennes.

La deuxième incertitude réside dans les valeurs tabulées des sections efficaces en fonction de l'énergie données dans les différentes bases de données. Il est possible de mettre en œuvre la théorie des perturbations pour calculer la sensibilité des différents résultats aux sections efficaces [24]. Certaines sections efficaces sont effectivement mal estimées et nous reviendrons longuement sur le cas de l' ^{242g}Am (cf. section 3.1.3.2 et publication associée B).

Mais ce type de travail ne correspond pas au cadre que nous nous sommes fixé, à savoir (i) d'élaborer une démarche simple et intelligible de l'optimisation des réacteurs hybrides en vue de la transmutation des déchets nucléaires et (ii) d'étudier de manière globale l'espace des

solutions pour dégager quelques pistes susceptibles de satisfaire le cahier des charges. L'étude de sensibilité doit se mener une fois une région précise délimitée et non sur l'ensemble des solutions, ce qui n'aurait pour effet que de diluer les résultats dans une masse d'informations inutile à ce niveau. Nous examinerons tout de même deux cas particuliers pour apprécier qualitativement l'impact de l'incertitudes sur les sections efficaces sur le bilan neutronique (cf. section 3.1.3.1).

2.3.3 Les paramètres

Après avoir décrit le cahier des charges et la démarche que nous allons suivre pour décliner ces objectifs et en déduire quelques solutions potentielles, il nous faut délimiter notre espace de recherche. Après une étude exhaustive de l'espace des solutions, il apparaîtra des solutions inacceptables, à la fois du point de vue technique, économique et sociologique. Les différentes contraintes que nous imposons pour délimiter l'espace des solutions *a posteriori*, sont résumées dans le tableau 2.8. L'état de l'art pour les différents réacteurs industriels est décrit annexe B.

contrainte	limite
nombre d'unités	$n < 10$
puissance par unité	$\mathcal{P} < 4,5 \text{ GW}_{th}$
intensité par unité	$I < 100 \text{ mA}$
sous-criticité	$k_{eff} < 0,98$
auto-suffisance énergétique	$k_{eff} > 0,75$
flux	$\phi_0 < 10^{16} \text{ n/cm}^2\text{s}$
rayon	$R < 3 \text{ m}$
puissance volumique maximale	$p_{max} < 800 \text{ W/cm}^3$
puissance volumique moyenne	$p_{moy} < 500 \text{ W/cm}^3$
facteur de forme [†]	$p_{max}/p_{moy} < 10$
dommages aux matériaux [†]	$d < 200 \text{ dpa}$

[†] (combustible solide)

TAB. 2.8: Contraintes imposées pour l'étude des configurations d'incinération.

Ces contraintes, concernant à la fois les caractéristiques globales de la solution (nombre d'unité, auto-suffisance énergétique ...) et la distribution de puissance dans le cœur (puissance volumique maximale, puissance volumique moyenne ...), vont permettre de trier les différentes solutions. Certaines de ces contraintes s'appliquent plus particulièrement à un type de combustible. Par exemple, le facteur de forme et les dommages aux matériaux n'interviennent que pour un combustible solide. Et encore, le facteur de forme peut être plus ou moins limitant si le combustible est chargé en continu ou par batch.

Nous n'avons pas retenu les contraintes liées au taux de combustion car ce dernier est un objectif. En effet, plus le taux de combustion est important, plus la teneur en produits de fission est importante, conduisant à un gonflement des pastilles et une possible détérioration des gaines. Pour les réacteurs industriels, le taux de combustion est limité à 20% pour les RNR, et à $\approx 5\%$ pour les REP. Toutefois, des études ont montré que des taux d'incinération de 90% peuvent être atteints pour des cibles thermalisées en RNR.

Trois contraintes n'ont pas été chiffrées à ce niveau. Les deux premières sont les rendements d'extraction des opérations de retraitement. Pour l'analyse des différents scénarios nous avons retenu un rendement de 99,9%, identique à celui préconisé par ATW. Nous le conserverons par

la suite pour l'étude du combustible liquide avec recyclage. La prise en compte d'une efficacité moindre est triviale, que ce soit pour la récupération des actinides ou pour l'extraction des produits de fission.

La troisième contrainte est le temps nécessaire pour incinérer les déchets. Pour un combustible solide, ce temps est la durée d'incinération, mais pour un combustible liquide, la transmutation est "instantanée"¹¹, seule est déterminante la phase de mise à l'équilibre. Ce paramètre relève essentiellement de contraintes autres que scientifiques ou techniques. Nous l'étudierons mais sans décliner son impact sur les solutions potentielles.

Nous avons aussi mis de côté les problèmes liés à l'inventaire en cycle, bien que ce paramètre puisse avoir son importance dans le cas d'une sortie du nucléaire.

Il nous faut aussi revenir sur un paramètre important des cœurs, en anticipant sur le modèle de cœur qui sera mis en place au chapitre suivant : la qualité du réflecteur, son albédo β . Quelques valeurs typiques sont données tableau 2.9 pour un spectre thermique [27].

matériaux	β
eau lourde	0,97
graphite	0,94
glucine (BeO)	0,92
béryllium	0,91
eau ordinaire	0,8

TAB. 2.9: *Albédo de quelques matériaux, pour un spectre de Maxwell à température ambiante [27].*

L'eau lourde est le meilleur réflecteur, avec 0,97, suivie par le graphite. L'eau ordinaire, très modératrice mais aussi très capturante, n'est qu'un médiocre réflecteur.

Ces valeurs peuvent s'obtenir à partir d'un modèle de réflecteur infini en utilisant la définition de l'albédo (cf. section 3.4.2 page 112). Ceci permet d'avoir une estimation de β pour un spectre rapide, qui diffère du spectre thermique puisque les neutrons ont des probabilités de captures très différentes. Nous obtenons alors pour le plomb $\beta \approx 0,9$ et $\beta \approx 0,8$ pour l'acier [72].

Nous retiendrons donc pour l'étude des cœurs 0,95 pour le spectre thermique et 0,9 pour le spectre rapide, en référence à l'Energy Amplifier dont le combustible baigne dans du plomb liquide.

Après avoir décrit la démarche que nous allons suivre et les contraintes, nous devons revenir sur l'espace des solutions que nous allons explorer. Nous traiterons à la fois du combustible solide et du combustible liquide, en "once-through" ou en recyclage perpétuel. Et pour chaque configuration, nous examinerons l'intérêt du spectre thermique et du spectre rapide pour l'incinération des différents scénarios. La figure 2.18 illustre la structure de cette analyse.

11. Si on considère le massif sous-critique de manière globale, il est indépendant du temps. Tout ce passe comme si les actinides qui sont introduits en cœur disparaissent immédiatement, par capture ou fission, et des produits de fission les remplacent. Bien que les pères de ces PF ne soient pas les isotopes introduits, le bilan global peut s'interpréter comme une incinération "instantanée".

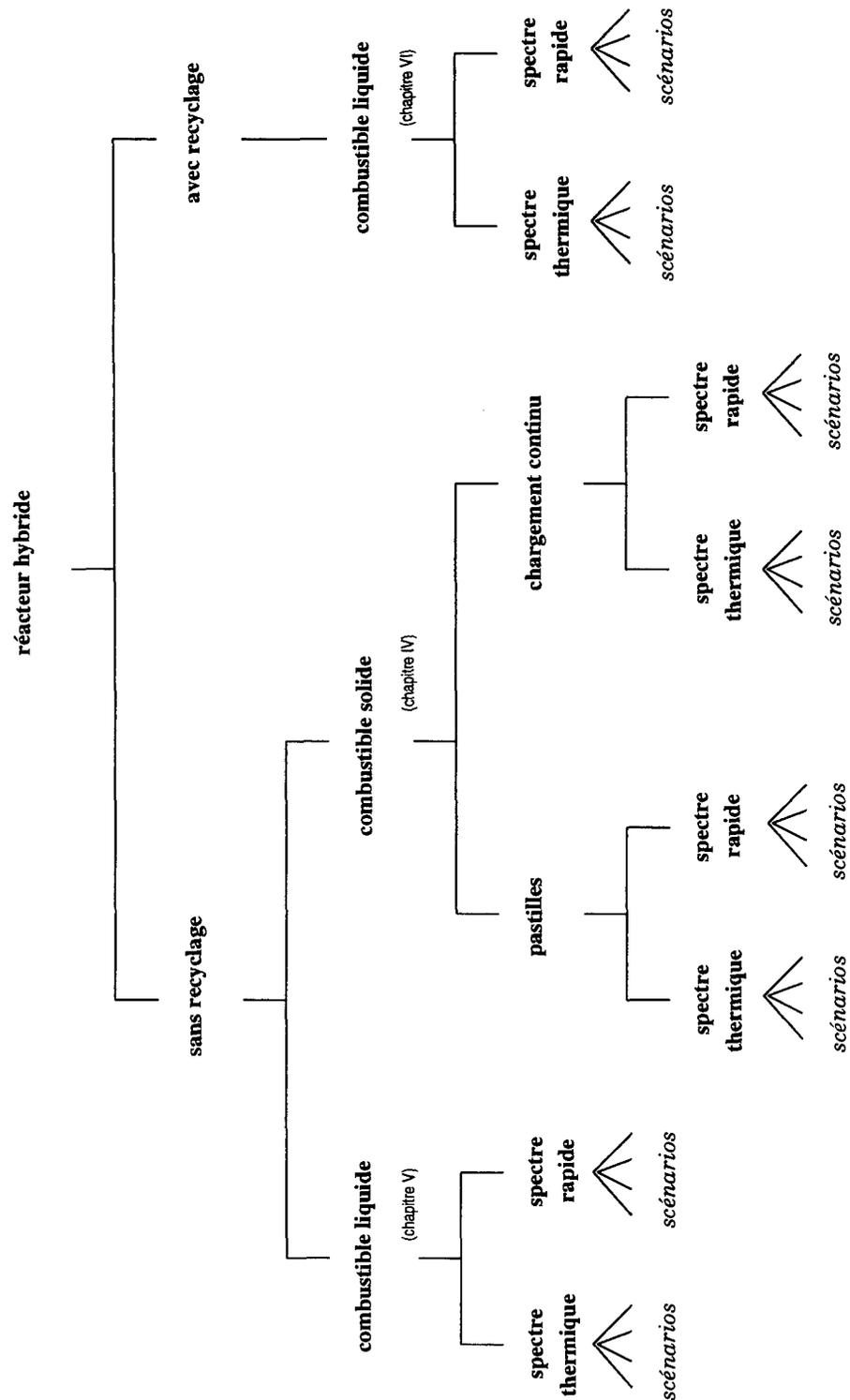


FIG. 2.18: Configurations de réacteurs hybrides. Nous étudierons successivement le combustible solide et le combustible liquide, en distinguant les cas d'alimentation continue et de retraitement en ligne.

2.4 Conclusion

L'incinération des déchets nucléaires produits par les réacteurs nucléaires industriels est une solution attrayante pour limiter l'enfouissement des déchets. Malheureusement, dans le cas d'un parc de réacteurs à eau pressurisée, l'incinération dans ces mêmes réacteurs présente quelques difficultés, à la fois pour le fonctionnement, le contrôle et la sûreté.

Des réacteurs dédiés sous-critiques sont une alternative permettant de lever un certain nombre de difficultés. Les diverses propositions cherchent à résoudre le problème des déchets de cette manière, voire à produire un large excédent d'énergie.

Mais avant de s'attaquer au dessin d'un réacteur hybride, encore faut-il connaître l'objectif qui lui est assigné. Nous avons retenu l'incinération et uniquement elle, sous réserve d'une auto-suffisance énergétique. Il nous a fallu alors définir des scénarios de déchets en quantifiant les masses et compositions des actinides à transmuter.

Avec ce cadre général, nous avons alors pu élaborer une approche physique du problème de l'incinération en minimisant le nombre d'hypothèses et sans faire référence à un schéma précis de réacteur. Il est en effet question de trouver la meilleure solution et non d'étudier ce que les réacteurs actuels légèrement modifiés permettent d'espérer.

Finalement, les solutions ainsi trouvées ne seront pas toutes acceptables en raison des difficultés techniques, économiques ou sociologiques. Nous avons donc recensé les paramètres essentiels d'un réacteur hybride pour limiter l'espace des solutions, tout en laissant une marge suffisante pour tenir compte des innovations techniques.

Chapitre 3

Modèles mathématiques

Nous avons précisé dans le chapitre précédent l'espace physique dans lequel chercher des solutions au problème des déchets nucléaires. Il faut maintenant mettre en place un certain nombre d'outils mathématiques pour expliciter les liens existant entre les différents paramètres du système complet : l'intensité I du faisceau de protons, le k_{eff} , la puissance spécifique du cœur, les pertes de matières au retraitement ... Dans ce but, nous allons procéder par modèles simples et disjoints et nous en ferons la synthèse ultérieurement.

Le premier de ces modèles conduit à la définition de la consommation de neutrons par fission. Il va nous permettre de déterminer le bilan neutronique pour un mélange à incinérer donné et, dans une certaine mesure, le "potentiel d'incinération". Il sera possible d'étendre ce modèle à d'autres grandeurs, comme l'inventaire d'actinides dans le cœur (qui jouera un rôle essentiel pour la caractérisation ultérieure des cœurs de réacteurs hybrides) ou le bilan des produits de fission à vie longue.

Le deuxième modèle concerne les flux de matières dans le parc de réacteurs hybrides et donne une vision plus précise de l'ensemble du cycle du combustible et des besoins de retraitement : masse et volume, mais aussi efficacité requise de la séparation chimique.

Le troisième modèle fournit une image du cœur. Bien que très rudimentaire, il permet d'accéder aux différents paramètres technologiques essentiels pour la réalisation d'un réacteur hybride et en particulier de quantifier les réactions neutroniques parasites dans les matériaux support¹ et les fuites, ainsi que de vérifier la cohérence de la démarche (cf. figure 2.15).

3.1 Notion de consommation de neutrons par fission

Cette notion a été introduite pour la première fois par l'équipe de M. Salvatores [48, 73] afin d'évaluer les besoins en neutrons pour arriver à la fission complète d'un noyau donné i . Nous allons en reprendre la définition ici, définition que je qualifierais de statique, pour pouvoir ensuite la replacer dans un contexte dynamique. Nous allons pouvoir établir des relations entre les différentes grandeurs qui interviennent dans cette question et étendre assez simplement la notion de consommation de neutrons à d'autres noyaux et à d'autres paramètres.

Dans un premier temps, nous étudions un isotope générique i dans un flux neutronique ϕ_0 . Nous ne fixons pas de limite pour la durée d'incinération, qui pourra donc être très importante,

1. Il s'agit de toutes les réactions consommatrices de neutrons autres que celles dues aux actinides et aux produits de fission.

ceci afin de mieux comprendre l'évolution globale. Nous ne ferons intervenir ce paramètre que lors de l'étude précise des scénarios aux chapitres suivants.

3.1.1 Définition

3.1.1.1 Régime statique

Si l'on considère un noyau i placé dans un flux neutronique ϕ_0 de spectre donné, il sera transmuté suivant une arborescence déterminée par les sections efficaces de capture, de fission et de réaction $(n,2n)$ et les constantes de décroissance (cf. figure 3.1)². La *consommation de neutrons par fission*, D , est le nombre de neutrons nécessaires pour fissionner ce noyau i . Il s'agit d'une moyenne statistique sur l'ensemble des branchements possibles. Cette valeur peut être soit positive - il faut fournir des neutrons au noyau pour le fissionner -, soit négative - dans ce cas la fission libère plus de neutrons que ce qui est nécessaire pour l'induire, comme l' ^{235}U . Avec cette convention de signe, plus D sera négatif, plus la marge de manoeuvre sera importante pour tenir compte des réactions "parasites" : captures de neutrons par les produits de fission, pertes dans les matériaux de structure et fuites.

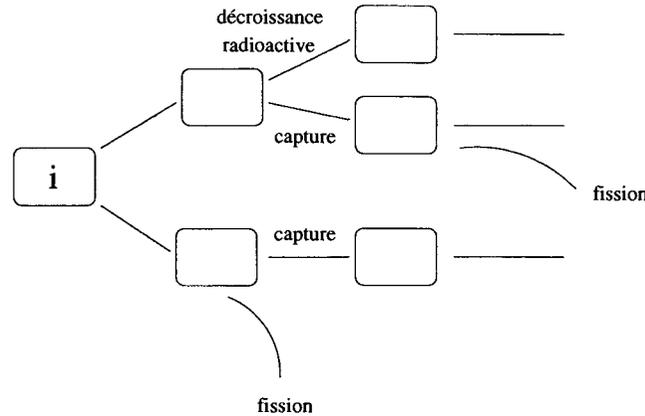


FIG. 3.1: L'isotope initial i , sous un flux neutronique donné, est transmuté en différents éléments suivant une arborescence définie par des probabilités : par exemple $P_{j \rightarrow k} = \frac{\sigma_{j \rightarrow k} \phi_0}{\lambda_j}$ (cf. texte) pour la capture et la fission. On s'intéresse d'abord au régime d'équilibre qui s'établit lorsqu'on maintient constant le nombre d'atomes i dans le flux ϕ_0 .

Cette notion dépend du spectre en énergie des neutrons (à travers les sections efficaces), du flux neutronique ϕ_0 et du noyau i considéré. Nous adopterons la notation suivante :

$$D(\text{spectre}, \phi_0, \text{isotope } i) \equiv D_i$$

La définition ci-dessus se traduit mathématiquement par :

$$D_i = \sum_j P_{i \rightarrow j} \{R_{i \rightarrow j} + \sum_k P_{j \rightarrow k} \{R_{j \rightarrow k} + \dots\}\} \quad (3.1)$$

2. Les réactions nucléaires sont bien plus nombreuses que celles énumérées ici. Il faudrait tenir compte des réactions (n, xn) et de bien d'autres réactions. Compte-tenu du niveau d'approximation, et sachant que le formalisme développé ici permet d'intégrer ces réactions sans difficulté, nous nous sommes contenté des réactions indiquées dans le texte.

dans laquelle :

- $P_{j \rightarrow k}$ est la probabilité de passer du noyau j au noyau k , c'est-à-dire le rapport de branchement de j vers k , soit $\frac{\sigma_{j \rightarrow k} \phi_0}{\lambda_j}$ pour les réactions nucléaires, soit $\frac{\ln 2}{T_{j,1/2}} \frac{1}{\lambda_j}$ pour les décroissances, avec : $T_{j,1/2}$ la durée de vie de l'isotope j , $\sigma_{j \rightarrow k}$ la section efficace, moyennée sur le spectre en énergie des neutrons, de la réaction nucléaire transmutant l'isotope j en l'isotope k , et λ_j la "constante effective" de l'isotope j définie par : $\lambda_j = \sum_k \sigma_{j \rightarrow k} \phi_0 + \frac{\ln 2}{T_{j,1/2}}$;
- $R_{j \rightarrow k}$ le nombre de neutrons consommés lors du passage de l'isotope j à l'isotope k (voir tableau 3.1 pour les valeurs).

processus	$R_{j \rightarrow k}$
fission	$1 - \nu_j$
(n,2n)	-1
décroissance	0
(n, γ)	1

TAB. 3.1: Nombre de neutrons consommés lors de la transmutation $j \rightarrow k$. Le nombre moyen de neutrons libérés par la fission du noyau j est noté ν_j .

Pour chaque isotope i , nous pouvons calculer les différentes probabilités et obtenir une valeur de la consommation de neutrons.

3.1.1.2 Régime dynamique

La notion telle qu'elle est présentée ci-dessus est indépendante du temps. Pour retrouver une notion dynamique nous allons partir d'une autre définition et montrer l'équivalence entre elles.

Considérons une situation plus générale dans laquelle un isotope i est placé sous un flux neutronique ϕ_0 donné. Nous nous donnons la possibilité de rajouter dans le système une quantité quelconque d'isotope i en fonction du temps : $(S_i(t))$.

L'irradiation de cet actinide va peupler progressivement l'arborescence ci-dessus (cf. figure 3.1) avec l'apparition d'autres actinides, repérés par l'indice j . Ceci se traduit par un vecteur isotopique caractérisant l'état du système à l'instant t :

$$\left(N_{i,j}(t) \right)_j$$

Cette notation permet d'indiquer que la composition isotopique est fonction du temps t et que tous les actinides dans le système sont issus de la chaîne de l'isotope i . Ce vecteur existe quelque soit le mode d'alimentation $(S_i(t))$.

On peut maintenant chercher à donner un sens concret à la notion de consommation de neutrons par fission. La somme de toutes les interactions nous permet d'exprimer le nombre de fissions par seconde :

$$\sum_j \sigma_j^{(f)} \phi_0 N_{i,j}(t)$$

et le nombre de neutrons consommés par seconde en fonction du temps (en neutrons par seconde) :

$$\sum_j ((1 - \nu_j) \sigma_j^{(f)} - \sigma_j^{(n,2n)} + \sigma_j^{(c)}) \phi_0 N_{i,j}(t)$$

en faisant la somme de toutes les disparitions de neutrons dues aux actinides du système. Nous y retrouvons le flux ϕ_0 et les différentes sections efficaces (à un groupe, donc moyennées pour un spectre précis) de capture ($\sigma_j^{(c)}$), de fission ($\sigma_j^{(f)}$) et de réaction (n,2n) ($\sigma_j^{(n,2n)}$) pour l'isotope j .

La consommation de neutrons par fission peut donc se traduire par le rapport de ces deux quantités, soit :

Définition

$$\tilde{D}_i(t) = \frac{\sum_j ((1 - \nu_j) \sigma_j^{(f)} - \sigma_j^{(n,2n)} + \sigma_j^{(c)}) \phi_0 N_{i,j}(t)}{\sum_j \sigma_j^{(f)} \phi_0 N_{i,j}(t)} \quad (3.2)$$

Cette notion dépend uniquement du vecteur isotopique $\left(N_{i,j}(t) \right)_j$ à l'instant t , et pas du régime d'alimentation ($S_i(t)$). Afin de calculer cette grandeur $\tilde{D}(t)$, il nous faut déterminer la composition isotopique à l'instant t . Les équations d'évolution de Bateman établissent une équation différentielle du premier ordre permettant de résoudre ce problème. Ce système d'équations s'écrit dans le cas présent :

$$\left(\frac{dN_{i,j}}{dt} \right) = (\mathbb{A}\phi_0 + \mathbb{B}) \cdot (N_{i,j}) + S_i(t) (\delta_{i,j}) \quad (3.3)$$

avec $(\delta_{i,j})$ le vecteur³ nul sauf pour l'isotope i pour lequel il vaut 1, \mathbb{A} la matrice des sections efficaces de captures, fission et réactions (n,2n) et \mathbb{B} la matrice des termes de décroissance.

Nous disposons de plusieurs méthodes numériques pour intégrer ces équations. La plus simple est la méthode d'intégration pas à pas de Runge-Kutta. Il est aussi possible d'exprimer les solutions des équations homogènes, sans alimentation, sous la forme :

$$(N_j)_t = e^{(\mathbb{A}\phi_0 + \mathbb{B})t} (N_j)_{t=0} \quad (3.4)$$

L'exponentielle peut être calculée soit en diagonalisant la matrice d'évolution, soit en la développant en série géométrique [74].

Cette définition plus générale de la consommation de neutrons peut être calculée dans deux cas particuliers :

- cas sans alimentation $S_i(t) = 0$;
- cas avec une alimentation continue constante $S_i(t) = s_i \quad \forall t \geq 0$.

3. $\delta_{i,j}$ est le symbole de Kronecker donc $\delta_{i,j} = 0$ si $j \neq i$ et $\delta_{i,i} = 1$.

Nous allons établir d'une part un lien entre le second cas et la définition statique présentée en début de chapitre, d'autre part une relation intégrale entre les deux cas particuliers, relation intégrale qui nous sera utile par la suite.

Dans le cas d'une alimentation continue, la composition en actinides du système tend, plus ou moins vite, vers un équilibre donné par :

$$\left(\frac{dN_{i,j}}{dt} \right) = 0 \quad (3.5)$$

ou encore, d'après l'équation 3.3 par :

$$(\mathbb{A}\phi_0 + \mathbb{B}) \cdot (N_{i,j}) = -s_i (\delta_{i,j}) \quad (3.6)$$

Ce régime d'équilibre dépend du spectre, du flux ϕ_0 et de l'alimentation continue s_i . Par ailleurs, en vertu de la définition de l'équilibre, à chaque nouveau noyau i introduit dans le système, il se produit une fission au sein de la chaîne. En effet, par un jeu de cascades et puisque le système est à l'équilibre, un noyau i supplémentaire impose une capture, une fission ou une décroissance (dans le rapport des probabilités de chaque voie) qui, à son tour, conduit à une réaction nucléaire pour les mêmes raisons, etc. La fin de cette cascade est atteinte quand la probabilité cumulée de fission a atteint 100%, puisque seuls les produits de fission ne sont pas à l'équilibre.

Ainsi, en régime d'alimentation continue nous pouvons écrire que le taux de fission est égal au taux de disparition de l'isotope i "père" de toute la chaîne :

$$\sum_j \sigma_j^{(f)} \phi_0 N_{i,j}(t) = \lambda_i N_i \quad (3.7)$$

dans laquelle λ_i est la constante de décroissance généralisée de l'isotope i définie par : $\lambda_i = \sum_k \sigma_{i \rightarrow k} \phi_0 + \frac{\ln 2}{T_{i,1/2}}$. Dans ces conditions, les différents noyaux se répartissent suivant les probabilités respectives de chaque voie : capture, fission, décroissance, (n,2n), c'est-à-dire en fonction des coefficients $P_{j \rightarrow k}$ définis ci-dessus. Le vecteur isotopique converge avec le temps vers la composition d'équilibre, de même que la consommation de neutrons par fission tend vers une limite dictée par les rapports de branchements. Les deux définitions, 3.1 et 3.2, sont donc bien équivalentes dans le cas d'un régime stationnaire avec alimentation :

$$D_i = \lim_{t \rightarrow \infty} \tilde{D}_{i,avec\ alimentation}(t) \quad (3.8)$$

Afin de visualiser ce régime, considérons l'irradiation du ^{237}Np sous un flux de 10^{14} n/cm²s dans un spectre très thermalisé (0.025 eV). L'arborescence suivie par le noyau initial de ^{237}Np est donnée par la figure 3.2 dans laquelle nous n'avons indiqué que les premiers branchements principaux : la chaîne se développe jusqu'au curium. Le résultat en statique est tiré de [48, 75] :

$$D(^{237}\text{Np}) \approx 0,84 \quad (3.9)$$

La figure 3.3 montre la courbe de \tilde{D} en fonction du temps avec et sans alimentation continue, les deux cas particuliers évoqués ci-dessus. Nous remarquons que le régime asymptotique avec alimentation est proche de la valeur donnée ci-dessus : le ^{237}Np est bien consommateur net de neutrons pour chaque fission. Nous avons aussi des informations supplémentaires quant à la

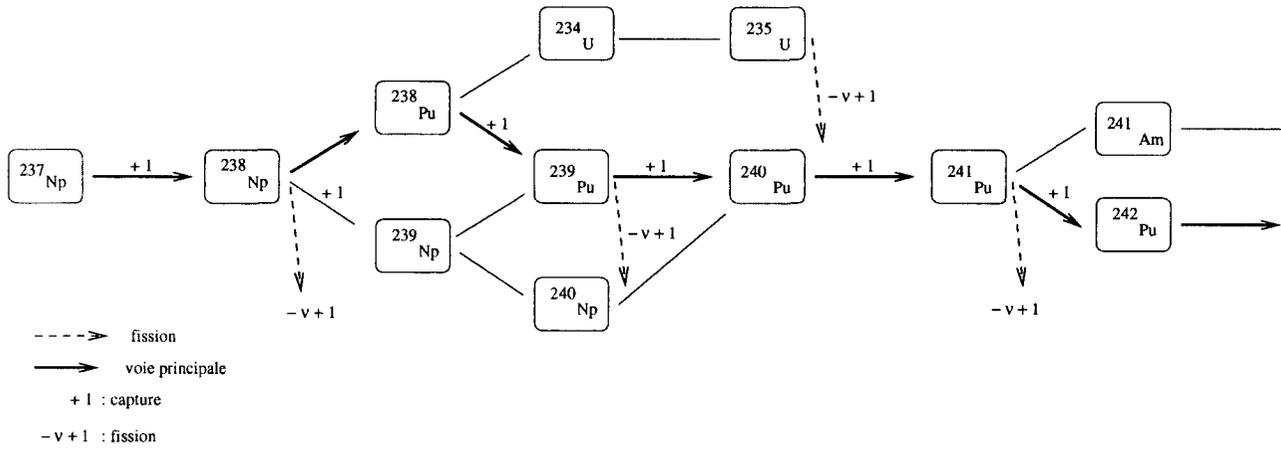


FIG. 3.2: Sous irradiation, avec un flux de 10^{14} n/cm^2s , le ^{237}Np suit une arborescence constituée essentiellement d'une "trajectoire unique". Nous avons représenté ici les branches principales du début de l'arbre qui s'étend en réalité jusqu'aux isotopes du curium.

dynamique du système. La consommation de neutrons baisse fortement au cours de l'irradiation, passant de 25 à 0,8. Ceci est lié au caractère peu fissile du ^{237}Np . Au début, seul le neptunium est présent et le nombre de fissions est très faible d'où un bilan par fission défavorable: il faut accepter de voir capturer 25 neutrons avant de fissionner un noyau de ^{237}Np . Au cours du temps, la composition du mélange devient de plus en plus fissile (la figure 3.4 donne le pourcentage de noyaux de ^{239}Pu dans le mélange) et le bilan neutronique s'améliore jusqu'à sa valeur d'équilibre.

Le calcul peut aussi être fait sans alimentation et permet alors d'étudier l'évolution de la consommation de neutrons pour une pastille laissée à elle-même dans un flux donné. Ici encore, la pastille est fortement consommatrice de neutrons en début de vie, puis le mélange se concentre sur les isotopes du plutonium conduisant à la baisse de \tilde{D} . Avec le temps, la composition se déplace vers les isotopes encore plus lourds, essentiellement le ^{244}Cm , ^{242}Pu et ^{243}Am , peu fissiles, d'où le pic observé à 5500 jours (cf. figure 3.3). Et finalement, la composition isotopique monte vers les isotopes supérieurs du curium menant à un meilleur bilan neutronique. La consommation de neutrons augmente progressivement par la suite.

Finalement, les deux cas particuliers de la consommation de neutrons, avec ou sans alimentation continue, ne sont pas sans rapport. Il existe une relation intégrale entre ces deux fonctions de $\tilde{D}(t)$:

$$\tilde{D}_{avec\ alimentation}(t) = \frac{\int_0^t \tilde{D}_{sans\ alimentation}(u) \mathcal{P}_{th}(u) du}{\int_0^t \mathcal{P}_{th}(u) du} \quad (3.10)$$

avec $\mathcal{P}_{th}(t)$ la puissance thermique dissipée dans le cas de l'irradiation sans alimentation⁴.

Pour comprendre l'origine de cette expression, il faut revenir aux lois d'évolution du système, les équations de Bateman (cf. formule 3.3). Puisque les solutions sont découplées, une alimentation continue à l'instant t peut être vue comme la superposition d'une solution sans alimentation à l'instant 0, une à l'instant Δt , une autre à l'instant $2\Delta t$, etc, jusqu'à la solution à l'instant t , au même rythme que l'alimentation continue de l'isotope i . Il s'agit de la somme

4. Tous les calculs de puissance thermique sont effectués en considérant que chaque fission libère 200 MeV.

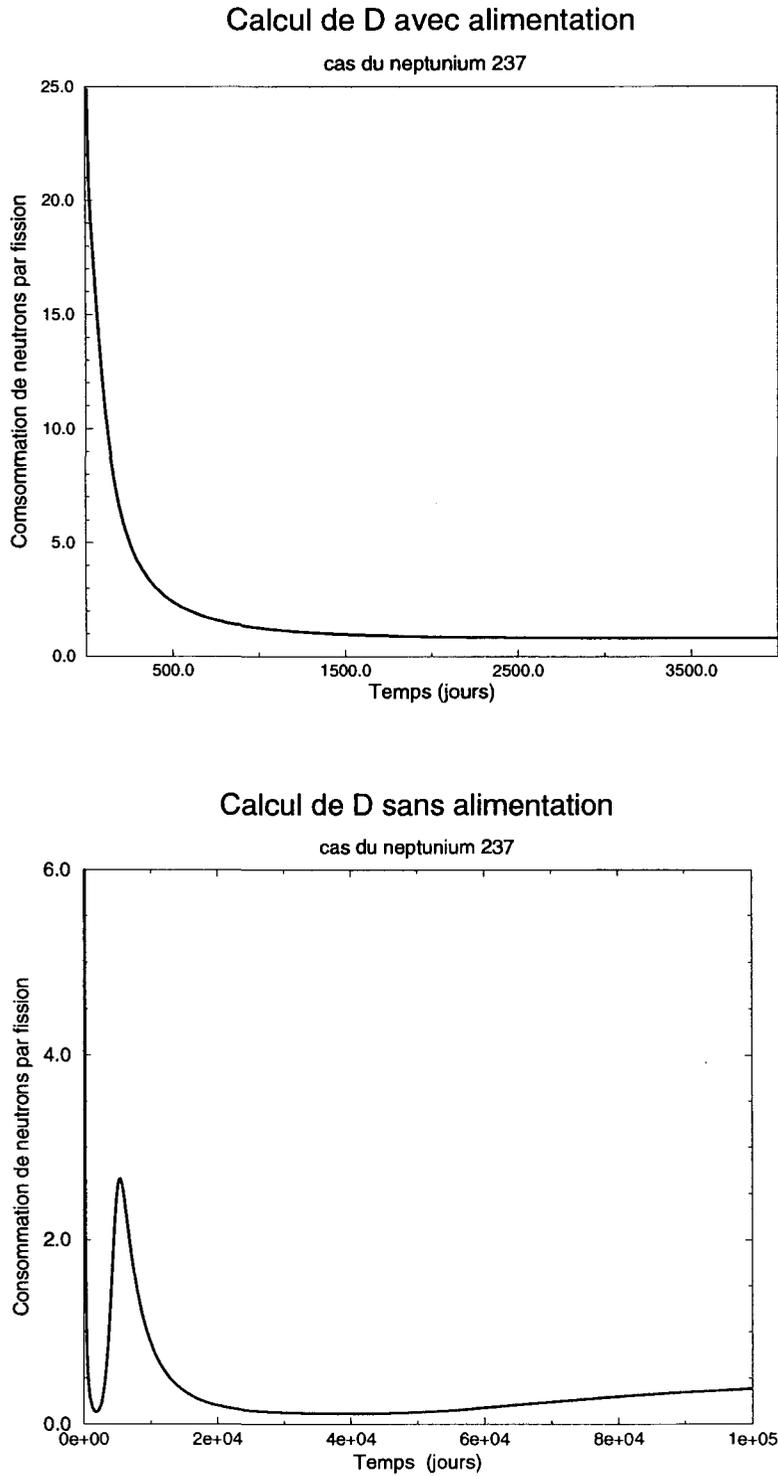


FIG. 3.3: Nous représentons ici le calcul, utilisant la formule 3.2, de la consommation de neutrons par fission sous un flux très thermalisé de 10^{14} n/cm^2s , dans les deux cas, à savoir avec ou sans alimentation continue de ^{237}Np . Quand une alimentation continue est assurée, ici 0,8 t/an, le bilan neutronique décroît au cours du temps, la valeur d'équilibre de la courbe correspondant à la valeur citée dans le texte. La courbe sans alimentation, 0,7 t initialement, montre que la consommation de neutrons n'est pas du tout linéaire dans le temps et passe même par un pic important vers 5500 jours avant de remonter progressivement.

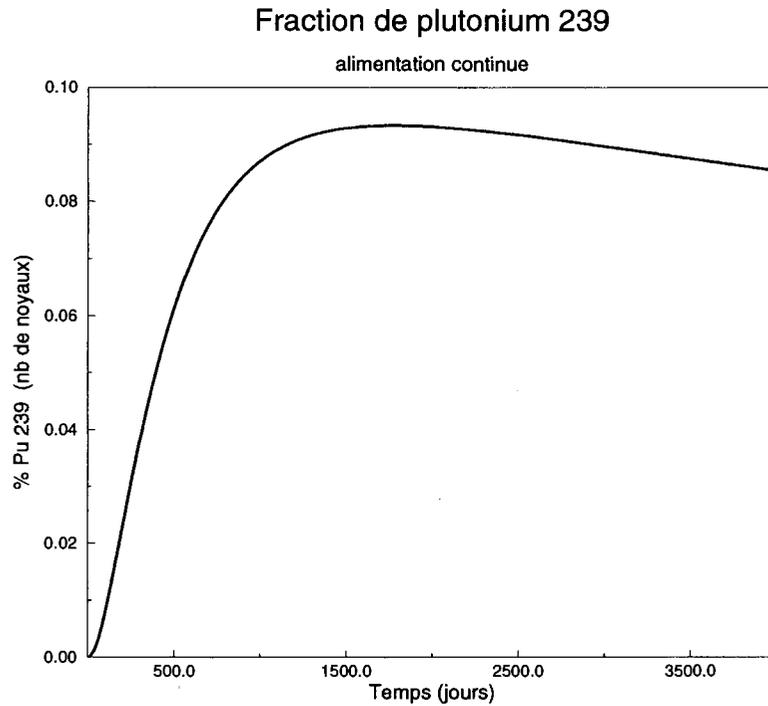


FIG. 3.4: La fraction de ^{239}Pu dans le mélange avec alimentation explique la baisse progressive du bilan neutronique ($\tilde{D}(t)$) au cours du temps: la composition isotopique se porte de plus en plus sur les isotopes du plutonium, plus fissiles que l'isotope initial.

des solutions sans alimentation dont l'origine est décalée dans le temps. Par ailleurs, toutes les solutions sans alimentation évoluent de manière identique. Disposant de deux solutions $N_{i,j}$ et $N'_{i,j}$ correspondant respectivement aux alimentations en t et $t + \Delta t$, nous avons la relation :

$$N_{i,j}(t) = N'_{i,j}(t - \Delta t) \quad (3.11)$$

Le régime avec alimentation est donc la somme de toutes ces solutions avec retard (d'où l'inté-

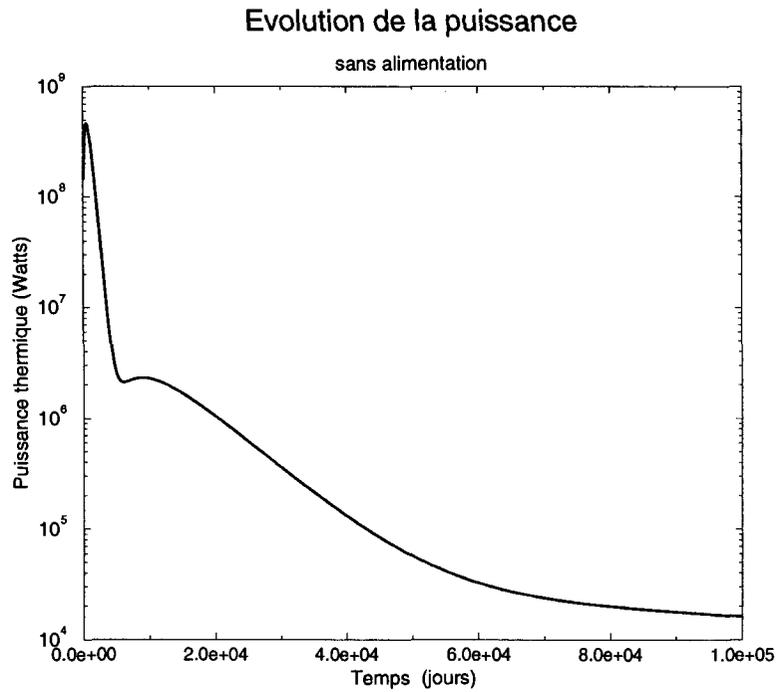


FIG. 3.5: L'évolution de la puissance thermique dissipée au cours de l'irradiation, ici pour 0,7 tonnes de ^{237}Np , permet le passage du cas sans alimentation au cas avec alimentation : la puissance très importante au début de l'irradiation est due à l'apparition puis à la fission du ^{239}Pu . On observe une stabilisation de la puissance vers 9 000 jours correspondant à la fission des isotopes impairs du curium, principalement de ^{245}Cm .

grale) pondérée par le nombre de fissions engendrées par chacune⁵.

Ceci permet de comprendre, grâce à la figure 3.5, la contribution de chaque fission au cours du temps au bilan neutronique total : la puissance \mathcal{P}_{th} est très importante au début de l'irradiation, elle passe par un maximum après 500 jours avant de décroître très rapidement. La consommation de neutrons après 1500 jours n'aura aucun impact sur le bilan total car la puissance thermique a trop nettement diminué.

Ces deux représentations de $\tilde{D}(t)$ correspondent à deux visions différentes. Dans le premier cas, il s'agit de l'étude de l'évolution d'une pastille irradiée sous un flux neutronique ϕ_0 . Le second correspond à la caractérisation de l'ensemble d'un cœur alimenté de manière continue en pastilles contenant uniquement l'isotope i . Dans le cas du ^{237}Np , nous avons pu constater des disparités importantes en ce qui concerne le nombre de neutrons nécessaires en fonction du temps d'irradiation suivant l'une ou l'autre vision.

Notons que les ordres de grandeurs des temps caractéristiques des phénomènes dépendent fortement du flux retenu, ici $10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$. Pour un flux plus important, les temps seront réduits d'autant et pourront correspondre à la dynamique réelle d'un réacteur.

La notion de consommation de neutrons par fission peut ainsi être vue de deux manières distinctes. La première, purement statique, consiste à partir de ce que l'on souhaite incinérer et à estimer les besoins en terme de neutrons pour obtenir une fission complète, la seconde, $\tilde{D}(t)$, précise la dynamique d'un tel système. Chaque approche possède ses avantages. La formulation statique est très rapide, la formulation dynamique est plus facile à manipuler pour établir des relations entre les différents paramètres, ce que nous allons faire maintenant.

3.1.2 Relations mathématiques

3.1.2.1 Mélanges d'actinides

Maintenant que nous avons étudié le cas d'un seul isotope placé dans un flux neutronique, il faut aborder le problème d'un mélange de noyaux. Considérons un mélange d'isotopes et un vecteur d'alimentation fonction du temps $(S_i(t))_i$. A chaque instant correspond un vecteur

5. Nous pouvons donner une approche plus mathématique en raisonnant sur une équation différentielle d'ordre 1 d'une fonction réelle $f'(t) = \alpha f(t)$. La solution la plus générale se met sous la forme $f(t) = Ae^{\alpha t}$. Considérons l'alimentation au temps $t = u$ d'une quantité $S(u)$, la solution s'écrit :

$$f(t) = S(u)e^{\alpha(t-u)} \quad \forall t \geq u \quad \text{sinon } f(t) = 0 \quad (3.12)$$

Si nous considérons maintenant une alimentation fonction du temps $S(t)$, nous pouvons utiliser la méthode de la variation de la constante pour trouver la solution générale :

$$f(t) = e^{\alpha t} \int_0^t S(u)e^{-\alpha u} du \quad \forall t \geq 0 \quad (3.13)$$

Mais nous pouvons aussi dire que la solution à l'instant t est la somme de toutes les solutions élémentaires pour chaque alimentation entre 0 et t , soit :

$$f(t) = \int_0^t S(u)e^{\alpha(t-u)} du \quad \forall t \geq 0 \quad (3.14)$$

Les deux formules sont bien égales et ceci explique le "découpage" fait en fonction du temps pour ensuite additionner les solutions sans alimentation continue.

isotopique $(N_i(t))_i$ et nous pouvons calculer la quantité⁶ :

$$\tilde{D}(t) = \frac{\sum_i ((1 - \nu_i) \sigma_i^{(f)} - \sigma_i^{(n,2n)} + \sigma_i^{(c)}) \phi_0 N_i(t)}{\sum_i \sigma_i^{(f)} \phi_0 N_i(t)} \quad (3.15)$$

rapport entre le nombre de neutrons consommés par le milieu et le taux de fission - c'est la consommation de neutrons par fission. Cette expression reste très générale et ne dépend que du vecteur isotopique $(N_i(t))_i$ à flux et spectre fixés.

Par ailleurs, nous savons que les équations de Bateman forment un système différentiel du premier ordre à coefficients constants, nous pouvons décomposer toute solution sur une base de solution. Nous allons choisir comme base les vecteurs isotopiques $(N_{i,j}(t))_i$ correspondant à l'évolution d'une masse unité de l'isotope i irradié dans les mêmes conditions. L'indice j représente ici les différents isotopes "fils" de i au cours de l'irradiation.

Regardons pour commencer le cas sans alimentation. La présence à $t = 0$ d'un mélange d'actinides conduit à un mélange $(N_i(t))_i$ qui peut se décomposer de la manière suivante :

$$(N_j(t)) = \sum_i S_i(0) (N_{i,j}(t)) \quad (3.16)$$

où $S_i(0)$ est la masse de l'isotope i dans le mélange initial. Physiquement ceci se traduit par l'existence, pour chaque isotope i , d'une arborescence qui lui est propre, et nous pouvons distinguer dans la composition à l'instant t la contribution de l'isotope i et celle de l'isotope i' , etc. Il s'agit de la même manipulation algébrique que nous avons faite pour l'étude de l'inventaire radiotoxique (cf. section 1.2.4).

Par ailleurs, nous avons déjà montré, voir formules 3.10 et 3.11, que toute solution avec une alimentation fonction du temps $(S_i(t))_i$ pouvait se décomposer comme la somme des solutions élémentaires sans alimentation mais avec une condition initiale précise. Nous noterons alors $(N_{i,j}^0(t))$ la solution sans alimentation correspondant à l'évolution d'une masse unité de l'isotope i . Nous pouvons faire de même ici. Toute composition isotopique $(N_i(t))_i$ peut s'écrire :

$$(N_i(t)) = \sum_i \int_0^t S_i(u) (N_{i,j}^0(t-u)) du \quad (3.17)$$

Nous avons toujours la possibilité de décomposer pour faire apparaître les isotopes "pères" de toutes les chaînes. Ceci permet, comme pour la radiotoxicité (cf. section 1.2.4), de connaître l'isotope présent à $t = 0$ qui est à l'origine de tel phénomène à l'instant $t > 0$.

Ce procédé peut s'appliquer au calcul de la consommation de neutrons par fission. Suivant les mêmes considérations que ci-dessus, nous pouvons écrire la formule très générale pour une alimentation quelconque $(S_i(t))_i$:

$$\tilde{D}_{avec\ alimentation}(t) = \frac{\sum_i \int_0^t \tilde{D}_{i,sans\ alimentation}(u) S_i(t-u) \mathcal{P}_{i,th}(u) du}{\sum_i \int_0^t S_i(t-u) \mathcal{P}_{i,th}(u) du} \quad (3.18)$$

dans laquelle $\mathcal{P}_{i,th}(u)$ est la puissance thermique dissipée par unité de masse de l'isotope i . La présence de terme d'alimentation $S_i(t-u)$ provient du fait que la puissance thermique dissipée par une alimentation traduit le fait qu'une alimentation plus ou moins importante conduira à plus ou moins de fission.

6. C'est la généralisation de l'expression 3.2.

Ces résultats peuvent s'appliquer dans le cas particulier d'une alimentation constante et continue pour laquelle nous avons démontré que la consommation de neutrons isotope par isotope convergait vers la notion statique. De plus l'alimentation constante peut se mettre en facteur au numérateur de l'expression 3.18 permettant de retrouver l'intégrale de la formule 3.10 :

$$\tilde{D}_{avec\ alimentation}(t) = \frac{\sum_i S_i \tilde{D}_{i,avec\ alimentation}(t) \int_0^t \mathcal{P}_{i,th}(u) du}{\sum_i S_i \int_0^t \mathcal{P}_{i,th}(u) du} \quad (3.19)$$

Une fois le régime d'équilibre atteint, l'intégrale de la puissance thermique dissipée par l'isotope i , $S_i \int_0^\infty \mathcal{P}_{i,th}(u) du$, est proportionnelle au taux de disparition de l'isotope i , c'est à dire à $\lambda_i N_i$. En passant à la limite $t \rightarrow /infy$, nous déduisons une expression reliant les consommations de neutron par fission des différents isotopes en régime stationnaire (avec une alimentation continue constante) :

$$\tilde{D}_{mélange} = \frac{\sum_i \tilde{D}_i \lambda_i N_i}{\sum_i \lambda_i N_i} \quad (3.20)$$

dans laquelle chaque valeur de consommation de neutron par fission correspond au cas limite $t \rightarrow \infty$ avec une alimentation continue

On aurait pu obtenir cette relation par intuition puisqu'elle énonce que chaque isotope contribue à la consommation globale de neutrons par fission au prorata du taux de fissions qu'il engendre à un instant t . A l'équilibre ceci se traduit aussi par une contribution de chaque isotope initial au prorata du nombre de noyaux que l'on cherche à incinérer car, par définition, il y a autant de fissions que de noyaux mis dans le système par unité de temps. Il s'agit d'une pondération par la composition des déchets que l'on souhaite fissionner.

Maintenant que nous disposons d'une notion très générale, la consommation de neutrons, il nous faut la relier aux différentes grandeurs utilisées en physique des réacteurs. Ceci va nous permettre de découvrir des facilités opératoires qui donnent à ce \tilde{D} un attrait supplémentaire.

3.1.2.2 Lien avec le facteur η

La première notion introduite en physique des réacteurs est le facteur de multiplication k_{eff} (cf. annexe A.2 pour sa signification). Mais ce facteur tient déjà compte d'un schéma précis de réacteur, or la démarche suivie ici (voir section 2.3) consiste à étudier les possibilités d'incinération en faisant le moins possible référence à des configurations et géométrie de cœur préalablement déterminées. Nous allons d'abord travailler avec le facteur de multiplication η , qui correspond au k_{eff} en ne prenant en compte que les réactions faisant intervenir des actinides, laissant de côté les captures par les produits de fission et les matériaux de structure ainsi que les fuites :

Définition

$$\eta(t) = \frac{\sum_j (\nu_j \sigma_j^{(f)} + 2 \cdot \sigma_j^{(n,2n)}) \phi_0 N_j(t)}{\sum_j (\sigma_j^{(f)} + \sigma_j^{(n,2n)} + \sigma_j^{(c)}) \phi_0 N_j(t)} \quad (3.21)$$

Une simple manipulation algébrique conduit à :

$$\frac{1 - \eta(t)}{\eta(t)} = \frac{\sum_j ((1 - \nu_j) \sigma_j^{(f)} - \sigma_j^{(n,2n)} + \sigma_j^{(c)}) \phi_0 N_j(t)}{\sum_j (\nu_j \sigma_j^{(f)} + 2 \cdot \sigma_j^{(n,2n)}) \phi_0 N_j(t)} \quad (3.22)$$

Afin de retrouver une expression proche de 3.15, il faut introduire le nombre moyen de neutrons produits dans le système rapporté au taux de fission :

$$\bar{\nu}(t) = \frac{\sum_j (\nu_j \sigma_j^{(f)} + 2 \sigma_j^{(n,2n)}) \phi_0 N_j(t)}{\sum_j \sigma_j^{(f)} \phi_0 N_j(t)} \quad (3.23)$$

Ici encore, par analogie avec la consommation de neutrons, $\bar{\nu}_i$ est le nombre moyen de neutrons produits tout au long de la chaîne issue de l'isotope i , à chaque fission, quel que soit le noyau qui fissionne. Comme pour le \tilde{D} , nous cherchons à condenser une arborescence en un seul noyau, le noyau "père" i , en lui donnant les caractéristiques globales de la chaîne. Notons que la relation $D > -\bar{\nu}$ est toujours vérifiée : le système ne peut produire plus de neutrons toutes réactions prises en compte ($-D$) qu'il n'en produit par fissions et par réactions (n,2n) ($\bar{\nu}$).

À l'équilibre, on peut le mettre sous une forme identique à l'expression statique de la consommation de neutrons par fission :

$$\bar{\nu} = \sum_j P_{i \rightarrow j} \{ \tilde{R}_{i \rightarrow j} + \sum_k P_{j \rightarrow k} \{ \tilde{R}_{j \rightarrow k} + \dots \} \} \quad (3.24)$$

(cf. formule 3.1). Les coefficients $\tilde{R}_{j \rightarrow k}$ sont donnés table 3.2 et correspondent au nombre de neutrons produits pour chaque interaction.

processus	$\tilde{R}_{j \rightarrow k}$
fission	ν_j
(n,2n)	2
décroissance	0
(n, γ)	0

TAB. 3.2: Coefficients d'arborescence pour le calcul de $\bar{\nu}$.

Cette dernière expression montre bien que le schéma de calcul est identique pour la consommation de neutrons par fission et le nombre moyen de neutrons produits par fission (dans la chaîne). Nous avons donc introduit une notion dynamique qui est le prolongement de la notion statique. Cette extension est faite pour la consommation de neutrons et pour le nombre moyen de neutrons par fission, nous verrons plus loin qu'il est possible de l'étendre à la masse.

Revenons maintenant au facteur de multiplication η . Nous pouvons déduire des formules 3.15, 3.22 et 3.23 la relation suivante :

$$\eta(t) = \frac{\bar{\nu}(t)}{\bar{\nu}(t) + \tilde{D}(t)} \quad (3.25)$$

Celle-ci permet de relier très facilement la consommation de neutrons par fission au facteur de multiplication. Nous avons vu que la définition de $\tilde{D}(t)$ n'était fonction que de la composition isotopique à l'instant t , et qu'il en est de même pour $\eta(t)$. Cette relation est donc valable à tout instant, quel que soit le régime de chargement utilisé pour aboutir à tel ou tel état.

3.1.2.3 Introduction de réactions “parasites”

Si l'on souhaite maintenant tenir compte des captures par les matériaux de structure, par les produits de fission, ou des fuites de neutrons hors du cœur, il faut utiliser l'expression de k_{eff} :

Définition

$$k_{eff}(t) = \frac{\sum_j (\nu_j \sigma_j^{(f)} + 2 \cdot \sigma_j^{(n,2n)}) \phi_0 N_j(t)}{\sum_j (\sigma_j^{(f)} + \sigma_j^{(n,2n)} + \sigma_j^{(c)}) \phi_0 N_j(t) + \alpha(t)} \quad (3.26)$$

en notant $\alpha(t)$ la somme des neutrons perdus dans ces réactions “parasites” par unité de temps (cf. annexe A.2), réactions qui ne conduisent pas à des fissions. Ce terme peut bien entendu varier au cours du temps, notamment par l'accroissement du nombre de captures par les produits de fission au fur et à mesure que le taux de combustion augmente.

En réitérant la même manipulation algébrique que pour $\eta(t)$ (cf. formules 3.21 et 3.22), nous retrouvons la formule :

$$\frac{1 - k_{eff}(t)}{k_{eff}(t)} = \frac{\tilde{D}(t) + \tilde{\alpha}(t)}{\bar{\nu}(t)} \quad (3.27)$$

avec $\tilde{\alpha}(t) = \frac{\alpha(t)}{\sum_j \sigma_j^{(f)} \phi_0 N_j(t)}$ qui n'est autre que le nombre de neutrons perdus par ces réactions “parasites” par fission dans le cœur.

Puisque $\bar{\nu}(t)$ est fonction uniquement des actinides, l'ajout de processus additionnels par l'intermédiaire de $\alpha(t)$ se fait en calculant la somme $\tilde{D}(t) + \tilde{\alpha}(t)$, qui n'est autre que la somme des consommations de neutrons par fission. Il s'agit donc d'une règle d'additivité : tout processus qui ne conduit pas à des fissions est pris en compte en ajoutant sa contribution à la consommation de neutrons par fission. A titre d'exemple, si l'on souhaite tenir compte des produits de fission, il suffit de calculer le nombre de réactions de capture par unité de temps par les PF dans la totalité du système, donc le taux de neutrons perdus (1 neutron par capture), et de le diviser par le taux de fission. Ce quotient vient alors s'ajouter à la valeur précédente de $\tilde{D}(t)$ pour avoir le nouveau bilan neutronique.

Cette règle d'additivité présente aussi l'avantage de découpler l'impact des différentes réactions additionnelles. En effet, la variation de k_{eff} engendrée par l'introduction dans le calcul des produits de fission dépend de la valeur du coefficient de multiplication, donc des réactions déjà prises en compte. Avec la consommation de neutrons, le terme $\tilde{\alpha}(t)$ ne dépend que du taux de réaction et du taux de fission : il est indépendant des autres processus mis en jeu dans le système.

Nous reviendrons souvent sur cette “additivité” de la consommation de neutrons car elle permet de mieux cerner le système dans son ensemble et l'impact précis de chaque processus : produits de fission, matériaux de structure ou fuites.

Et il faut bien insister sur le fait que cette correspondance est dynamique, compte-tenu des définitions ci-dessus, et valable à tout instant (pas uniquement dans la limite du régime d'équilibre).

Finalement, il existe dans la littérature une quantité G [73, 76] qui traduit la consommation de neutrons une fois toutes les réactions “parasites” intégrées. Il s'agit, avec nos notations, de la somme $D + \tilde{\alpha}$. Nous adopterons cette notation, d'où l'expression :

$$k_{eff} = \frac{\bar{\nu}}{\bar{\nu} + G} \quad (3.28)$$

La consommation de neutrons présente au moins deux avantages :

1. une facilité opératoire non négligeable, rendant la compréhension physique du système plus aisée ;
2. une signification physique précise dans le cadre de la transmutation des déchets nucléaires.

Nous utiliserons donc cette notion de consommation de neutrons par fission par la suite plutôt que le facteur de multiplication, ne faisant référence à ce dernier qu'en certains cas précis afin de donner des ordres de grandeur.

Une application triviale de ces formules permet d'obtenir une relation simple entre le k_{eff} et le facteur η sous la forme :

$$k_{eff} = \frac{\eta}{1 + \eta \frac{\tilde{\alpha}}{\bar{\nu}}} \quad (3.29)$$

Pour mémoire, il est admis que, dans les réacteurs actuels et le réacteur à sel fondu d'Oak Ridge, les captures parasites par les matériaux de structure et les fuites hors du cœur entraînent une consommation de neutrons évaluée à $\tilde{\alpha} \approx 0,3 - 0,4$ neutrons par fission [52, 73, 76]. Il sera intéressant d'utiliser cet ordre de grandeur pour évaluer le bilan neutronique complet d'un réacteur hybride. Mais pour accéder aux tailles des installations, nous utiliserons un troisième modèle, celui du cœur, qui permettra aussi d'évaluer plus précisément ces pertes par réactions parasites et par fuites⁷ (voir section 3.4).

Dans un réacteur hybride, sous-critique, la formule 3.28 montre que l'on dispose d'un certain nombre de neutrons par fission supplémentaires par rapport à un réacteur critique :

$$G = \bar{\nu} \left(\frac{1}{k_{eff}} - 1 \right) \quad (3.30)$$

La situation critique correspond à $k_{eff} = 1$ soit $G = 0$, alors qu'un réacteur sous-critique est tel que $G > 0$: c'est la source de spallation qui comble le déficit en neutrons permettant d'assurer l'équilibre neutronique.

Nous retrouvons ainsi la formule classique [14] obtenue par des séries géométriques.

k_{eff}	G
0,95	0,16
0,90	0,33
0,85	0,53

TAB. 3.3: Correspondance entre G et k_{eff} pour $\bar{\nu} \approx 3$.

Nous avons, tableau 3.3, des exemple de correspondance entre les deux notions, pour $\bar{\nu} \approx 3$ afin de fixer les idées. Ceci donne une indication sur la marge apportée par la source de spallation

⁷ L'étude de ces captures parasites par le modèle simple de cœur qui suit nous permet de montrer que les pertes sont au moins de 0,3 neutrons par fission et peuvent être nettement plus importantes. Nous reviendrons plus longuement sur ce point par la suite.

sur le plan neutronique. Nous verrons plus loin les contreparties que cette marge implique en terme de distribution spatiale de puissance.

Par la suite, afin de simplifier les notations, nous n'utiliserons que la notation D pour désigner la consommation de neutrons, que le régime soit statique ou dynamique, en précisant alors les conditions exactes de chargement.

3.1.3 Résultats

Afin de déterminer les ordres de grandeurs, nous allons examiner la consommation de neutrons de quelques isotopes. Il n'est pas question ici d'exposer l'ensemble des résultats pour les différents scénarios du parc de réacteurs critiques - ces résultats seront donnés dans les chapitres consacrés à l'étude de l'incinération (avec ou sans recyclage) -, mais de donner des exemples de bilans neutroniques en fonction du temps et du flux. Nous distinguerons toutefois les deux cas particuliers déjà évoqués : sans alimentation et avec une alimentation continue et constante.

3.1.3.1 Deux exemples

Nous allons examiner le bilan neutronique de deux isotopes : le ^{239}Pu et le ^{244}Cm pour illustrer le comportement d'un noyau fissile et d'un noyau fertile. Le premier est l'isotope principal des scénarios cycle ouvert, MOX1 et MOX2 et, à ce titre, jouera un rôle important dans l'évolution du mélange. Le second est surtout important en spectre thermique : nous nous apercevrons que cet isotope est central dans tous les problèmes d'incinération. Il conduit à des comportements de saturation en combustible solide, et constitue l'essentiel de la masse en combustible liquide.

Sous irradiation par un flux de 10^{15} n/cm²s en spectre rapide, sans alimentation, le ^{239}Pu est producteur de neutrons (cf. figure 3.6), mais cette production baisse au cours du temps (D augmente) car la composition isotopique se concentre progressivement en isotopes fertiles consommateurs de neutrons.

Dans le cas d'une alimentation, nous avons retenu le schéma⁸ :

- chargement initial de 1 tonne dudit isotope,
- chargement en continu équivalent à 0,4 t/an,

toujours sous un flux de 10^{15} n/cm²s.

Ici encore, le bilan neutronique du mélange se dégrade au cours du temps (D augmente), tout en restant très important : la proportion de ^{239}Pu diminue au fur et à mesure que l'équilibre s'établit et ce malgré l'alimentation continue en ^{239}Pu . C'est le caractère fissile du noyau initial qui conduit à ce comportement. Le régime d'équilibre ou tout régime intermédiaire a un bilan neutronique moins favorable que le mélange initial. La valeur asymptotique est $D = -1,45$. La valeur donnée par Mlle. Uematsu [48] est de $D = -1,46$ pour un RNR avec un combustible oxyde. Les différences sont négligeables.

Irradié dans un spectre thermique et sans alimentation, ce comportement de noyau fissile s'observe aussi mais sur des durées nettement plus courtes, ≈ 300 jours, pendant lesquelles le ^{242}Pu et l' ^{243}Am s'accumulent portant la valeur de D à $+6,7$. Le mélange se concentre ensuite sur les isotopes du curium, plus fissiles, vers 3200 jours, avant que le bilan neutronique ne se

8. Les valeurs absolues des masses chargées sont sans importance ici, seul le rapport entre charge initiale et taux de chargement continu intervient dans la dynamique observée.

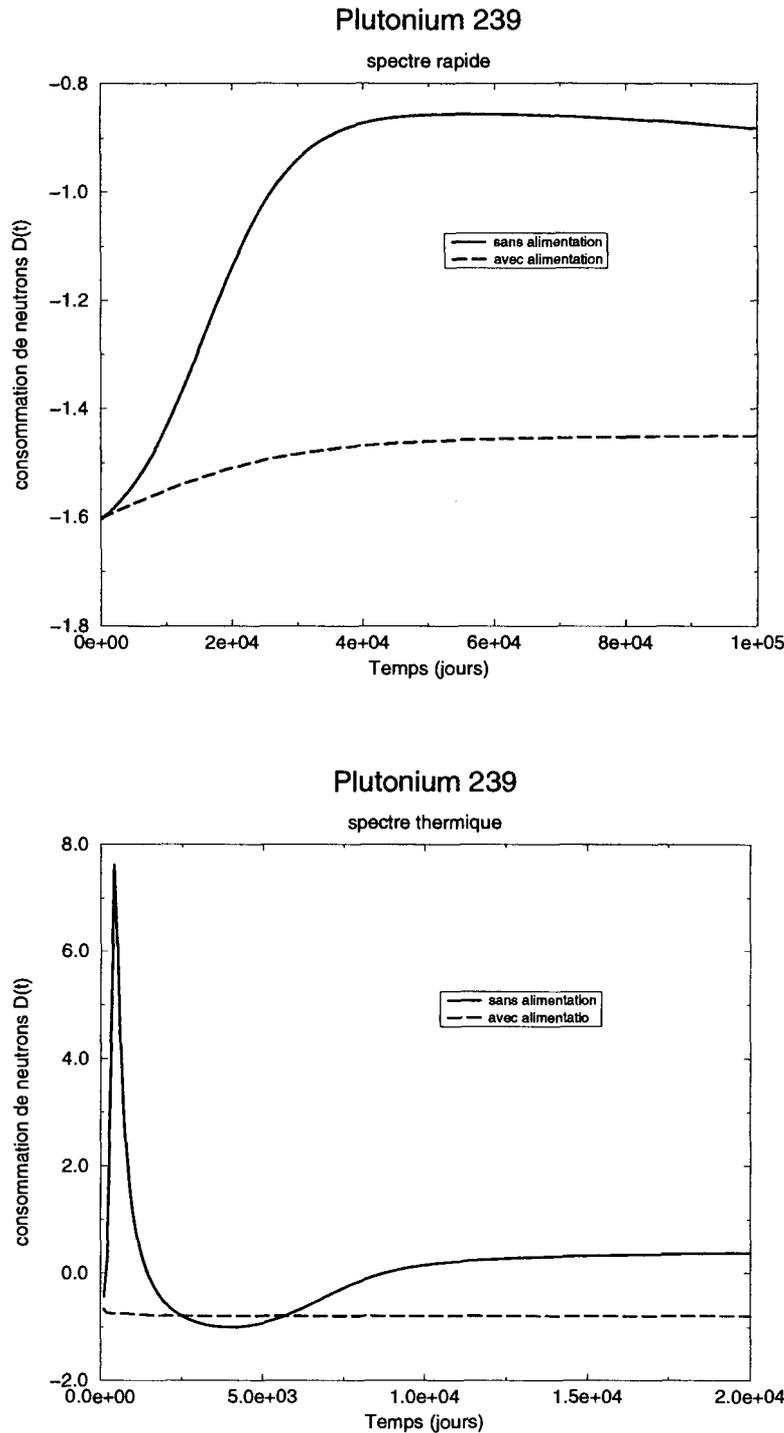


FIG. 3.6: La consommation de neutrons du ^{239}Pu , sous un flux de $10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$, est caractéristique d'un noyau fissile. Le mélange initial est très producteur de neutrons et ce bilan neutronique se dégrade au cours du temps avec l'apparition d'isotopes moins producteurs de neutrons. Ceci explique les différences entre avec et sans alimentation. Dans le premier cas, la concentration en isotopes fissiles est maintenue à un niveau élevé par l'alimentation. Dans le cas du spectre thermique, ce phénomène est rapidement supplanté par l'apparition des isotopes impairs, fissiles, du curium après quelques centaines de jours d'irradiation.

dégrade à nouveau. Les différences de constantes de temps entre les deux spectres sont dues aux sections efficaces importantes des isotopes du plutonium et de l'américium.

Si le mélange est alimenté, un comportement de noyau fertile est observé (cf. cas du ^{244}Cm à venir), dû à l'accumulation d'isotopes pairs du curium. La phase "fissile", correspondant à un moins bon bilan neutronique, est masquée par l'apparition des isotopes fertiles. Ce phénomène est intimement lié au niveau de flux 10^{15} n/cm²s qui réduit les constantes de temps habituelles en spectre thermique. La valeur d'équilibre de la consommation de neutrons est $D = -0,79$. Les résultats donnés dans la thèse de Mlle. Uematsu [48] est $D = -1,04$ pour un spectre très thermalisé et $D = -0,83$ pour un spectre issu d'un réacteur REP-N4. Ces écarts ont deux origines :

- le spectre que nous avons retenu ne correspond à aucun de ces deux spectres car l'objectif poursuivi n'est pas le même ;
- les valeurs indiquées dans cette référence sont inexactes quant au spectre très thermalisé comme l'ont déjà souligné MM. Iwasaki et Hirakawa [75].

Un noyau fertile, le ^{244}Cm , a une évolution toute autre (cf. figure 3.7). Le mélange initial, en spectre rapide, est producteur de neutrons, $D \approx -1,25$, et son bilan neutronique s'améliore au cours du temps avec l'augmentation de la concentration en ^{245}Cm . Sans alimentation, la concentration en cet isotope fissile finit par décroître au profit des isotopes pairs du curium, moins bons producteurs de neutrons, d'où une hausse importante du facteur D qui dépasse la valeur du mélange initial, en restant toutefois nettement producteur de neutrons.

Avec alimentation, la concentration en ^{245}Cm est maintenue à un niveau élevé par capture de neutrons par le ^{244}Cm , conduisant à une stabilisation du mélange à l'équilibre à un D inférieur à celui du mélange initial après une remontée causée par l'accumulation en ^{246}Cm . La valeur asymptotique est $D = -1,37$. C'est le comportement attendu d'un noyau fertile. Ici encore nous nous trouvons en accord avec les résultats de Mlle. Uematsu pour un spectre RNR à combustible oxyde : $D = -1,39$.

Dans le cas d'une irradiation en spectre thermique, comme pour le ^{239}Pu , le comportement attendu n'est pas visible suite aux faibles constantes de temps mais il existe bien : $D(t = 0) = 1,6$ neutrons par fission. On observe seulement une dégradation du bilan neutronique avec l'apparition de berkélium et de californium. A l'équilibre nous trouvons $D = -1,25$, très différent du spectre très thermalisé ($D = -0,42$ chez Mlle. Uematsu, mais nous avons déjà indiqué que certaines de ces valeurs sont erronées) mais relativement proche du spectre REP-N4 pour lequel $D = -1,24$.

Les constantes de temps, caractérisant l'évolution du système observée, sont relativement grandes en spectre rapide, mais il ne faudrait pas en déduire qu'il en est de même pour le système global, alimenté avec une composition diversifiée de noyaux. Il est possible de changer le rapport entre charge initiale et taux de chargement continu, ce qui intervient très sensiblement sur le temps de mise à l'équilibre en termes de masses (cf. page 92). En effet, les constantes de temps sont déterminées par le produit $\sigma N \phi_0$. Les sections efficaces sont des données physiques, mais il est possible de jouer sur le flux et la masse totale des isotopes, et d'atteindre ainsi plus rapidement le régime d'équilibre. Nous reviendrons sur tous ces problèmes de convergence au chapitre 6 lors de l'étude des régimes transitoires.

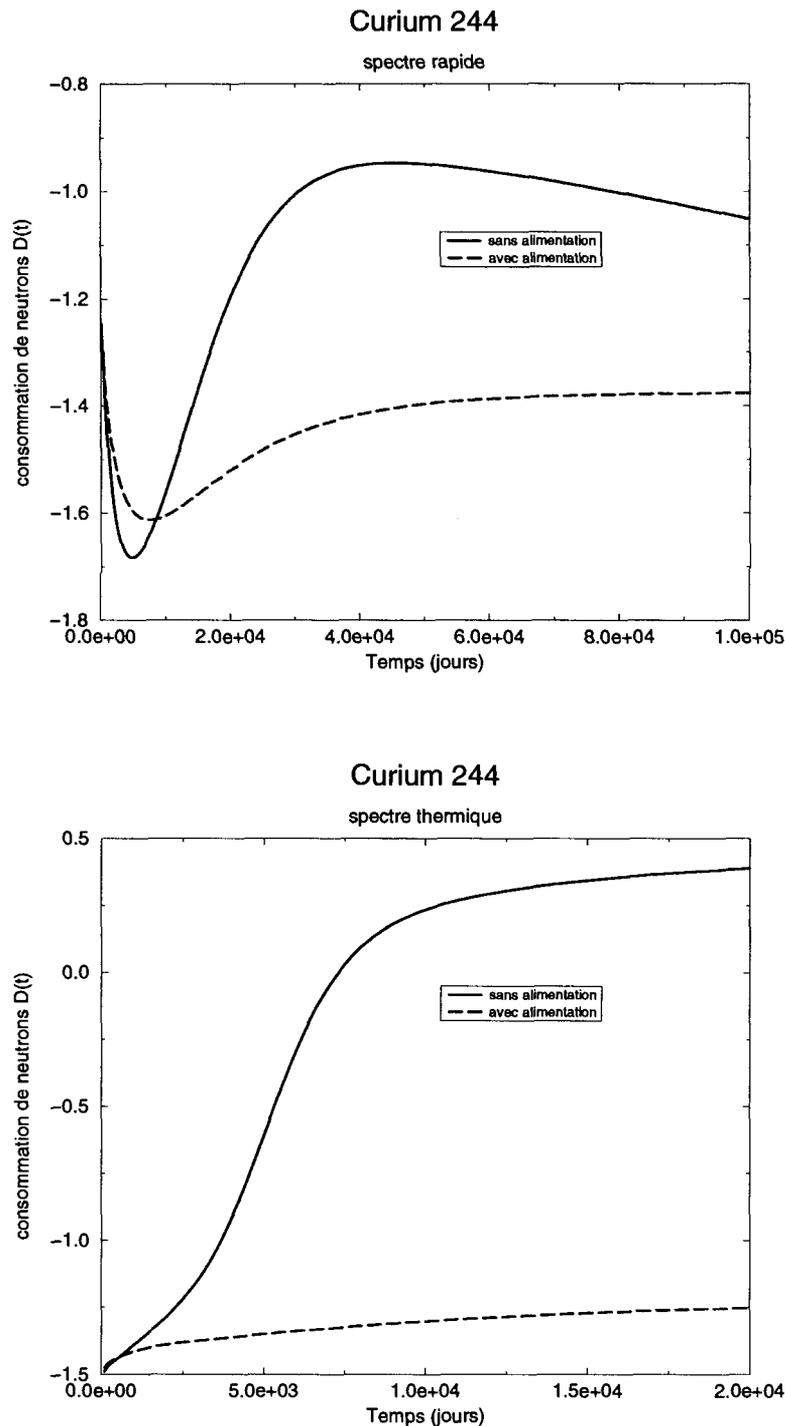


FIG. 3.7: Le bilan neutronique en spectre rapide à 10^{15} n/cm^2s du ^{244}Cm , élément fertile, s'améliore pour des irradiations faibles suite à la formation de ^{245}Cm . Un minimum est atteint, en spectre rapide avec alimentation, aux environs de 8000 jours. Puis la formation des isotopes pairs du curium conduit à une dégradation du bilan neutronique, qui demeure très négatif. Une différence significative apparaît entre les régimes avec et sans alimentation, induite par le maintien à un niveau élevé de la concentration en noyaux fissiles. Une irradiation en spectre thermique sous un flux de 10^{15} n/cm^2s masque le comportement fertile car les constantes de temps sont très réduites. On constate une dégradation progressive, avec et sans alimentation, du bilan neutronique due à la transmutation du curium en éléments plus massifs.

Après avoir précisé la dynamique de mise à l'équilibre dans deux cas typique, il est intéressant d'analyser la variation du bilan neutronique en fonction du flux (cf. figures 3.8).

Le bilan neutronique décroît (*i.e.* $D(t)$ décroît) quand la valeur du flux augmente pour les deux isotopes ^{239}Pu et ^{244}Cm , quel que soit le spectre. Au fur et à mesure de l'augmentation de ce flux, les désintégrations deviennent de moins en moins prépondérantes dans l'arborescence (cf. figure 3.1) au profit des réactions de capture et de fission. La baisse que l'on observe peut être très significative, comme dans le cas du ^{244}Cm en spectre rapide pour lequel le passage d'un flux de 10^{14} n/cm²s à un flux de 10^{15} n/cm²s permet de gagner 1 neutron par fission. La raison principale en est la durée de vie du ^{244}Cm : 18,7 ans. Le bénéfice dans le cas du ^{239}Pu est moins important mais reste sensible.

Le spectre rapide est presque toujours plus producteur de neutrons que le spectre thermique. Pour le ^{239}Pu , nous observons un écart d'environ 0,4. Pour le ^{244}Cm , le spectre thermique produit plus de neutrons pour les faibles flux, jusqu'à $7 \cdot 10^{14}$ n/cm²s, à partir duquel le bilan neutronique "sature".

Les variations du bilan neutronique mises en évidence ci-dessus ne tiennent pas compte des incertitudes sur les sections efficaces des différents isotopes. Nous avons déjà évoqué cet aspect section 2.3.2.3. Nous n'examinerons donc pas en détail les fluctuations du bilan neutronique pour tous les corps à transmuter, mais nous pouvons étudier les deux cas particuliers ^{239}Pu et ^{244}Cm .

Les fluctuations de sections efficaces peuvent être considérées comme décorréelées à ce stade⁹. Nous les prenons au hasard dans une plage $[1-x; 1+x]$ suivant une distribution plate. Ceci conduit à une estimation par excès de la distribution du bilan neutronique, puisque les mesures de sections efficaces sont *a priori* distribuées suivant une gaussienne autour de la valeur estimée grâce aux bases de données. Les calculs sont donc réalisés avec une distribution plate sur $\pm 20\%$ ($x = 0,2$) afin de fixer les idées, en prenant un flux de $3 \cdot 10^{15}$ n/cm²s pour les deux spectres, et sont illustrés par les figures 3.9 et 3.10.

Nous retrouvons la valeur moyenne adéquate et les écarts-types sont :

Isotopes	Thermique	Rapide
^{239}Pu	0,12	0,053
^{244}Cm	0,068	0,037

Ces valeurs donnent une indication de l'incertitude sur les bilans neutroniques. Nous constatons une très nette différence entre les deux isotopes, principalement pour le spectre thermique. Pour comprendre la physique derrière ces variations, il faut revenir aux sections efficaces et aux durées de vie. En effet, le bilan neutronique est dicté par les probabilités de transmutation $P_{j \rightarrow k}$. Quand la durée de vie est négligeable devant les autres voies, il suffit de comparer les sections efficaces de capture et de fission. Pour le ^{239}Pu nous avons en spectre thermique 802 b et 475 b pour la fission et la capture respectivement. Le rapport fission sur capture varie entre 2,53 et 1,13, pour $x = 0,2$. Les rapports de branchements sont très différents d'un cas à l'autre, et s'approchent de 1, conduisant à une variation importante du bilan neutronique final.

A l'inverse, le ^{244}Cm , pour lequel le rapport fission sur capture est toujours inférieur à 0,1. La capture reste la voie prédominante quelle que soit l'incertitude sur les sections efficaces

9. Lors de l'étude de la cohérence du schéma de calcul, nous verrons que les sections efficaces concernant un isotope sont corrélées, ce qui conduit à une distribution du bilan neutronique plus étroite pour une même plage d'incertitude $[1-x; 1+x]$.

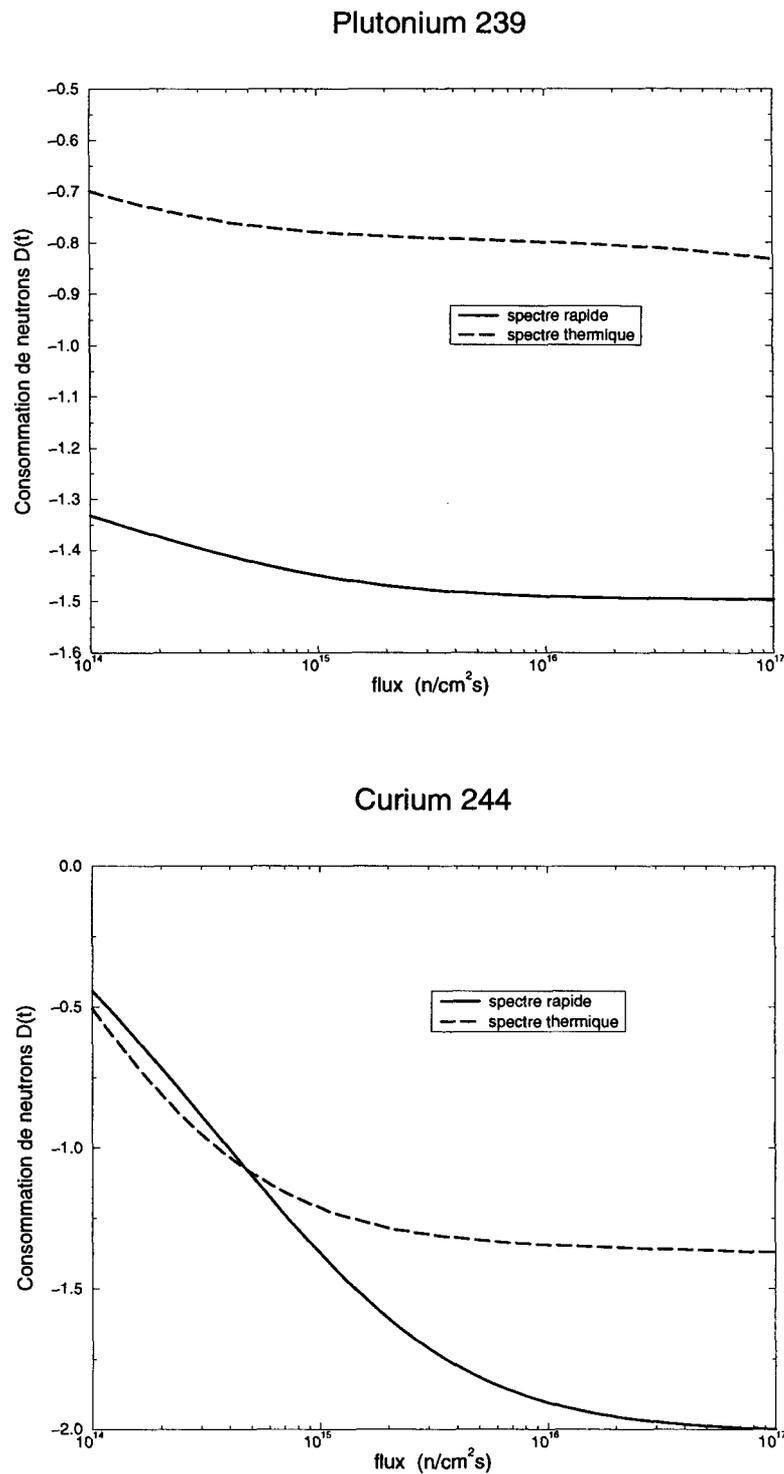


FIG. 3.8: Le bilan neutronique du ^{239}Pu et du ^{244}Cm s'améliore quand le flux augmente : une baisse importante pour le ^{244}Cm , de l'ordre de 1,5 neutrons par fission, soit 50% du nombre total de neutrons disponibles, qui s'explique par la durée de vie de l'isotope, 18,7 ans. Le spectre rapide est souvent plus producteur de neutrons que le spectre thermique. On observe aussi la saturation de D en fonction du flux, au fur et à mesure que les réactions de désintégrations deviennent négligeables.

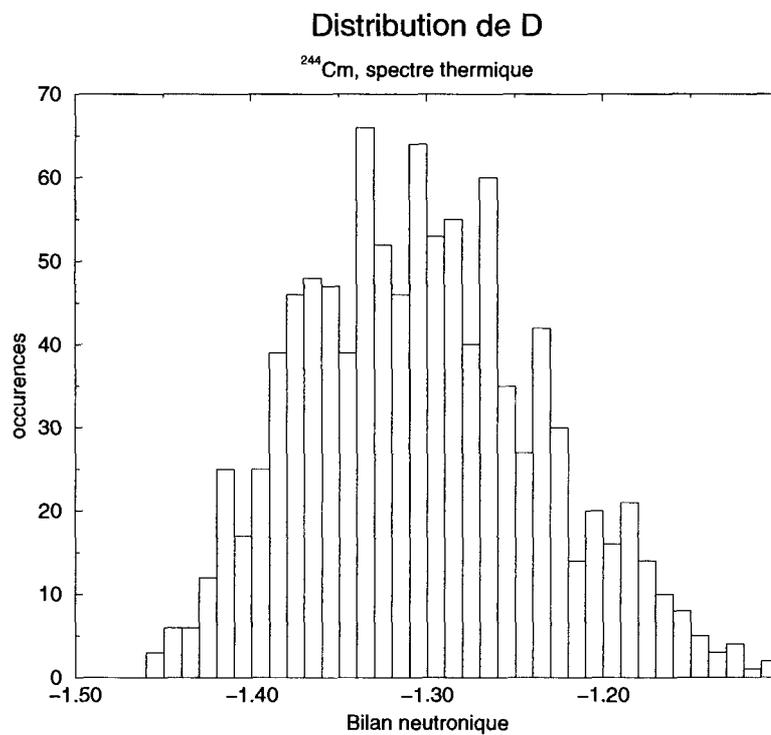
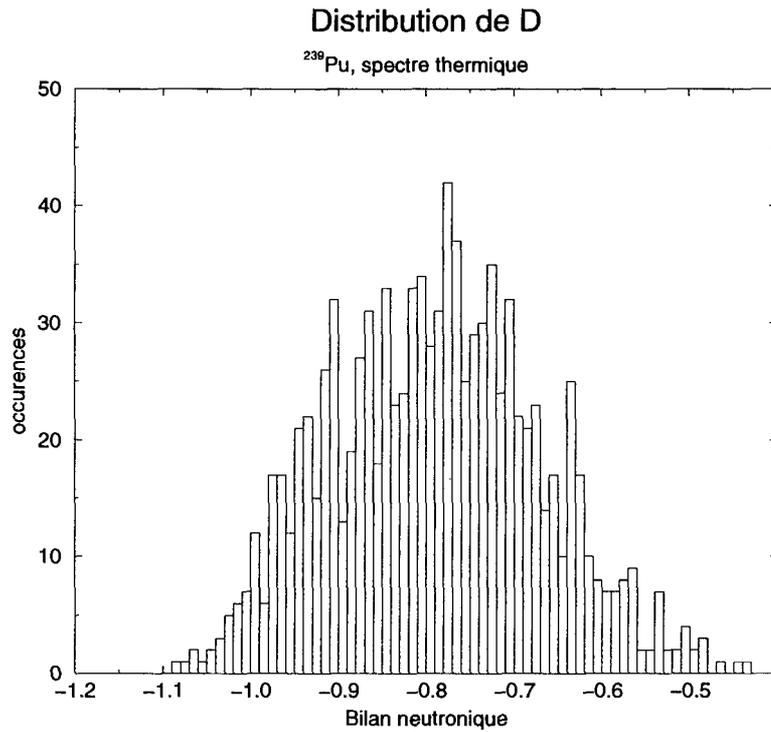


FIG. 3.9: En se donnant une barre d'erreur de 20% sur toutes les sections efficaces, nous obtenons une distribution de bilan neutronique. L'écart-type est plus faible pour le ²⁴⁴Cm que pour le ²³⁹Pu en raison des rapports "fission sur capture", relativement proche de 1 dans le second cas.

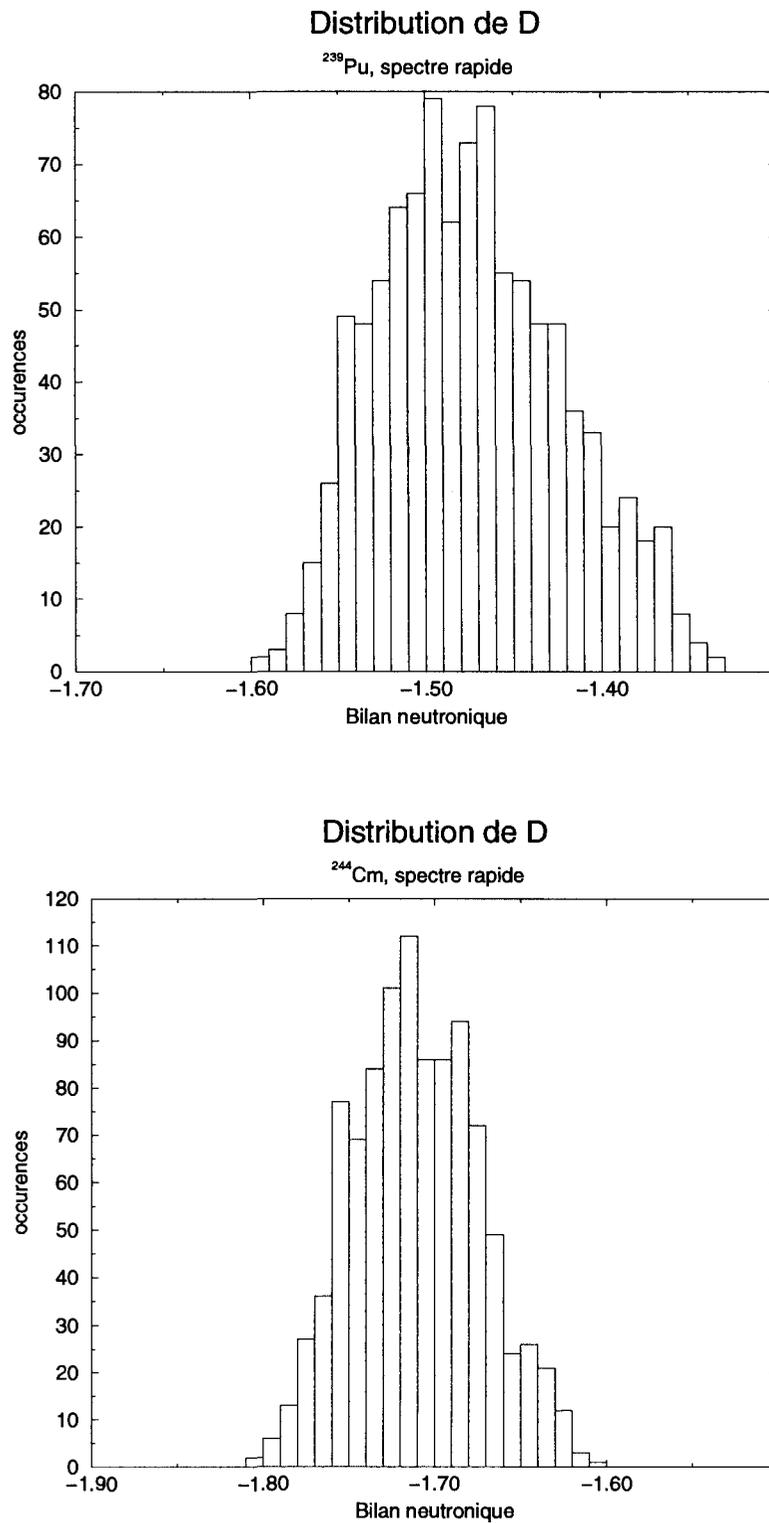


FIG. 3.10: L'incertitude en spectre rapide est plus faible qu'en spectre thermique pour les deux isotopes ²³⁹Pu et ²⁴⁴Cm. L'explication pour le ²³⁹Pu vient d'un meilleur rapport fission sur capture. Pour le ²⁴⁴Cm, il faut tenir compte de la durée de vie de l'isotope, du même ordre de grandeur que le temps caractéristique des réactions nucléaires.

(inférieure à 20%). Il faut alors examiner le ^{245}Cm qui est plus fissile encore que le ^{239}Pu : la répartition entre les différentes voies varie moins avec l'incertitude dans le cas du ^{245}Cm .

Dans le cas du spectre rapide, la distribution pour le ^{239}Pu s'explique par les mêmes arguments de probabilités entre la fission et la capture. Par contre, dans le cas du ^{244}Cm , pour lequel le rapport fission sur capture est de 0,76, nous constatons que la durée de vie, 18,1 ans, est comparable à la durée caractéristique des réactions nucléaires :

$$\sigma_{\text{capture}} + \sigma_{\text{fission}} = 0,97 \text{ b} \quad \Rightarrow \quad \tau = \frac{1}{\sigma\phi_0} = 11 \text{ ans}$$

L'incertitude sur les sections efficaces ne se traduit donc pas directement comme nous pouvons nous y attendre avec une fission et une capture presque équiprobables, mais est diminuée en raison d'une durée de vie proportionnellement plus courte que dans les cas précédents :

$$P_{j \rightarrow k} = \left\{ \begin{array}{l} \frac{\sigma_{j \rightarrow k} \phi_0}{\sum_k \sigma_{j \rightarrow k} \phi_0 + \frac{\ln 2}{T_{j,1/2}}} \\ \frac{\ln 2}{T_{j,1/2}} \\ \frac{\ln 2}{\sum_k \sigma_{j \rightarrow k} \phi_0 + \frac{\ln 2}{T_{j,1/2}}} \end{array} \right.$$

Ainsi, nous pouvons dire que l'incertitude sur les sections efficaces se répercute sur le bilan neutronique de manière significative seulement si (i) la durée de vie de l'isotope est négligeable devant les réactions nucléaires et (ii) les processus de capture et de fission ont des sections efficaces comparables.

3.1.3.2 Le cas de l' ^{241}Am

Les bases de données JEF et ENDF fournissent des estimations très différentes de la section efficace de capture de l' ^{242g}Am à 0,025 eV :

$$\begin{array}{l} 5500 \text{ barns pour JEF} \\ 250 \text{ barns pour ENDF} \end{array}$$

En utilisant la deuxième base de données pour calculer la section efficace de capture compte-tenu du spectre thermique, nous trouvons $\sigma^{(c)}(^{242g}\text{Am}) = 97,6$ barns, la première conduisant à 2042 barns.

Des comportements du bilan neutronique très différents apparaissent en fonction du flux (cf. figure 3.11). Dans un cas, celui d'une section efficace élevée, l' ^{241}Am est presque toujours un consommateur de neutrons et sa destruction en réacteur hybride à spectre thermique peut être compromise car le bilan neutronique total serait alors trop défavorable. Par contre, si la section efficace est faible, cet isotope devient producteur de neutrons à partir de $6 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$. Ce phénomène provient des probabilités des voies de fission et de capture au niveau de l' ^{242g}Am dont la durée de vie n'est que de 16 heures.

Cette constatation a conduit à la mesure expérimentale de la section efficace de capture à l'Institut Laue Langevin par le groupe DSM/DAPNIA. Des échantillons d' ^{241}Am ont été

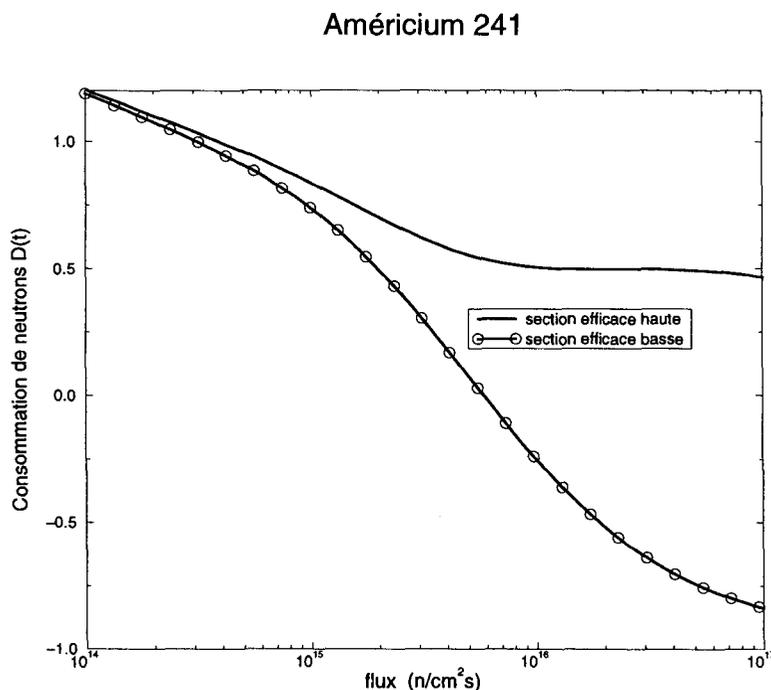


FIG. 3.11: Courbe de D pour l' ^{241}Am en spectre thermique pour les deux bases de données. Nous observons des comportements très différents en fonction de la valeur de la section efficace de capture de l' ^{242g}Am . Pour la section efficace forte, 2042 barns, l' ^{241}Am est consommateur de neutrons, tandis que pour la valeur faible, 97,6 barns, il devient producteur de neutrons à partir de $6 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$.

irradiés sous un haut flux thermique¹⁰. La mesure de la composition isotopique des actinides produits en fonction du temps d'irradiation a permis de remonter à la section efficace de capture. L'ensemble de la démarche expérimentale et des analyses est décrit dans la publication associée B.

La valeur expérimentale trouvée correspond à l'estimation basse de la section efficace de capture : l' ^{241}Am est donc producteur de neutrons pour un flux supérieur à $6 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$.

3.2 Généralisation à d'autres grandeurs

La notion de consommation de neutrons par fission pour un ensemble de noyaux étant maintenant clairement définie, il sera possible d'étendre le raisonnement à d'autres grandeurs, comme la masse d'actinides à l'équilibre. Nous allons aussi calculer le taux de réactions de captures par les produits de fission afin de quantifier leur impact sur le bilan neutronique.

3.2.1 La masse d'actinides à l'équilibre

Nous avons défini la consommation de neutrons comme le rapport du taux de consommation de neutrons et du taux de fission. Cette grandeur ne dépend que du vecteur isotopique à l'instant

10. L'ILL dispose d'un réacteur comprenant un assemblage combustible entouré d'eau lourde.

t et pas de l'histoire du système. De la même manière, nous pouvons accéder à la masse des actinides présents à cet instant t .

Une nouvelle fois, nous pouvons décomposer la masse en fonction des solutions élémentaires sans alimentation des équations de Bateman pour faire apparaître les isotopes "pères". Chaque solution élémentaire constitue la "fonction masse" de l'isotope i considéré pour un flux et un spectre donné.

Nous ne poursuivrons pas plus loin cette discussion en tout point similaire à celle sur la consommation de neutrons. Il suffit de noter qu'à l'équilibre, dans les cas d'une alimentation continue, nous avons un inventaire stationnaire qui dépend du flux, du spectre et des déchets irradiés. Il devient alors possible de donner une définition statique de la masse à l'équilibre au même titre que la consommation de neutrons D (cf. expression 3.1) et le nombre moyen de neutrons par fission $\bar{\nu}$ (cf. formule 3.24) :

$$\mathcal{M}_i = \frac{S_i}{M_i} \left(\hat{R}_i + \sum_j P_{i \rightarrow j} \{ \hat{R}_j + \sum_k P_{j \rightarrow k} \{ \hat{R}_k + \dots \} \} \right) \quad (3.31)$$

dans laquelle $\hat{R}_j = \frac{M_j}{\lambda_j}$ (M_j est la masse molaire) est un facteur de pondération et S_i est l'alimentation de l'isotope i en kg/s. Ces coefficients de pondération sont inversement proportionnels à λ_j . Donc, dans la limite où les voies de décroissance radioactive sont négligeables devant les autres interactions possibles pour les isotopes principaux de la chaîne, la masse totale varie comme l'inverse du flux (cf. figure 3.12).

Cette relation peut aussi se comprendre par l'intermédiaire de la puissance totale. Cette dernière est proportionnelle au flux, au nombre total de noyaux (donc à la masse) et à la section efficace moyenne de fission de ces noyaux. Puisque la puissance totale est une donnée, la masse est inversement proportionnelle au produit du flux par la section efficace moyenne de fission. La présence de cette section efficace explique la non-linéarité des courbes (cf. figure 3.12). En effet, la composition isotopique variant avec le flux, surtout pour le spectre thermique, la section efficace de fission est fonction du niveau de flux.

Globalement, un élément fissile conduit à une masse à l'équilibre plus faible qu'un élément fertile car les voies de capture et de décroissance qui conduisent à l'accumulation de masse, sont relativement moins importantes. Notons aussi que la masse est plus faible en spectre thermique car les valeurs absolues des sections efficaces sont plus élevées que dans le cas d'un spectre rapide.

Disposant des masses à l'équilibre, il ne faut pas oublier la dynamique nécessaire pour atteindre cet équilibre (cf. figure 3.13). Les courbes sont du même type pour les deux spectres, thermique et rapide, mais l'inventaire, plus faible dans le premier cas, permet une convergence plus rapide. Une différence dans la vitesse de convergence apparaît entre l'isotope fissile et l'isotope fertile principalement suite à la réaction de capture supplémentaire nécessaire dans le second cas. Finalement, les inventaires sont très différents entre les deux spectres, conséquence des ordres de grandeurs des sections efficaces, et cela permet d'envisager des combustibles très dilués en spectre thermique. Le rapport des inventaires diminue quand on passe de l'isotope fissile au fertile car les sections efficaces thermiques sont plus faibles pour les isotopes pairs du curium et sont presque du même ordre de grandeur que les sections efficaces en spectre rapide.

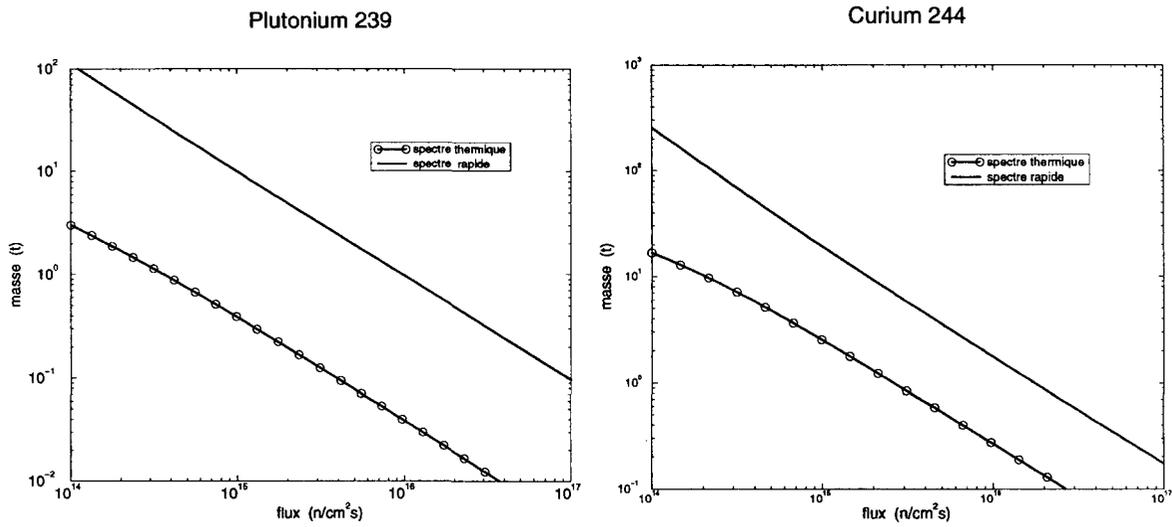


FIG. 3.12: La masse d'actinides à l'équilibre varie comme l'inverse du flux. Les valeurs ont été calculées pour un chargement annuel de 0.4 t. Le rapport des masses entre les deux spectres est dû aux différences de sections efficaces : c'est le taux de réaction qu'il faut maintenir constant (pour avoir le nombre adéquat de fissions) dans le produit $\sigma N \phi_0$. Notons que la masse à l'équilibre d'un élément fissile est plus faible que celle d'un élément fertile.

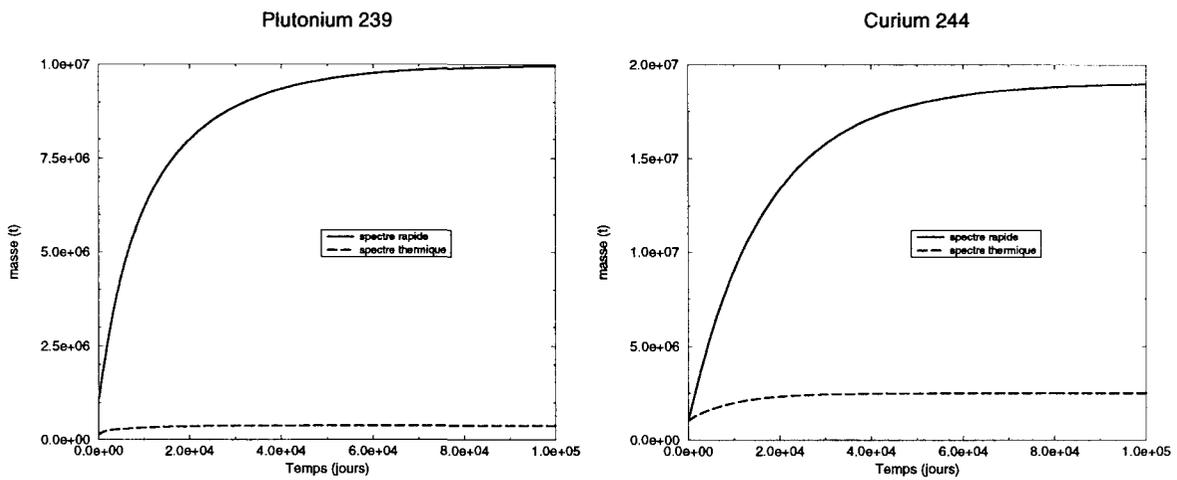


FIG. 3.13: La dynamique d'accumulation de masse est semblable pour les deux spectres. Le niveau asymptotique est déterminé uniquement par le flux, ici $10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$, et par l'alimentation continue, 0,4 t/an. Nous reviendrons plus loin sur la possibilité de modifier le chargement initial, ici de 1 tonne, pour accélérer la convergence.

3.2.2 Les produits de fission

Une fois les actinides caractérisés, il faut déterminer l'influence des captures de neutrons par les produits de fission sur le bilan neutronique. Nous avons montré que la règle de somme de la consommation de neutrons par fission permettait de se contenter d'un calcul du taux de capture par les produits de fission (cf. page 80). Notons que la valeur absolue de la consommation de neutrons par fission de ces produits dépend du taux de fission donc de la puissance totale des réacteurs hybrides. La consommation de neutrons d'une même quantité de PF sera différente pour chaque scénario en fonction de la masse d'actinides à détruire et du taux d'incinération atteint.

Nous avons distingué deux types de produits de fission :

- les produits de fission **PF** (quelle que soit leur durée de vie) qui résultent de l'incinération des actinides ;
- les produits de fission à vie longue **PFVL** provenant de l'ensemble des réacteurs nucléaires (critiques et hybrides) dont on décide l'incinération pour réduire la radiotoxicité des produits stockés.

3.2.2.1 Une section efficace moyenne des PF

L'accumulation de produits de fission dans le cœur dégrade le bilan neutronique en introduisant des captures parasites. La consommation de neutrons associée à ces captures nécessite le calcul des taux de réactions. En effet, nous avons :

$$D_{PF} = \frac{\langle \sigma_{PF} \rangle N_{PF} \phi_0}{n_{fission}} \quad (3.32)$$

avec N_{PF} le nombre d'atomes de PF et $n_{fission}$ le taux de fission dans le système. Il est donc commode de disposer d'une section efficace moyenne de capture neutronique par les produits de fission $\langle \sigma_{PF} \rangle$.

Étudions d'abord le cas du spectre thermique. Cette section efficace varie de manière importante avec la fluence¹¹ [16, 77] : plus le taux d'incinération est élevé, plus $\langle \sigma_{PF} \rangle$ est faible. En effet, au début de l'irradiation, des isotopes de fortes sections efficaces sont produits et ils constituent une proportion importante de l'ensemble des produits de fission, conduisant à une section efficace moyenne élevée. Pour une incinération plus poussée, ces éléments sont transmutés en isotopes de moindre section efficace et leur importance diminue, d'où une baisse de $\langle \sigma_{PF} \rangle$. L'exemple le plus caricatural concerne les isotopes ^{135}Xe et ^{149}Sm , mais le mécanisme est très général.

L'illustration de ce phénomène est donnée figure 3.14. Il s'agit de l'incinération de ^{239}Pu dans un spectre thermique à 10^{15} n/cm²s. Plus de 180 produits de fission sont suivis, en tenant compte des rendements de fission et du déplacement des bosses de fission quand le noyau fissionnant devient plus lourd. En effet, les premières fissions sont dues au ^{239}Pu , mais, avec l'accumulation progressive d'isotopes plus lourds, ces isotopes contribuent à la fission et leurs rendements de fission ne sont pas identiques. En suivant ces produits de fission, il est possible d'évaluer la section efficace moyenne et de constater qu'elle décroît avec la durée d'irradiation (cf. figure 3.14). Initialement très élevée à cause de la présence d'isotopes très capturants, elle

11. Ce phénomène ne provient pas de la modification des bosses de fission en (Z,A) au cours du temps, le noyau fissionnant ayant une masse de plus en plus élevée.

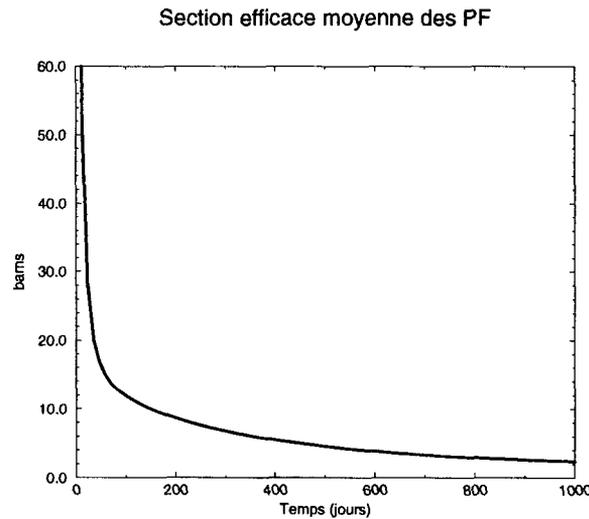


FIG. 3.14: L'étude de l'incinération du ^{239}Pu dans un spectre thermique à $10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$, en tenant compte de 180 produits de fission, montre que la section efficace moyenne des produits de fission décroît avec la durée d'irradiation.

diminue grâce à l'accumulation de produits de fission ayant des sections efficaces plus faibles (leur accumulation étant le résultat d'un taux de réaction moins important).

(Il est possible de faire une constatation physique surprenante quand on examine la probabilité de capture des produits de fission en spectre thermique. Cette probabilité est le produit de la section efficace et de la masse des produits de fission. Elle croît comme attendu au début de l'irradiation. Mais, particularité du spectre thermique sur laquelle nous reviendrons longuement au chapitre 4, le système sature : les actinides ne brûlent plus, ou presque, et la masse de produits de fission stagne. En conséquence, la probabilité de capture par les PF diminue, puisque la section efficace moyenne des produits de fission continue à décroître.)

Le calcul de la valeur de la section efficace moyenne au cours du temps peut aussi se faire à l'aide des probabilités de capture de neutrons par les produits de fission données par Rubbia *et al* [47], en spectre thermique et en spectre rapide, qui se mettent sous la forme :

$$f_{PF} = \frac{\langle \sigma_{PF} \rangle N_{PF}}{\langle \sigma_{PF} \rangle N_{PF} + \langle \sigma N \rangle_{reste}} \quad (3.33)$$

dans laquelle $\langle \sigma N \rangle_{reste}$ est une "section efficace" pour tous les autres processus (actinides, matériaux de structure, fuites, ...) consommant des neutrons. Par ailleurs nous démontrerons (cf. page 100) que cette fraction peut s'écrire :

$$f_{PF} = \frac{D_{PF}}{G + \nu} \quad (3.34)$$

et

$$D_{PF} = \frac{\langle \sigma_{PF} \rangle N_{PF} \phi_0}{n_{fission}} \quad (3.35)$$

avec $n_{fission}$ le nombre de fissions par seconde dans le système¹².

12. Ce nombre de fissions peut être calculé d'au moins deux façons. Si l'on dispose de la puissance thermique

Ainsi, nous obtenons une relation entre la section efficace moyenne (fonction du temps), la probabilité de capture par les PF, le taux d'incinération (par l'intermédiaire de N_{PF}) et le k_{eff} :

$$\langle \sigma_{PF} \rangle = \frac{\nu}{k_{eff}} \cdot \frac{n_{fission}}{N_{PF}\phi_0} \cdot f_{PF} \quad (3.36)$$

Il faut maintenant tenir compte de l'ensemble du système. Dans le cas d'un combustible solide, seront présentes simultanément des "pastilles" plus ou moins irradiées. Les produits de fission du cœur auront donc des origines diverses. Il s'agit de faire la moyenne de la courbe de section efficace moyenne sur des durées d'irradiation importantes. Ainsi, même si les PF produits très tôt dans l'irradiation ont une section efficace importante, il sont proportionnellement peu abondants et leur contribution à la section efficace totale faible. Dans le cas d'un combustible liquide, les produits de fission vont progressivement se diluer dans le sel. A nouveau, nous retrouverons une distribution de PF d'origines diverses, certains juste produits, d'autres présents en cœur depuis un temps plus long. La section efficace moyenne des PF les prend tous en compte.

C. Bowman [61] a conduit une étude similaire dans le but de dimensionner un système particulier. Décrivons rapidement son concept et sa démarche : C. Bowman considère un réacteur à sel fondu sans recyclage dans lequel il détruit les actinides du scénario cycle ouvert. Le système est alimenté en continu et une fraction du sel, actinides et PF compris, sont extraits simultanément. Il a alors établi un temps effectif en cœur pour les produits de fission afin de calculer une "section efficace effective" permettant de tenir compte du prélèvement. En reprenant la liste détaillée des PF des deux bosses de fission et, en envisageant les cas de captures multiples, sur le ^{147}Sm par exemple, il a pu déterminer une section efficace moyenne par atome.

Les deux analyses conduisent à des résultats comparables :

$$\langle \sigma_{PF} \rangle_{th} \approx 6 b \quad (3.37)$$

Nous pouvons utiliser les mêmes méthodes pour le spectre rapide, à la fois à partir des données de Rubbia *et al* [47], et de celles de C. Bowman¹³ [61]. Nous trouvons une section efficace moyenne de :

$$\langle \sigma_{PF} \rangle_{rap} \approx 0,15 b \quad (3.38)$$

Avec cette section efficace, nous serons en mesure de déterminer l'impact des produits de fission sur le bilan neutronique global du système.

Les valeurs numériques de sections efficaces moyennes données ici sont bien sûr approximatives et valables uniquement dans un contexte précis. Remarquons que nous disposons d'un moyen rapide et efficace pour tenir compte d'un changement de $\langle \sigma_{PF} \rangle$. L'expression 3.35 indique que la consommation de neutrons par fission induite par les produits de fission est proportionnelle à la section efficace. ainsi un choix différent de cette dernière se répercute uniquement (et c'est la force de la règle d'additivité, voir page 80) sur D_{PF} . Il est donc possible de

de l'installation \mathcal{P}_{th} en joule, il suffit de prendre 200 MeV par fission. Si nous avons atteint le régime d'équilibre, avec A l'alimentation en déchets en tonnes par an, de masse molaire moyenne \mathcal{M} , nous avons $n_{fission} = \frac{A}{\mathcal{M}} \frac{\mathcal{N}}{31,56}$ où \mathcal{N} est le nombre d'Avogadro. Le facteur numérique transforme les tonnes par an en grammes par seconde.

13. La grande différence entre le spectre thermique et le spectre rapide est que ce dernier ne conduit pas à une baisse de la section efficace moyenne des produits de fission aussi importante. Ceci vient de la plus grande homogénéité des sections efficaces : il n'y a pas d'isotopes aussi importants que l'est le ^{135}Xe en spectre thermique.

reprendre intégralement l'ensemble des résultats qui suivent avec de très légères modifications et des calculs élémentaires. Le nouveau bilan neutronique global est donné par :

$$G' = G + D_{PF} \frac{\langle \sigma_{PF} \rangle' - \langle \sigma_{PF} \rangle}{\langle \sigma_{PF} \rangle} \quad (3.39)$$

3.2.2.2 Les PFVL

Il peut être souhaitable de transmuter certains produits de fission à vie longue issus des réacteurs de puissance, principalement l' ^{129}I , le ^{135}Cs et le ^{99}Tc , afin de réduire les risques radiologiques d'un stockage. La transmutation des PFVL pose un problème très différent de la destruction des actinides. Ces derniers changent de nature après fission, alors que les produits de fission peuvent être transmutés en isotopes à vie plus courte mais, si le séjour en cœur est trop long, ils peuvent redevenir des isotopes à vie longue. Le temps d'irradiation doit donc être optimisé. Chaque incinération est un cas particulier.

Certaines études montrent qu'il est possible en spectre rapide ou avec des assemblages thermalisés, de les transformer en produits à plus courte durée de vie [78, 79] en partant d'images de réacteurs existants, sans toutefois une analyse précise de la dynamique de la transmutation de ces PFVL. Dans cet esprit, il est possible d'appliquer la même méthode que pour les actinides en étudiant le nombre de neutrons D^* nécessaires à leur transmutation, selon le schéma proposé par M. Salvatores [80] :

“in a process of transmutation, all *transmutable* isotopes have to be kept under the neutron flux continuously, while short lived and non-transmutable ones have to be removed during reprocessing” [80]

En utilisant ce critère, nous considérerons que les PFVL sont gérés indépendamment des actinides : les barreaux ou canaux contenant les PFVL et les actinides seront indépendants dans le cœur permettant des taux de renouvellement différents, afin que les fluences soient adaptées. Les résultats en nombre de neutrons par transmutation D^* sont donnés tableau 3.4 dans le cadre d'une transmutation en REP-UOX.

Isotope	D^*
^{93}Zr	2,01
^{99}Tc	1,01
^{107}Pd	2,04
^{129}I	1,008
^{135}Cs	1,002

TAB. 3.4: Nombre de neutrons nécessaires pour la transmutation des PFVL [80].

Pour les principaux isotopes qui interviendront par la suite, à savoir le ^{99}Tc , l' ^{129}I et le ^{135}Cs , les chaînes isotopiques formées sous irradiation sont toutes des cas d'école : une capture permet de produire un isotope à durée de vie courte (^{100}Tc : 15,8 s ; ^{130}I : 12,4 h ; ^{136}Cs : 19 s) dont la décroissance conduit à un isotope stable. Ainsi, quel que soit le spectre considéré, le nombre de neutrons nécessaires à la transmutation de ces PFVL est constant.

La transmutation de N_i noyaux de l'isotope i conduit à la consommation suivante de neutrons par fission :

$$D_{PFVL,i} = D_i^* \cdot \frac{\langle \sigma_i^{(c)} \rangle N_i \phi_0}{n_{fission}} \quad (3.40)$$

dans laquelle $n_{fission}$ est le taux de fission du système.

Le tableau 3.4 montre que la transmutation du ^{135}Cs est envisageable, au même titre que celle de l' ^{129}I et du ^{99}Tc , mais il ne faut pas oublier que d'autres isotopes du césium sont produits dans les réacteurs, essentiellement les isotopes ^{133}Cs (stable) et ^{137}Cs ($T_{1/2} \approx 30$ ans). L'isotope à vie longue ne représente que 10% de la masse de cet élément [15]. Sa transmutation passerait donc, soit par la transmutation de tout le césium y compris le ^{133}Cs stable, soit par une séparation isotopique. Un REP UOX de 33 GWj/t produit 14 kg/TWhé de césium, soit 5,6 tonnes par an pour tout le parc électronucléaire français.

3.2.3 Esquisse de réacteur sous-critique

Nous disposons maintenant d'un certain nombre d'outils pour évaluer l'impact sur le bilan neutronique des différents éléments que l'on souhaite irradier : actinides, produits de fission et, plus spécifiquement, produits de fission à vie longue. Il est nécessaire, à ce stade, de replacer ceci dans le cadre d'un réacteur concret en mettant en avant les arbitrages "stratégiques" qu'il convient de faire.

En faisant des hypothèses *a priori* sur le flux et le spectre neutronique, nous avons montré que nous pouvions calculer un certain nombre de grandeurs déterminantes pour le bilan neutronique global d'un cœur selon le schéma de la figure 3.15.

Etant donné les actinides à détruire, le cycle retenu ("once-through" ou à l'équilibre) et le type de combustible, on en déduit un bilan neutronique¹⁴ D_{Act} (cf. expression 3.15) et il en découle une masse d'actinides (cf. section 3.2), une production moyenne de neutrons par fission (cf. formule 3.23)... Les neutrons produits par les actinides peuvent alors être utilisés à plusieurs fins :

- pour atteindre un taux d'incinération (ou taux de combustion), défini comme le pourcentage en masse de produits de fission (PF créés lors des fissions des actinides dans le cœur) par rapport à la masse totale des actinides et des produits de fission ;
- pour incinérer une certaine quantité de PFVL produits par l'ensemble du parc (réacteurs critiques et hybrides).

Il ne faut pas oublier de garder des neutrons pour compenser les pertes dans les matériaux de structure ou les fuites.

Chaque processus conduit à une certaine consommation de neutrons : D_{PF} , D_{PFVL} , D_{struc} et D_{fuites} , dont la valeur est indépendante des autres processus. Le bilan neutronique pour le réacteur¹⁵ s'écrit :

$$G = D_{Act} + D_{PF} + D_{PFVL} + D_{struc} + D_{fuites} \quad (3.41)$$

Nous pouvons ainsi expliciter les choix à faire quant à la répartition des neutrons ou, plutôt, quant à leur utilisation dans le réacteur : selon que l'on souhaite favoriser une réaction ou une autre. Nous avons déjà analysé l'influence de l'arbitrage concernant les produits de fission à vie longue, D_{PFVL} , sur le potentiel d'incinération (cf. formule 3.40). Nous reviendrons dans la

14. Nous ne faisons pas d'hypothèses sur le type de cycle ("once-through" ou avec recyclage), donc le bilan neutronique est susceptible d'évoluer en fonction du temps.

15. C'est la règle d'additivité de la consommation de neutrons pour des processus qui ne conduisent pas à des fissions, voir page 80.

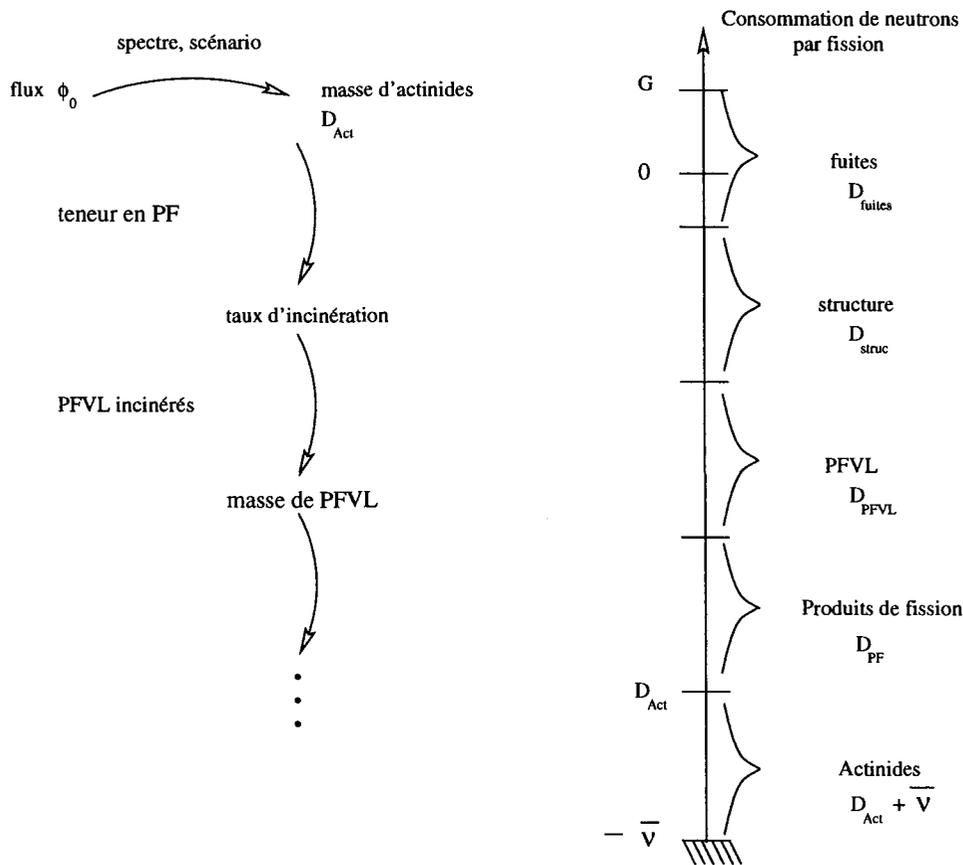


FIG. 3.15: Schéma logique explicitant les liens et les arbitrages qu'il est possible de faire lors de la construction des incinérateurs et la répartition qui s'en suit des neutrons disponibles ($G + \bar{v}$) suivant les différents processus.

partie suivante, avec un modèle des flux de matières, sur les conséquences de la teneur du cœur en produits de fission, en ce qui concerne les flux de matières, les capacités de retraitement et les pertes.

Nous avons déjà établi une relation entre le k_{eff} et la consommation de neutrons par fission G (cf. expression 3.28). Nous pouvons maintenant avoir une idée plus précise sur l'intensité I du faisceau de protons en raison des relations 3.28 et [14, 66]. Un proton incident produit ν_s neutrons dans la cible de spallation. Ces neutrons se dispersent dans le cœur où ils seront absorbés. Certains de ces neutrons conduiront à des fissions, produisant des neutrons de seconde génération, etc. Le nombre de neutrons dans les générations successives sont dans le rapport k_{eff} par définition du coefficient de multiplication. Seuls les neutrons de spallation ont un coefficient de multiplication différent puisqu'ils sont produits dans la cible de spallation et non dans le cœur. On note ϕ^* le rapport du coefficient de multiplication de la première génération et du coefficient de multiplication du cœur k_{eff} . ϕ^* représente l'"importance" (au sens neutronique) des neutrons de spallation : c'est ce paramètre qui tient compte de l'hétérogénéité apportée par la cible de spallation - les neutrons de spallation n'ont pas le même spectre et ne "voient" pas le même milieu que les neutrons de fission. Schématiquement on peut noter :

$$\nu_s \rightarrow \phi^* k_{eff} \nu_s \rightarrow \phi^* k_{eff}^2 \nu_s \rightarrow \phi^* k_{eff}^3 \nu_s \rightarrow \dots \quad (3.42)$$

En additionnant tous les neutrons de fission et en divisant par $\bar{\nu}$, nous pouvons calculer le nombre de fissions donc la puissance. Ceci conduit à l'expression suivant :

$$\mathcal{P}_{th} = \phi^* \frac{E_f I}{e} \cdot \frac{\nu_s}{\bar{\nu}} \cdot \frac{k_{eff}}{1 - k_{eff}} \quad (3.43)$$

dans laquelle E_f est l'énergie libérée par fission (≈ 200 MeV) et e est la charge électrique élémentaire. Cette équation peut se mettre sous une forme intéressante :

$$\mathcal{P}_{th} = \phi^* \frac{E_f I}{e} \cdot \frac{\nu_s}{G} \quad (3.44)$$

Les valeurs numériques de ϕ^* sont toujours très proches de 1. A titre d'exemple, une étude de l'Energy Amplifier a donné $\phi^* = 1,17$ [81]. La prise en compte de ce paramètre sera automatique dans la mesure où nous utiliserons un modèle de cœur avec une cible de spallation distincte de la couverture sous-critique.

Le tableau 3.5 donne quelques valeurs typiques pour les cycles qui sont envisagés ici. Nous avons retenu : $\phi^* = 1$, $\nu_s = 30$. Il est important de noter qu'il s'agit de la puissance et de l'intensité de l'ensemble des incinérateurs, mais du k_{eff} de chaque unité, supposées identiques. Nous verrons plus loin comment nous sommes alors en mesure d'en déduire le nombre d'incinérateurs.

puissance (MW_{th})	intensité (mA)	G	k_{eff}
1500	1	$4 \cdot 10^{-3}$	0,999
1500	10	$4 \cdot 10^{-2}$	0,987
1500	50	0,2	0,938
750	50	0,4	0,882

TAB. 3.5: Correspondance entre G , la puissance et l'intensité, pour $\phi^* = 1$, $\nu_s = 30$.

Afin de mieux comprendre ce qui se passe effectivement dans l'incinérateur, il est intéressant de calculer le nombre de réactions nucléaires (processus) par neutron de spallation. Les différents processus que nous avons mis en évidence sont les réactions avec les actinides ($\bar{\nu} + D_{Act}$), les produits de fission (D_{PF}), les PFVL (D_{PFVL}), les matériaux de structure (D_{struc}), et les fuites (D_{fuites}).

Considérons un processus α . Sachant que nous avons $\bar{\nu} + G$ neutrons disponibles par fission dans le système, la probabilité pour qu'un neutron interagisse suivant ce processus peut s'écrire¹⁶ :

$$f_\alpha = \frac{D_\alpha}{G + \bar{\nu}} \quad \text{ou} \quad f_{Act} = \frac{D_{Act} + \bar{\nu}}{G + \bar{\nu}} \quad \text{pour les actinides.} \quad (3.45)$$

Il est possible de découper plus finement les processus pour faire apparaître une réaction précise sur tel produit de fission par exemple. La méthode est identique.

16. Une analyse grâce aux sections efficaces macroscopiques conduit aux mêmes résultats. Il suffit d'écrire $f_\alpha = \frac{\Sigma_\alpha}{\Sigma_{totale}}$ et faire apparaître les coefficients de multiplication k_{eff} et k_α (coefficient de multiplication pour tous les processus sauf α). La relation 3.28 permet de retrouver les bilans neutroniques.

Enfin, comme nous l'avons vu (cf. expression 3.42), chaque neutron de spallation génère $\frac{\phi^*}{1-k_{eff}}$ neutrons [14, 66], soit $\phi^* \frac{\bar{\nu}+G}{G}$. Nous pouvons donc exprimer le nombre de chaque interaction par neutron de spallation¹⁷ :

$$\frac{D_\alpha}{G} \phi^* \quad \text{ou} \quad \frac{D_{Act} + \bar{\nu}}{G} \phi^* \quad \text{pour les actinides.} \quad (3.46)$$

Cette analyse en nombre d'interactions est utile, notamment, pour vérifier l'intérêt que présente l'incinération dans telles ou telles conditions d'un noyau donné. Ainsi, si le nombre d'interactions par neutron de spallation est très inférieur à 1, la question peut se poser de savoir si la destruction dudit noyau ne serait pas effectuée de façon plus efficace dans un système dimensionné autrement.

3.2.4 Conclusion

En partant d'une notion physique, la consommation de neutrons par fission, en régime statique, nous avons pu la généraliser à un régime dynamique quelconque, et montrer que la définition statique correspond à un régime d'équilibre ($t \rightarrow \infty$) avec une alimentation continue. Cette généralisation nous permet d'étudier la dynamique du système de manière plus accessible puisqu'il existe une règle de somme pour les consommations de neutrons par fission, ce qui n'est pas le cas pour les coefficients de multiplication.

Ceci nous a permis d'introduire la notion de "masse par fission" d'un isotope, parallèle de la définition statique de D , et de calculer la répartition des neutrons suivant les différents processus : actinides, PF, PFVL, matériaux de structure et fuites.

Ces outils mathématiques permettent donc d'avoir une image complète des neutrons dans le système. Il faut la compléter pour tenir compte de l'aspect combustible.

3.3 Les flux de matières

Une fois la composante neutronique du système caractérisée, il faut analyser les bilans massiques. Pour cela, nous allons élaborer un modèle qui, bien que simple, nous permettra de cerner certains problèmes techniques comme, dans un schéma avec recyclage, la masse à retraiter et la quantité de pertes au retraitement.

3.3.1 Modèle

Nous considérons deux entités distinctes : le cœur sous-critique dans lequel s'opère la transmutation et l'"usine" de retraitement qui purifie chimiquement les actinides des produits de fission. Le schéma global des flux de matières est donné figure 3.16, avec les notations suivantes (les flux seront exprimés en tonnes par an - t/a) :

– Flux entrant dans le cœur :

- A** : flux d'actinides entrant dans le cycle ;
- A''** : flux d'actinides revenant du retraitement ;
- P''** : flux de produits de fission qui n'ont pas été extraits lors du retraitement ;

17. Ceci afin d'avoir une idée de l'efficacité dudit processus dans les conditions envisagées.

par :

$$\begin{cases} y &= \frac{a}{A'} \\ z &= \frac{P''}{P'} \end{cases} \quad (3.47)$$

Nous supposons que ces facteurs d'extraction, identiques pour tous les éléments, ne dépendent pas de la masse que l'on doit retraiter et, en particulier, sont indépendants de la dilution de ces produits dans un éventuel sel fondu, du moins dans la plage de dilution considérée ;

- le pourcentage de produits de fission admissible dans le cœur (contrainte d'ordre neutronique¹⁹) que nous allons modéliser par un taux de produits de fission à la sortie du cœur :

$$\frac{P'}{A' + P'} \leq B_{max} \quad (3.48)$$

dans laquelle B_{max} est le taux d'incinération maximal. Nous noterons $B = \frac{P'}{A' + P'}$ le taux d'incinération.

Ce taux d'incinération n'est pas nécessairement le rapport entre la masse de produits de fission dans le cœur et la masse totale. En effet, pour les combustibles solides, certains "assemblages" sont plus ou moins irradiés en fonction de leur date de chargement. La teneur en produits de fission s'écrit :

$$t_{PF} = \frac{\sum_{i: \text{assemblages}} m_{PF,i}}{\sum_{i: \text{assemblages}} m}$$

avec m la masse totale de chaque assemblage, constante au cours de l'irradiation. Par contre, le taux d'incinération, lui, est donné par : $B = \frac{m_{PF,N}}{m}$ avec N le nombre total d'assemblages, c'est-à-dire par la teneur en produits de fission des assemblages sortis du cœur. Dans le cas d'un cœur homogène, par exemple en sel fondu, le taux d'incinération et la teneur en produits de fission sont égaux. Nous retrouverons cette distinction en étudiant les schémas "once-through" avec des combustibles liquides ou solides.

Ces deux valeurs peuvent donc être très sensiblement différentes. C'est uniquement dans le cas d'un sel fondu qu'on pourra les considérer comme égales.

Le bilan des fissions s'écrit :

$$A + A'' - A' = P' - P''$$

Les bilans des matières conduisent à :

$$A'' = A' - a$$

et

$$P'' = P' - p$$

19. On remarquera que, si cette condition est vérifiée en sortie de cœur, elle est *a fortiori* vérifiée pendant le séjour dans le cœur.

En combinant ces trois équations et en utilisant les définitions des efficacités de retraitement, nous avons :

$$A' = A + A' - yA' - P'(1 - z) \quad (3.49)$$

d'où, avec la définition du taux d'incinération :

$$A = yA' - (1 - z) \frac{B}{1 - B} A' \quad (3.50)$$

Nous en déduisons les pertes au retraitement²⁰ :

$$a = \frac{y(1 - B)}{y + B(1 - z - y)} A \quad (3.51)$$

Il est important de voir que la masse des actinides (dans les différents cœurs) n'intervient pas dans ce modèle. Ni la durée du cycle d'irradiation, ni le flux neutronique n'interviennent²¹. Le seul paramètre du modèle, hormis les efficacités de retraitement, est le taux d'incinération B . Nous pouvons enfin calculer l'ensemble des flux de matières :

$$A' = \frac{1 - B}{y + B(1 - z - y)} A$$

$$P' = \frac{B}{y + B(1 - z - y)} A$$

3.3.2 Analyse

Avec ce modèle simple, nous allons étudier trois grandeurs clés du retraitement : les pertes (les actinides qui partent avec les produits de fissions et qui sont donc irrécupérables), la masse à retraiter, le volume à retraiter (nous distinguerons le cas des combustibles solides de celui des sels fondus). Nous pourrions ainsi déterminer l'efficacité nécessaire de la séparation chimique en fonction des différentes contraintes énumérées ci-dessus.

3.3.2.1 Les pertes massiques

Nous avons réussi à exprimer les pertes²² sous une forme assez simple (voir l'expression 3.51) : le produit du facteur d'extraction y , de l'alimentation A et d'une fonction $\frac{1-B}{y+B(1-z-y)}$. Nous allons bien évidemment normaliser les pertes au flux de matières A qu'il s'agit d'incinérer, mais aussi au facteur y , ce qui nous conduit à considérer la quantité :

$$\frac{a}{yA} \quad (3.52)$$

20. Nous supposons ici un facteur d'extraction unique pour l'ensemble des actinides, ce qui permet d'avoir un modèle assez simple. Cette hypothèse peut avoir des conséquences assez variables selon le spectre considéré. En effet, les éléments qui seront *a priori* les plus difficiles à extraire sont les éléments de numéro atomique élevé. Or, une irradiation en spectre thermique conduit à beaucoup plus de ces éléments qu'une irradiation en spectre rapide - simple conséquence des rapports $\frac{\sigma_a}{\sigma_f}$ - comme nous le verrons par la suite.

21. Si ce n'est par leur influence sur le taux d'irradiation par l'intermédiaire de la fluence $t\phi_0$.

22. Traiter la masse des pertes est évidemment insuffisant, car beaucoup d'autres facteurs entrent dans la nocivité des déchets. Nous y reviendrons, mais ce modèle en masses fournit des premières indications très utiles.

Pertes massiques lors du recyclage

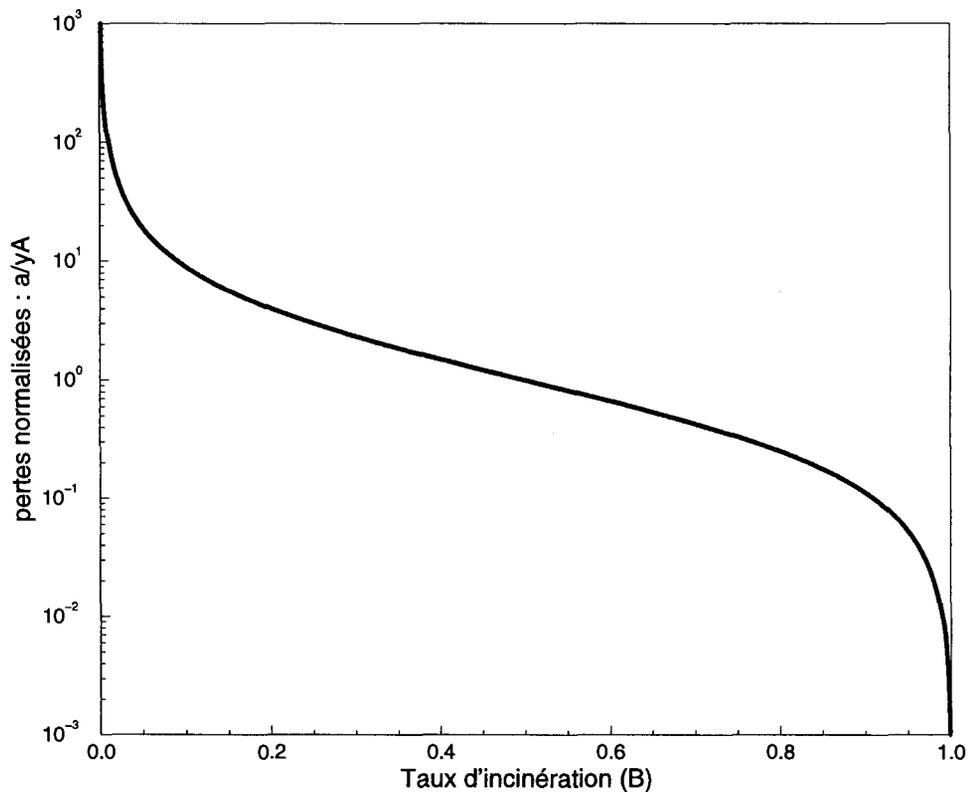


FIG. 3.17: L'analyse d'un modèle simple de flux de matières montre que les pertes qui sont associées à tout recyclage sont conditionnées par cette courbe reliant le taux d'incinération et les pertes (normalisées au flux annuel de déchets et au facteur d'extraction). Nous pouvons ainsi comparer deux solutions en estimant le taux d'incinération de chacune.

Si les pouvoirs d'extraction sont élevés (ce qui est le cas en pratique), c'est-à-dire :

$$z \ll 1$$

$$y \ll B$$

la relation entre les pertes normalisées et le taux d'incinération est universelle (cf. figure 3.17). Plus le taux d'incinération est élevé, plus les pertes sont faibles, car la possibilité de laisser les produits de fission s'accumuler dans le cœur réduit le nombre de recyclages. Et cela est bien sûr directement lié, comme nous l'avons vu, au nombre de neutrons disponibles, D , et au nombre de neutrons consacrés aux produits de fission, D_{PF} . Les conditions optimales, en considérant tous les autres paramètres fixés, correspondent bien évidemment au taux d'incinération le plus élevé²³.

La courbe 3.17 peut se diviser en trois parties. La variation des pertes est très importante pour des petits taux d'incinération. Lorsque le taux d'incinération dépasse 15%, les gains sont nettement plus faibles à chaque incrémentation du taux d'incinération. Pour les taux très élevés,

²³. Mais il ne faut pas oublier qu'en fin d'analyse, les pertes doivent être comparées à une référence, soit l'uranium naturel de départ, soit les pertes des différents scénarios (cf. page 59).

nous retrouvons le même comportement que dans la première zone. Il peut donc être intéressant de consacrer un certain nombre de neutrons au maintien d'un niveau donné de produits de fission dans le cœur afin de limiter les pertes. Mais il ne faut peut-être pas y consacrer trop de neutrons car les gains ne seront plus assez importants et ces neutrons pourraient être plus utiles ailleurs. Ce choix fait partie de l'arbitrage concernant les produits de fission (cf. figure 3.15).

Par ailleurs, notons que, dans le cas d'un schéma "once-through", les pertes sont fixées au niveau de $(1 - B) \cdot A$ tonnes par an.

3.3.2.2 La masse à retraiter

Comme nous l'avons fait pour les pertes massiques, nous allons examiner les problèmes liés au retraitement lui-même, en premier lieu à la masse à retraiter. Cette grandeur est surtout importante dans le cas d'un combustible solide²⁴. La masse à recycler est donnée par :

$$A' + P' = \frac{1}{y + B(1 - z - y)} A \quad (3.53)$$

Plus le taux d'incinération est élevé, plus cette masse est faible. Cela vient uniquement du fait qu'il faut recycler moins souvent lorsque l'on tolère davantage de produits de fission dans le cœur. Ici encore, les gains sont très importants pour les faibles taux d'incinération, mais deviennent moins significatifs par la suite. De la même manière qu'il est possible de fixer une limite pour les pertes massiques et d'en déduire la fraction de neutrons à consacrer aux produits de fission (D_{PF}), la masse à retraiter représente une contrainte importante, elle dictera la fraction de neutrons à consacrer aux produits de fission.

Il est aussi possible de calculer le taux de renouvellement du cœur, c'est-à-dire le temps au bout duquel le cœur a été entièrement renouvelé. C'est le rapport entre le flux de matière sortant $A' + P'$ et la masse totale en cœur. Comme cette dernière est inversement proportionnelle au flux, plus le flux augmente, plus le renouvellement du cœur est rapide. Cela risque de rendre la transmutation inefficace compte tenu du temps nécessaire au chargement du combustible, d'où une limite intrinsèque du flux dans le cas d'un combustible solide.

3.3.2.3 Le volume à retraiter

Si nous nous plaçons dans le cas d'un sel fondu, la grandeur déterminante pour le recyclage est le volume, non la masse. Afin d'avoir une idée de ce volume, considérons un cœur de volume V contenant une masse M_{Act} d'actinides et M_{PF} de produits de fission. A ce stade de développement du modèle, nous pourrions faire deux hypothèses sur la dépendance du volume en fonction du flux moyen ϕ_0 : la première est de considérer une puissance volumique uniforme, afin de profiter au maximum du potentiel du caloporteur, donc un volume constant puisque la puissance thermique totale est fixée par la masse d'actinides à détruire A ; la deuxième est de supposer une concentration en actinides constante.

S'agissant d'un sel, nous pouvons supposer le milieu homogène et ainsi le rapport entre les produits de fission et les actinides est le même dans le cœur et dans le fluide que l'on extrait :

$$\frac{P'}{A'} = \frac{M_{PF}}{M_{Act}} = \frac{B}{1 - B} \quad (3.54)$$

24. Nous ne tenons pas compte ici de la masse des gaines, mais uniquement des actinides.

Masse à retraiter

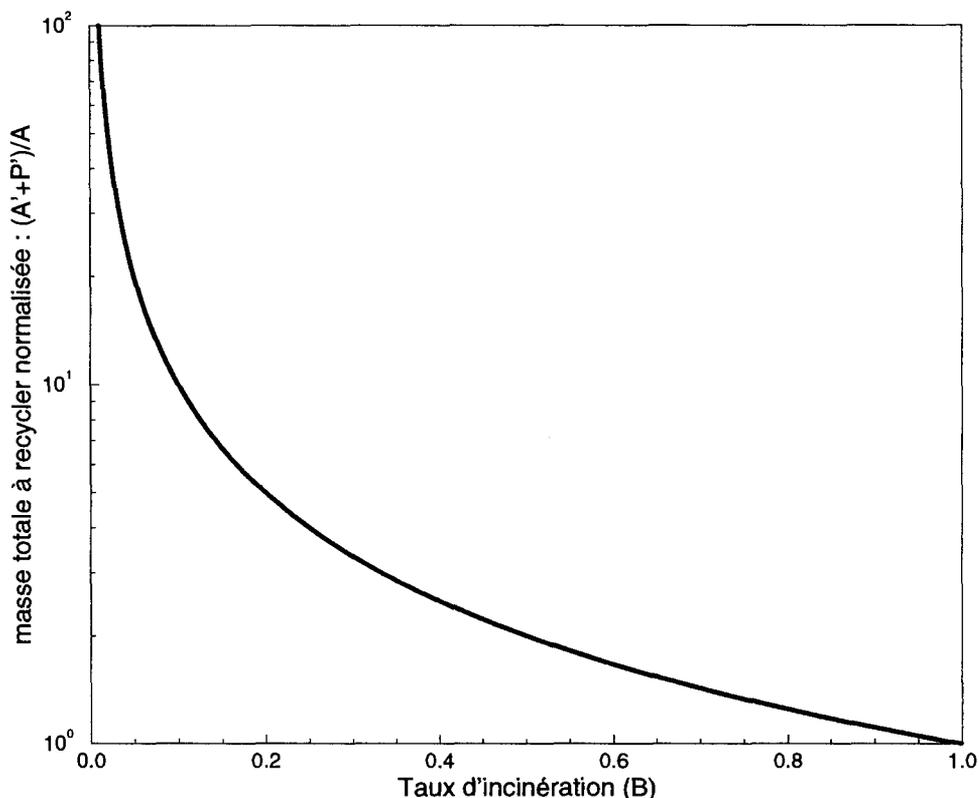


FIG. 3.18: Nous présentons ici la masse d'actinides et de produits de fission qu'il faut retraiter, la normalisation étant faite à la masse d'actinides A que l'on doit détruire par an. Plus le taux d'incinération augmente, plus la quantité à retraiter diminue, simple conséquence du nombre de retraitements nécessaires pour limiter la teneur en produits de fission.

Rappelons que la masse d'actinides à l'équilibre est déterminée de manière unique par les déchets à détruire A , le spectre neutronique et le flux (cf. figure 3.15).

Le volume retraité par unité de temps est alors :

$$v = V \frac{A'}{M_{Act}} \quad (3.55)$$

La variation de A' en fonction du taux d'incinération est donnée figure 3.17 puisque $A' = a/y$

Volume constant. Nous savons que la masse d'actinides à l'équilibre varie comme l'inverse du flux, donc le volume à retraiter est proportionnel à $\phi_0 A'$. A taille de réacteur constante, plus le flux augmente, plus le volume à retraiter est important.

Nous avons ainsi une nouvelle possibilité d'arbitrage, en l'occurrence sur le couple: teneur en produits de fission et flux. Schématiquement, l'arbitrage se fait sur la fonction: $\phi_0 \cdot \frac{1-B}{B}$, suivant les possibilités techniques ou économiques. Le taux d'incinération et le flux jouent en sens contraires, donc il existe une courbe des possibilités.

La figure 3.19 illustre, dans un cas particulier, la variation du taux d'incinération minimal à réaliser en fonction du flux dans le cœur. Ainsi cette contrainte technique, si on décide de la

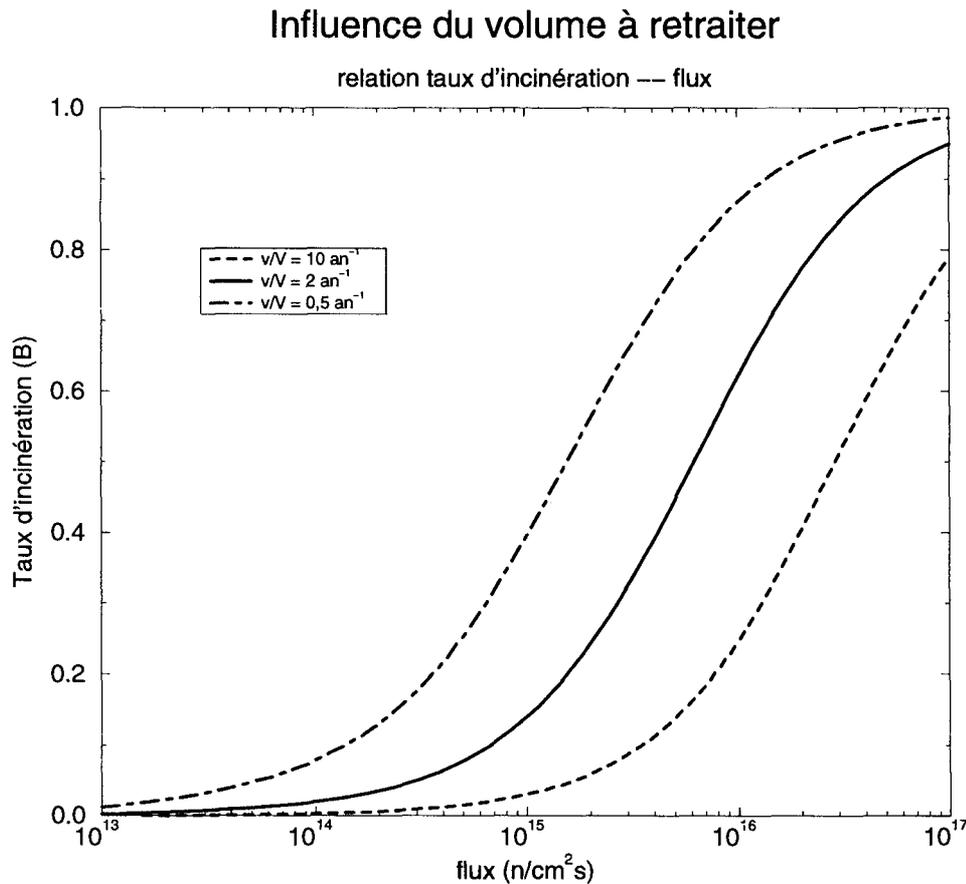


FIG. 3.19: A titre d'exemple, nous présentons ici la courbe reliant le taux d'incinération au flux pour une valeur fixée du rapport v/V (voir texte). Le cas étudié est celui du scénario MOX 2, $A = 7,4 \text{ t/an}$, en spectre thermique. Plus le flux augmente, plus le taux d'incinération doit être élevé pour limiter le nombre de retraitements.

retenir comme grandeur dimensionnante, permet d'évaluer le flux à atteindre en fonction du nombre de neutrons qu'il est possible de consacrer aux produits de fission, D_{PF} .

Concentration constante. Comme la masse, le volume varie comme l'inverse du flux. Le volume retraité par unité de temps est alors indépendant du niveau de flux et est proportionnel à A' dont les variations sont données figure 3.17, à un facteur multiplicatif près. Une contrainte sur le volume à retraiter conduit à envisager des taux d'incinération de plus en plus importants. Un compromis est à trouver, par exemple entre la taille des installations de retraitement et la fraction des produits de fission à vie longue dont on veut assurer la destruction.

3.3.3 Conclusion

Le modèle de flux de matières mis en place ici permet de quantifier certains paramètres essentiels pour le retraitement en ligne, comme les pertes, la masse ou encore le volume suivant le type de combustible. Ces relations permettent d'opérer des choix quant à l'affectation des neutrons : soit maintenir un taux d'incinération élevé, soit détruire plus de PFVL.

3.4 Image du cœur

Nous disposons maintenant de deux outils pour la caractérisation, d'une part du contenu des cœurs (actinides et produits de fission) et, d'autre part, des performances du retraitement. Nous avons déjà décrit la répartition des neutrons (voir page 98 et figure 3.15). Mais cette approche suppose une connaissance préalable des pertes dans les matériaux de structure et des fuites ou du moins une estimation raisonnable²⁵ de ces grandeurs. Nous utiliserons la valeur de "référence" de 0,3 neutrons par fission pour les premières approches [52, 73, 76]. Mais pour poursuivre, ne serait-il pas plus simple et plus efficace de disposer d'un outil qui calcule directement ces grandeurs pour chaque configuration de cœur et qui permette d'assurer la cohérence d'ensemble de la démarche? C'est ce à quoi nous allons nous attacher maintenant.

3.4.1 Un modèle simple du cœur

Nous avons plusieurs possibilités pour étudier une configuration de cœur :

- un code déterministe ;
- un code Monte-Carlo ;
- une résolution analytique.

Puisque nous ne cherchons pas à dessiner un réacteur en détail mais à dégager les grandes orientations qui permettront d'affiner les choix, la troisième approche semble la plus prometteuse car il s'agira toujours de réacteurs à géométrie simple. Outre des temps de calcul réduits, elle permet d'envisager un grand nombre de configurations pour explorer de manière plus rapide et exhaustive l'ensemble des solutions possibles. Cette méthode suppose en revanche de travailler avec un cœur homogène et le plus simple est d'en rester à un groupe²⁶.

Le cœur retenu est sphérique avec trois volumes distincts (cf. figure 3.20) :

- une cible de spallation sphérique caractérisée par un rendement en neutrons par proton incident supposé uniforme dans tout ce volume ;
- une couverture sous-critique homogène de rayon R contenant les actinides et les produits de fission, à la fois ceux produits par la fission des actinides et les PFVL, plus ou moins dilués dans un matériau support²⁷ ;
- un réflecteur caractérisé par son albédo²⁸ β .

25. Nous allons découvrir qu'en fait le problème peut être pris à l'envers dans le cas du régime à l'équilibre. En effet, la puissance \mathcal{P}_{th} est dictée par la masse de déchets à détruire. L'intensité I détermine donc le coefficient de multiplication ou encore G . Disposant des valeurs de D_{Act} , D_{PF} relié à la teneur en produits de fission et D_{PFVL} , le terme $D_{struc} + D_{fuites}$ est fixé par l'équation 3.41. Le système est alors implicitement configuré pour ce qui est de son volume et de la masse des matériaux support. Il reste à vérifier que cette configuration vérifie les hypothèses initiales, principalement la cohérence du spectre (cf. figure 2.15).

26. Les calculs déterministes de réacteurs nucléaires nécessitent de découper le spectre en énergie des neutrons en groupes car la résolutions matricielle impose une discrétisation. Nous utilisons ici un calcul à un seul groupe : les moyennes sont faites sur tout le spectre en énergie.

27. C'est ce matériau support qui déterminera le spectre neutronique, thermique ou rapide. Il peut s'agir d'un sel fondu ou d'un ensemble hétérogène comprenant des gaines et un fluide caloporteur éventuellement modérateur.

28. L'albédo correspond au pouvoir réfléchissant du matériau, voir la Condition IV page 112 pour sa définition mathématique.



FIG. 3.20: Le schéma de cœur que nous allons utiliser pour étudier les différentes configurations de réacteurs hybrides (spectre, flux ...) est composé de trois volumes : la cible de spallation de rayon R_S , la couverture sous-critique de rayon R contenant les actinides et les divers produits de fission et un réflecteur caractérisé par son albédo.

Il ne s'agit donc pas d'un calcul classique de flux neutronique puisque nous y intégrons une source externe de neutrons et une découpage en couronnes du cœur. La source de neutrons peut être ponctuelle ou homogène dans la cible de spallation. Nous avons retenu la deuxième configuration afin d'accéder aux paramètres du puissance au voisinage de la cible de spallation.

Compte-tenu de l'originalité de cette approche nous avons considéré utile de reprendre ici l'analyse mathématique, principalement pour mettre en évidence les différentes approximations.

3.4.2 Résolution analytique du modèle

Compte-tenu des hypothèses ci-dessus, nous pouvons écrire l'équation de diffusion dans la cible de spallation et dans la couverture [27, 82]. Le premier volume, indice 0, est caractérisé par des sections efficaces²⁹ :

$$D_0 \Delta \phi - (\Sigma_{a,0} - \nu_0 \Sigma_{f,0}) \phi + S_0 = 0 \quad (3.56)$$

dans laquelle D_0 est le coefficient de diffusion, $\Sigma_{a,0}$ et $\Sigma_{f,0}$ sont respectivement les sections efficaces macroscopiques³⁰ de capture et de production de neutrons (principalement les réactions $(n,2n)$)³¹.

29. Le spectre qui est utilisé afin d'obtenir des sections efficaces à un groupe n'est pas obligatoirement le même dans la cible et dans la couverture. Il suffit alors de prendre le spectre adéquat pour chaque volume et de faire les moyennes séparément.

30. Les sections efficaces macroscopiques sont le produit de la section efficace de réaction par la masse volumique du noyau siège de la réaction neutronique.

31. Le flux ambiant de neutrons sera renforcé par les réactions $(n,2n)$ dans la cible de spallation et cette contribution est différente de la multiplication résultant des cascades intranucléaires ou de l'évaporation accompagnant

La source de neutrons, exprimée en neutrons par cm^3 , est donnée par :

$$S_0 = \frac{I}{e} \cdot \frac{\nu_s}{\frac{4}{3}\pi R_s^3} \quad (3.57)$$

avec ν_s le nombre de neutrons par proton incident, R_s le rayon de la cible de spallation et I l'intensité du faisceau de protons.

Nous pouvons réécrire cette équation sous forme adimensionnelle [74] :

$$\Delta F(x) - \lambda_0 F(x) + 1 = 0 \quad (3.58)$$

avec

$$x = \frac{r}{R} \in [0; 1] \quad (3.59)$$

$$\Phi_0 = \frac{S_0 R^2}{D_0} \quad (3.60)$$

$$k_{\infty,0} = \frac{\nu_0 \Sigma_{f,0}}{\Sigma_{a,0}} \quad (3.61)$$

$$\lambda_0 = \frac{R^2}{D_0} \Sigma_{a,0} (1 - k_{\infty,0}) \quad (3.62)$$

$$F(x) = \frac{\phi(r)}{\Phi_0} \quad (3.63)$$

Puisque la source est intrinsèquement sous-critique, c'est-à-dire $k_{\infty,0} < 1$, nous pouvons résoudre³² l'équation 3.58 :

$$x \in]0; \frac{R_s}{R}[\quad F(x) = \frac{c_0 e^{a_0 x} + d_0 e^{-a_0 x}}{x} + \frac{1}{\lambda_0} \quad (3.64)$$

dans laquelle $a_0 = \sqrt{\lambda_0}$ et (c_0, d_0) sont les deux constantes d'intégration déterminées par les conditions aux limites.

En ce qui concerne la couverture sous-critique, l'équation de diffusion s'écrit :

$$D_1 \Delta \phi - (\Sigma_{a,1} - \nu_1 \Sigma_{f,1}) \phi = 0 \quad (3.65)$$

avec les mêmes notations que pour la cible de spallation ; en particulier on écrira $\lambda_1 = \frac{R^2}{D_1} \Sigma_{a,1} (1 - k_{\infty,1})$.

Notons que le coefficient de diffusion se calcule par $D = \frac{1}{3\Sigma_t}$ avec Σ_t la section efficace macroscopique de transport :

$$\Sigma_t \approx \Sigma_{total} - \sum_{\text{isotopes}} \frac{2}{3 M_i} \Sigma_{i,scattering} \quad (3.66)$$

M_i est la masse molaire de l'isotope i et $\Sigma_{i,scattering}$ sa section efficace macroscopique élastique [27].

les processus de spallation.

32. La solution générale de l'équation 3.58 est la somme d'une solution triviale, ici $1/\lambda_0$, et d'une solution de l'équation homogène. Un simple changement de fonction $G = x \cdot F$ conduit à $\frac{d^2 G}{dx^2} - \lambda_0 G = 0$.

La solution se présente sous la forme :

$$x \in]\frac{R_s}{R}; 1[\quad \lambda_1 = 0 \quad F(x) = \frac{c_1}{x} + d_1 \quad (3.67)$$

$$\lambda_1 > 0 \quad F(x) = \frac{c_1 e^{a_1 x} + d_1 e^{-a_1 x}}{x} \quad (3.68)$$

$$\lambda_1 < 0 \quad F(x) = \frac{c_1 \cos(a_1 x) + d_1 \sin(a_1 x)}{x} \quad (3.69)$$

en posant $a_1 = \sqrt{|\lambda_1|}$ et (c_1, d_1) les constantes d'intégration pour ce volume. Il faut remarquer que la normalisation du flux demeure $F(x) = \frac{\phi(r)}{\Phi_0}$.

Les différentes constantes d'intégration, (c_0, d_0, c_1, d_1) , sont obtenues grâce aux conditions aux limites en $x = 0$, $x = \frac{R_s}{R}$ et $x = 1$, les bords des ouverts³³ sur lesquels est résolue l'équation de diffusion :

- La valeur du flux dans la cible de spallation doit être finie

$$F(0) \in]0; +\infty[\quad \text{Condition I}$$

ce qui entraîne $c_0 + d_0 = 0$ (cf. formule 3.64).

- A l'interface des deux volumes, le flux et le courant neutroniques doivent être continus, d'où :

$$F(x_s^-) = F(x_s^+) \quad \text{Condition II}$$

en posant $(x_s^+ = \lim_{x \rightarrow x_s, x > x_s} x)$ et $(x_s^- = \lim_{x \rightarrow x_s, x < x_s} x)$ pour indiquer les limites supérieure et inférieure de chaque volume.

Compte tenu de la symétrie sphérique du cœur, le courant s'exprime par

$$\vec{J}(r) = -D \nabla \phi(r) = -\frac{D}{R} \cdot \frac{dF}{dx} \left(\frac{r}{R} \right) \cdot \vec{u}_r \quad (3.70)$$

dans laquelle \vec{u}_r est le vecteur unitaire en coordonnées sphériques $(\vec{u}_r, \vec{u}_\theta, \vec{u}_\phi)$, d'où :

$$D_0 \frac{dF}{dx}(x_s^-) = D_1 \frac{dF}{dx}(x_s^+) \quad \text{Condition III}$$

- Finalement, le réflecteur, le troisième volume, impose une condition en $x = 1$ sur le rapport des courants sortant et entrant par son albédo β :

$$J_-(1) = \beta J_+(1) \quad \text{Condition IV}$$

Le courant sortant est donné par :

$$J_+(1) = \frac{\phi(1)}{4} - \frac{D}{2} \nabla \phi(1)$$

et le courant entrant par :

$$J_-(1) = \frac{\phi(1)}{4} + \frac{D}{2} \nabla \phi(1)$$

33. Une équation différentielle est résolue sur un ouvert au sens mathématique, en raison du calcul de la dérivée.

Exemple de flux

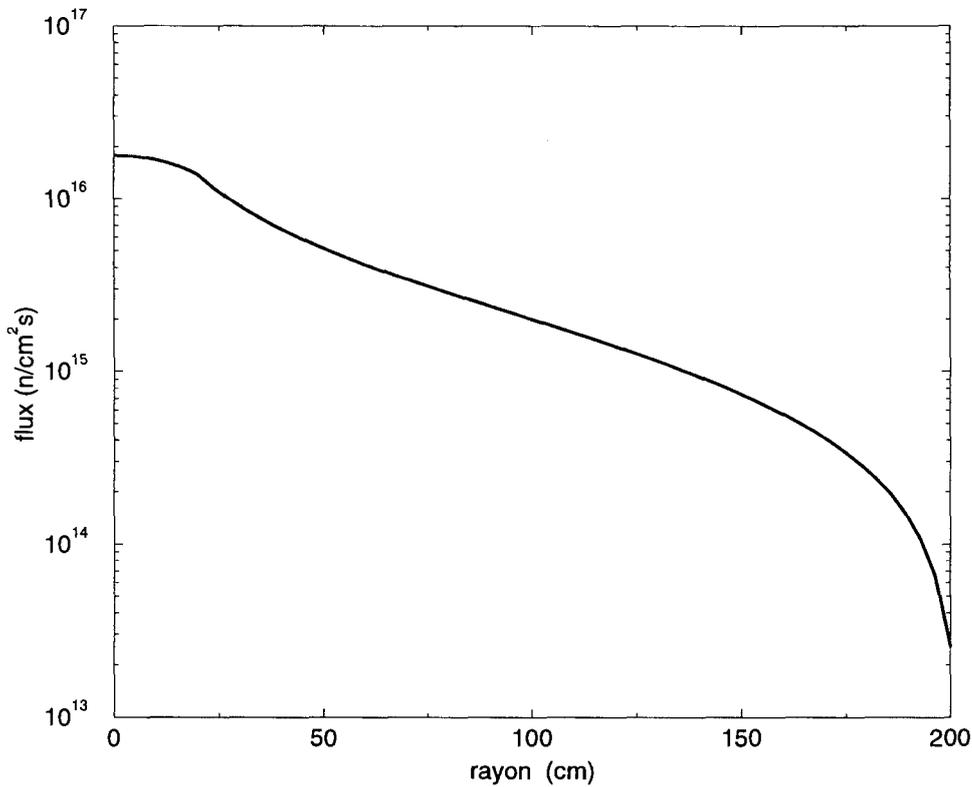


FIG. 3.21: Cas d'un cœur thermique contenant du plutonium avec une source de spallation de 20 cm de rayon et un courant de protons de 25 mA. Le flux moyen dans la couverture est de $9.7 \cdot 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$. Par ailleurs $k_{eff} = 0,49$, ce qui explique la baisse importante du flux en fonction du rayon, et l'albédo est pris nul, d'où la chute brutale du flux aux limites du cœur. Il faut noter la discontinuité de la dérivée du flux au voisinage de la source, $R_s = 20$ cm, car c'est le courant \vec{J} et non le flux qui est continu : dans le cas présent, la cible de spallation est en plomb et la couverture est composée d'eau lourde, d'où des coefficients de diffusion D_0 et D_1 très différents.

Exemple de flux

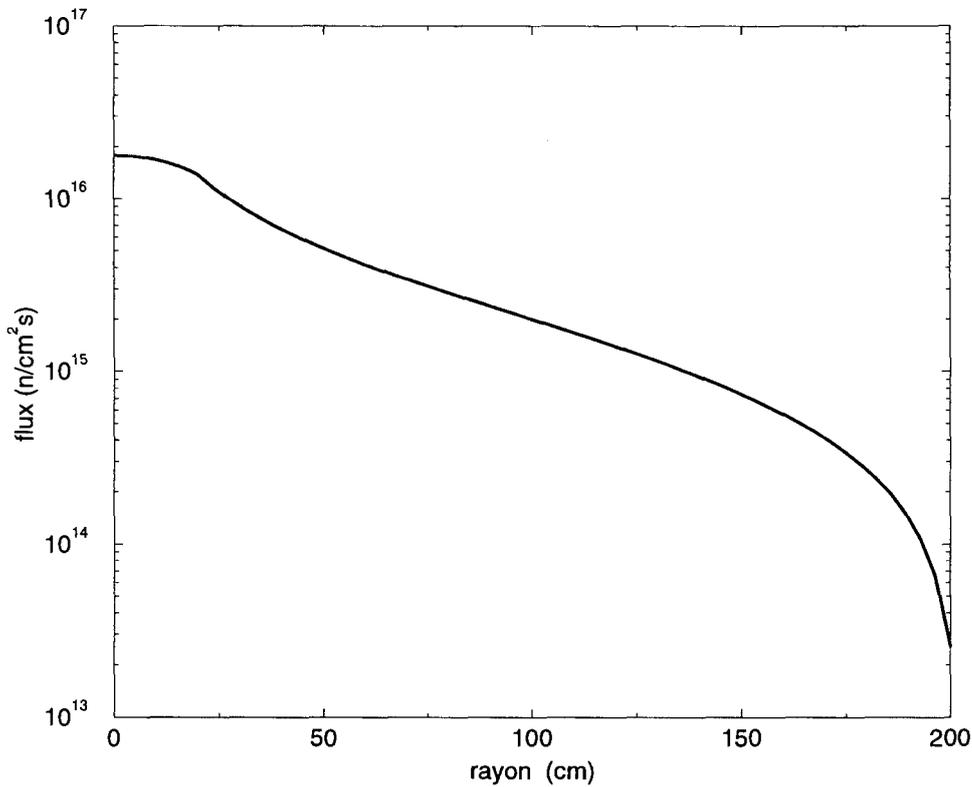


FIG. 3.21: Cas d'un cœur thermique contenant du plutonium avec une source de spallation de 20 cm de rayon et un courant de protons de 25 mA. Le flux moyen dans la couverture est de $9.7 \cdot 10^{14}$ n/cm²s. Par ailleurs $k_{eff} = 0,49$, ce qui explique la baisse importante du flux en fonction du rayon, et l'albédo est pris nul, d'où la chute brutale du flux aux limites du cœur. Il faut noter la discontinuité de la dérivée du flux au voisinage de la source, $R_s = 20$ cm, car c'est le courant \vec{J} et non le flux qui est continu : dans le cas présent, la cible de spallation est en plomb et la couverture est composée d'eau lourde, d'où des coefficients de diffusion D_0 et D_1 très différents.

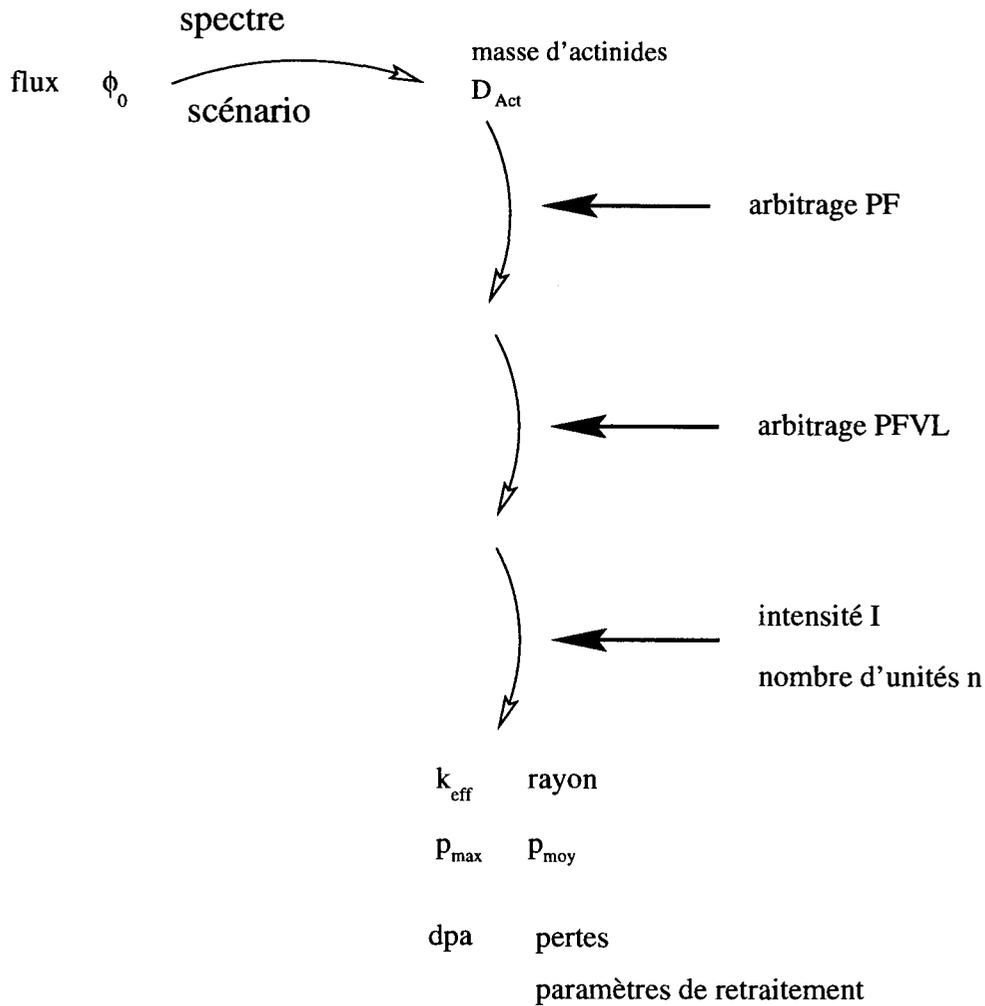


FIG. 3.22: En combinant les trois modèles sur le bilan neutronique, les flux de matières et l'image d'un cœur, nous pouvons décrire l'ensemble des solutions, à savoir le parc de réacteurs hybrides nécessaire pour la destruction des déchets nucléaires, en n'introduisant que cinq paramètres, à savoir : le flux moyen, le taux d'incinération, les PFVL détruits, le nombre d'unités et l'intensité du faisceau de protons. Cette caractérisation permet d'accéder aux grandeurs technologiques essentielles, et donc de délimiter les domaines de cet espace à cinq dimensions correspondant à des solutions "optimisées" vis-à-vis de certaines contraintes technologiques ou autres.

amont de tout dessin de cœur et essentielles à la présente démarche sont le spectre, le scénario retenu et les inefficacités du retraitement caractérisées par les deux paramètres y et z (qui peuvent être pris égaux à 1).

Le premier paramètre à fixer est le flux moyen, ϕ_0 sous lequel la destruction des actinides doit avoir lieu. En fixant de plus le taux d'incinération, c'est-à-dire la teneur en produits de fission au sein des actinides et la quantité de PFVL que l'on souhaite incinérer, nous pouvons en déduire la composition isotopique exacte de l'ensemble des cœurs de réacteurs hybrides.

Cela permet d'accéder aux pertes lors d'éventuels retraitements, ainsi qu'au dimensionnement des installations nécessaires grâce aux masses et volumes à retraiter³⁴ (cf. section 3.3).

En fixant les deux nouveaux paramètres : le nombre d'unités (le nombre de réacteurs hybrides) et l'intensité du faisceau de protons de chaque unité, nous pouvons décrire précisément le contenu de chaque cœur. En effet, l'inventaire par unité est fixé, à la fois pour les actinides et pour les divers produits de fission, et, compte tenu du volume $\frac{4}{3}\pi(R - R_s)^3$ des cœurs, nous pouvons déterminer la quantité de matériaux de structure nécessaires grâce à une simple contrainte sur le volume total.

Les sections efficaces macroscopiques et les coefficients de diffusion ne dépendent alors plus que du rayon R . Les différentes grandeurs issues du modèle de cœur sont fonctions uniquement du rayon, en particulier le flux moyen $\phi_m(R)$. Il devient possible de caractériser entièrement le parc de réacteurs hybrides en résolvant l'équation implicite :

$$\phi_m(R) = \phi_0 \quad (3.74)$$

qui assure la cohérence du schéma de calcul. *A priori*, cette équation pourrait admettre plusieurs solutions, en R , mais il s'avère que la fonction $\phi_m(R)$ est décroissante quand la configuration vérifie la condition :

$$\phi(r) > 0 \quad \forall r \quad (3.75)$$

(voir figure 3.23). Il peut exister des solutions à flux négatif (voir formule 3.69), mais celles-ci ne sont évidemment pas physiques et correspondent au cas $k_{eff} > 1$, d'où un critère pour ne retenir que la solution physiquement acceptable quand on résout l'équation implicite 3.74.

Le sens de variation de la fonction $\phi_m(R)$ permet d'utiliser la méthode de Newton-Raphson pour trouver le zéro R_c de $\phi_m(R) - \phi_0$. Pour cela, on approche la solution R_c par une suite R_i

34. Masse ou volume: le paramètre pertinent dépend de la nature du combustible: solide ou liquide, cf. page 106.

Variation du flux moyen en fonction du rayon R

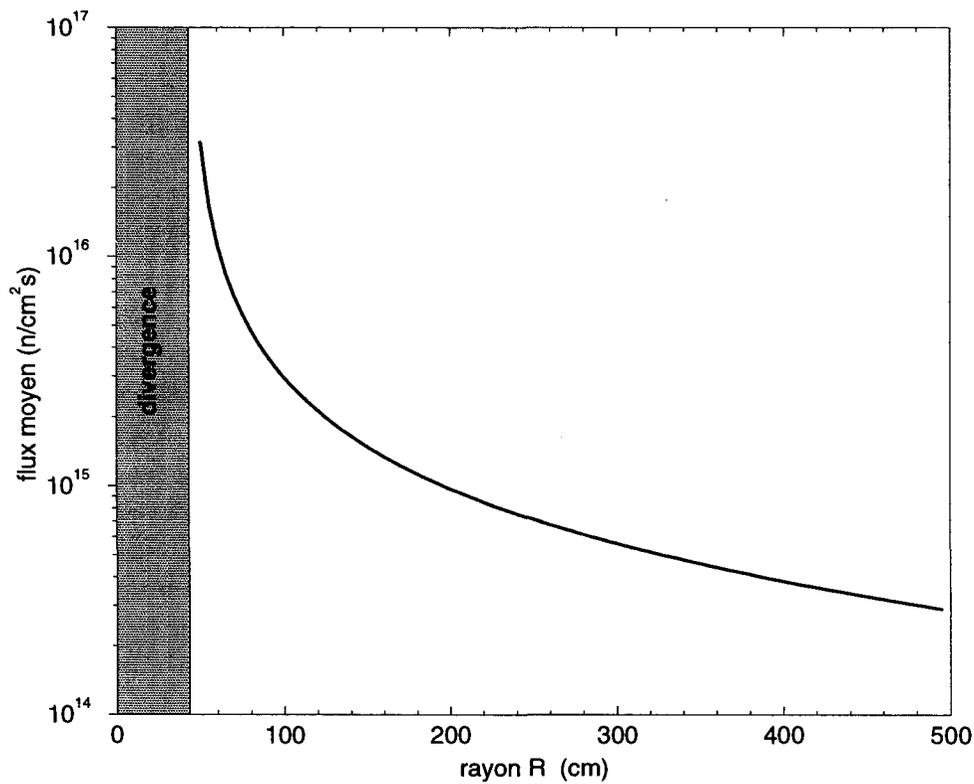


FIG. 3.23: Au delà du rayon critique et à masse totale d'actinides et de produits de fission constante, le flux moyen décroît avec le rayon R , ce qui permet de trouver le rayon solution de l'équation 3.74. En dessous du rayon critique, la solution analytique obtenue n'est pas physique (flux négatif et $k_{eff} > 1$).

définie comme suit³⁵ :

$$\left\{ \begin{array}{l} R_0 \text{ donné} \\ R_{i+1} = \begin{cases} R_i - \frac{\phi_m(R_i) - \phi_0}{\frac{\phi_m(R_i + \Delta R) - \phi_m(R_i)}{\Delta R}} & \text{si } k_{eff}(R_{i+1}) < 1 \\ \gamma R_i & \text{sinon} \end{cases} \end{array} \right. \quad (3.77)$$

dans laquelle $\gamma > 1$ est un paramètre constant permettant d'augmenter la taille du cœur afin

³⁵. La méthode de Newton-Raphson résout une équation non-linéaire du type $F(x) = 0$ en construisant la suite [84] :

$$x_{k+1} = x_k - \frac{F(x_k)}{F'(x_k)} \quad (3.76)$$

Comme nous ne disposons pas de formule explicite pour le flux moyen $\phi_m(R)$, nous introduisons $\Delta R \ll R$ pour calculer la dérivée.

de sortir du domaine de divergence. Pour les calculs numériques, nous avons retenu $\gamma = 1,01$. Cette suite (R_i) converge vers la solution R_c de manière quadratique [84].

Grâce à ce cadre conceptuel, nous allons pouvoir explorer les différentes configurations de manière plus systématique afin de dégager certaines grandes orientations. Les contraintes technologiques essentielles pour la réalisation physique d'un réacteur, telles que la distribution de puissance, les dpa ... conduiront alors à délimiter cet espace de solutions et à optimiser le parc d'incinérateurs.

Nous avons vu page 59, qu'il n'était pas possible de définir une solution unique optimisée car les conséquences en termes de sûreté, déchets, etc., ne sont pas quantitativement comparables et relèvent donc de choix autres que scientifiques. Nous devons présenter les diverses solutions possibles qui permettent de procéder ainsi à ces choix de caractère stratégique.

La procédure mise en place ici repose sur une géométrie sphérique du cœur pour permettre la résolution des équations de diffusion. Elle permet de couvrir un grand nombre de configurations de manière systématique. La question se pose alors de son application à des réacteurs plus réalistes : cylindriques et homogènes ou même présentant une géométrie interne discrète (barreaux ...). Outre le fait que le cœur sphérique peut servir de guide pour les orientations à prendre, la méthode développée ici, pour ce qui est du modèle du réacteur, ne fait qu'une seule hypothèse :

la géométrie du cœur est caractérisée par un seul paramètre.

En effet, résoudre l'équation 3.74 suppose qu'il n'y ait qu'un seul paramètre caractéristique. Dans le cas sphérique, ce paramètre est le rayon R de la couverture sous-critique. Dans un cas cylindrique, ce pourrait être, par exemple, la hauteur du cœur en ayant pris soin de choisir un réacteur orthocylindrique, etc³⁶. Il suffit de disposer d'un outil de calcul permettant de trouver le flux moyen dans le cœur. Il s'avère que les solutions analytiques d'un cœur cylindrique ne sont pas satisfaisantes (voir annexes A.4), nous n'avons pas retenu cette géométrie. Mais l'ensemble de la procédure peut aussi reposer sur des calculs Monte-Carlo ou déterministes pourvu que la géométrie du réacteur respecte l'hypothèse ci-dessus.

Pour résoudre ce modèle, nous avons développé un programme informatique en c. Les entrées sont les cinq variables globales (flux, intensité, nombre d'unités, PF et PFVL), mais aussi les caractéristiques physiques et neutroniques des actinides et du milieu support : masse volumiques et sections efficaces (cf. annexe A). Le programme suit à la lettre le schéma de calcul explicite ci-dessus et détermine le rayon adéquat pour que le flux moyen soit égale au flux initial.

Afin de vérifier la programmation, nous pouvons vérifier la continuité du flux et du courant à l'interface cible de spallation - massif sous-critique. Nous avons aussi comparé les résultats pour des configurations simples entre le modèle analytique et un calcul Monte-Carlo. Le code MCAP, décrit en annexe B.3.4, nous a servi de référence, car il nous était possible de modifier le code pour ne disposer que de neutrons mono-énergétiques. Nous avons simulé une sphère de plomb contenant un faible pourcentage de ²³⁹Pu et des neutrons de 1 MeV. L'accord entre les

36. Dans le cas d'une géométrie plus complexe comportant un réseau sous-jacent, par exemple dans le cas d'assemblages dans un réacteur REP ou d'aiguilles dans un rapide, on peut caractériser le réacteur par un paramètre unique en fixant la cellule élémentaire et en "remplissant" le cœur du nombre adéquat de ces cellules quand ledit paramètre est modifié.

deux codes de calculs est très satisfaisant : 2% d'écart sur la puissance, 0,12% sur le coefficient de multiplication.

Ainsi, les différences que nous pourrions trouver entre les calculs faits ici et une simulation Monte-Carlo ou déterministe de la même configuration proviendront des approximations du calcul à 1 groupe.

3.4.4 Considérations générales

Le schéma de calcul présenté ici a pour objectif de caractériser un parc de réacteurs hybrides en fonction d'un objectif précis : la transmutation d'une masse donnée d'actinides. Imposer cet objectif introduit des liens de dépendance entre différents paramètres. Par exemple, avec les 5 paramètres retenus, le rayon est implicite. Il est donc intéressant d'évaluer l'impact de certains de ces paramètres comme l'intensité du faisceau ou la teneur en produits de fission, sur les caractéristiques globales du parc d'incinérateurs.

3.4.4.1 Influence de l'intensité du courant de protons

Les cinq paramètres définis plus haut étant fixés, une augmentation de l'intensité du faisceau de protons conduit à un rayon plus important et à une dilution des actinides. En effet, l'accroissement de courant provoque, pour une géométrie donnée, un flux plus élevé. Puisque ce flux est l'un des cinq paramètres et que l'équation $\phi_m(R) = \phi_0$ doit être respectée, il faut augmenter la taille du cœur afin d'incorporer au calcul de moyenne des régions à flux plus faible.

Cette intensité plus importante se traduit aussi par un k_{eff} plus faible, simple conséquence de la relation entre la puissance, l'intensité et le coefficient de multiplication, sachant que la puissance thermique totale des unités d'incinération est déterminée en amont par le flux d'actinides à transmuter. Une autre perspective repose sur l'analyse de la consommation de neutrons : la source de spallation, et donc l'intensité du faisceau, conduit à G neutrons par fission. Plus la source est puissante, plus G est élevé et plus le k_{eff} est faible.

Un coefficient k_{eff} plus faible, c'est-à-dire une sous-criticité plus prononcée, implique un facteur de forme, $\frac{p_{max}-p_{min}}{p_{moy}}$, plus important, et la fluence, et donc les dpa, seront plus élevés au voisinage de la source de spallation.

En ce qui concerne l'impact sur la puissance volumique maximale, nécessairement proche de la cible de spallation (le flux est strictement décroissant dans la couverture sous-critique, cf. figure 3.21), la conclusion est plus nuancée. Il s'agit d'un jeu entre l'augmentation du flux au voisinage de la cible, quasi linéaire avec l'intensité, et la baisse de concentration des actinides. Il s'en suit qu'un accroissement de l'intensité peut selon le cas, conduire soit à un accroissement soit à une réduction de la densité maximale de puissance.

3.4.4.2 La teneur en produits de fission

Les conséquences les plus importantes d'un taux d'incinération plus élevé ou d'un accroissement du taux de transmutation des PFVL sont un cœur plus petit, donc une concentration en actinides et une puissance volumique maximale plus élevées. En effet, l'introduction d'une quantité supplémentaire de produits de fission, ou de tout matériau capturant, conduit à un transfert de neutrons antérieurement perdus dans les captures parasites et les fuites vers ces nouveaux puits. Un tel transfert requiert la diminution de la taille du cœur afin de réduire la masse des matériaux de structure et les captures qu'elle entraîne.

Puisque l'intensité n'est pas modifiée, le coefficient de multiplication k_{eff} demeure inchangé.

3.5 Conclusion

Nous avons mis en place trois modèles pour étudier les possibilités d'incinération des déchets nucléaires. Le premier de ces modèles traite de l'aspect neutronique des réacteurs hybrides. Il s'agit de déterminer le surplus neutronique et l'impact des différentes réactions comme les captures par les produits de fission (PF ou PFVL). Ceci nous a permis de mettre en évidence les arbitrages possibles : teneur en produits de fission, PFVL détruits.

Le deuxième modèle analyse les flux de matières entre le cœur sous-critique et une éventuelle usine de retraitement. En postulant des efficacités de retraitement, il est possible de déterminer l'ensemble de ces flux en fonction de deux grandeurs : la masse d'actinides à détruire par an et le taux d'incinération. Ces deux grandeurs conditionnent les pertes de retraitement mais aussi la masse et le volume à retraiter. Mettre en relation ces deux premiers modèles permet donc d'évaluer l'impact de la teneur en produits de fission sur l'objectif final : la réduction de la nocivité des déchets grâce à la quantification des pertes.

Le troisième modèle traite d'un cœur sphérique composé d'une cible de spallation, d'une couverture sous-critique et d'un réflecteur. Il cherche à établir les variations spatiales du flux pour chiffrer la puissance volumique, le rayon du cœur mais aussi la concentration afin d'en déduire le nombre d'unités. En effet, avec le schéma logique mis en place, les dimensions du cœur sont implicites. Il est donc possible de déterminer l'influence des différents paramètres du système sur les grandeurs technologiques importantes.

Avec ces trois modèles, nous allons pouvoir étudier chaque scénario pour différents types de combustible et de cycle : combustible solide sans retraitement, combustible liquide sans retraitement et combustible liquide avec recyclage.

Chapitre 4

Incinération sans recyclage : cas d'un combustible solide

A l'aide des différents outils mathématiques disponibles, nous allons comparer les différentes solutions d'incinération : solution sans recyclage ou solution avec retraitement en ligne. Dans le premier cas, il nous faut distinguer selon la nature du combustible : liquide ou solide.

Quand les actinides sont irradiés sous forme solide, les déchets ultimes résultent de la durée totale d'irradiation et du chargement en début de celle-ci : les actinides sont isolés et on retrouve dans un même cœur des “pastilles” ayant des taux de combustion très différents, de la plus “vieille pastille” qui contient beaucoup de produits de fission et dont le bilan neutronique peut être assez dégradé, à la “pastille fraîche”, très réactive. Il faut caractériser l'état de chaque “pastille” au cours du temps.

Sous forme liquide, les actinides se mélangent pour former un cœur homogène à l'équilibre. La masse des déchets est proportionnelle à la composition d'équilibre du cœur et la notion de temps d'irradiation ou de taux de combustion est moins intuitive. Nous avons donc été amené à distinguer ces deux cas.

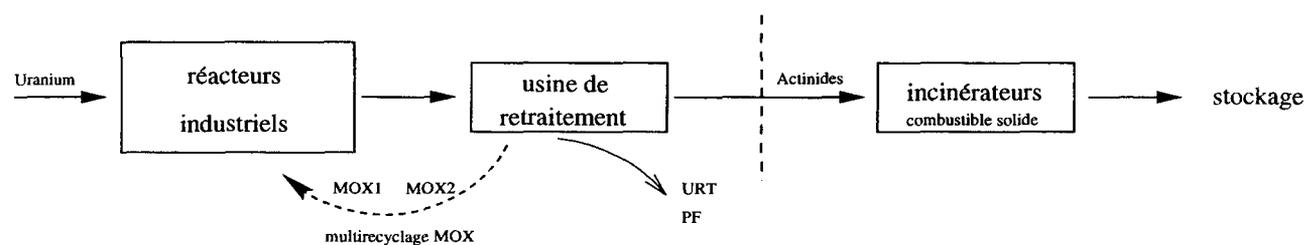


FIG. 4.1: Flux de matières pour l'incinération sans recyclage d'un combustible solide. Nous nous intéressons uniquement à la partie incinération, d'où la terminologie sans recyclage : les actinides ne sont pas retraités après passage dans les réacteurs hybrides.

Dans ce chapitre, nous nous concentrons sur le combustible solide en irradiation “once-through” (sans recyclage) (cf. figure 4.1). Nous considérons que le flux moyen ϕ_0 est imposé par le milieu environnant et ne varie pas au cours de l'irradiation. C'est le flux moyen auquel les actinides sont soumis, tenant compte d'une éventuelle dépression dans le combustible solide.

Nous étudierons l'évolution des déchets nucléaires sous ce flux neutronique pour deux spectres, thermique et rapide. Ceci va mettre en évidence des schémas possibles d'incinération assurant une réduction de l'inventaire radiotoxique. Une étude des contraintes techniques,

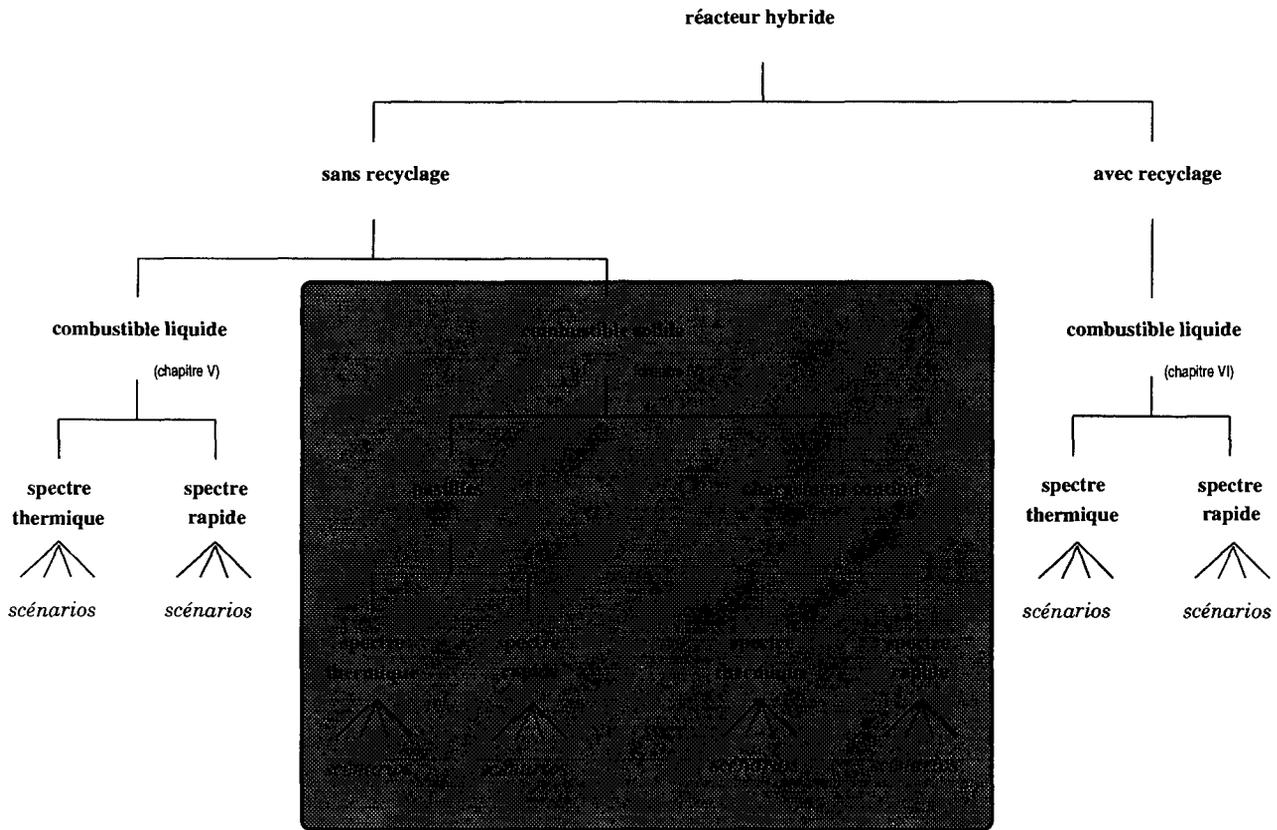


FIG. 4.2: *Domaine d'analyse du chapitre 4.*

telles que la durée d'incinération, la puissance dissipée et le bilan neutronique va affiner ces schémas. Finalement, nous reviendrons sur les avantages d'une alimentation continue pour encore réduire la nocivité des actinides (cf. figure 4.2). Ceci nous conduira aux caractéristiques des parcs de réacteurs hybrides et à une proposition de réacteur incinérant les déchets sous forme de combustible solide.

4.1 Réduction de l'inventaire radiotoxique

Avant de se lancer dans une étude sur la faisabilité neutronique ou technologique de la transmutation des déchets, il faut vérifier que celle-ci présente un intérêt vis-à-vis de l'objectif global: la diminution du risque associé aux déchets nucléaires. Afin de quantifier ce risque, nous avons retenu comme critère l'inventaire radiotoxique (cf. section 1.2). Nous allons étudier chacun des scénarios en fonction du flux et de la durée d'irradiation. Rappelons que l'inventaire radiotoxique de référence pour chaque scénario est donné section 2.2.2. Par ailleurs, l'inventaire radiotoxique par unité de masse (Sv/kg) pour chaque isotope intervenant dans les analyses qui suivent est donné en annexe, section B.3.

4.1.1 Cas des déchets du cycle ouvert

4.1.1.1 Spectre thermique

Considérons une irradiation des déchets issus du cycle ouvert en spectre thermique et sous un flux de 10^{15} n/cm²s. Les actinides évoluent sous ce flux neutronique et sont transmutés en d'autres actinides (par captures et décroissances radioactives) ou en produits de fission (par fission). De par ce changement de composition isotopique, le mélange après irradiation possède un inventaire radiotoxique sensiblement différent de celui des déchets initiaux. Les figures 4.3 et 4.4 donnent, pour plusieurs durées d'incinération, l'évolution de cet inventaire radiotoxique au cours du temps. Elles correspondent à deux représentations possibles de l'inventaire radiotoxique. La première permet d'évaluer l'ordre de grandeur de cet inventaire, en sieverts (figure 4.3). La seconde (figure 4.4), plus adaptée à une comparaison d'efficacité, est le rapport entre l'inventaire radiotoxique après irradiation et l'inventaire initial du cycle ouvert (cf. section 2.2.3).

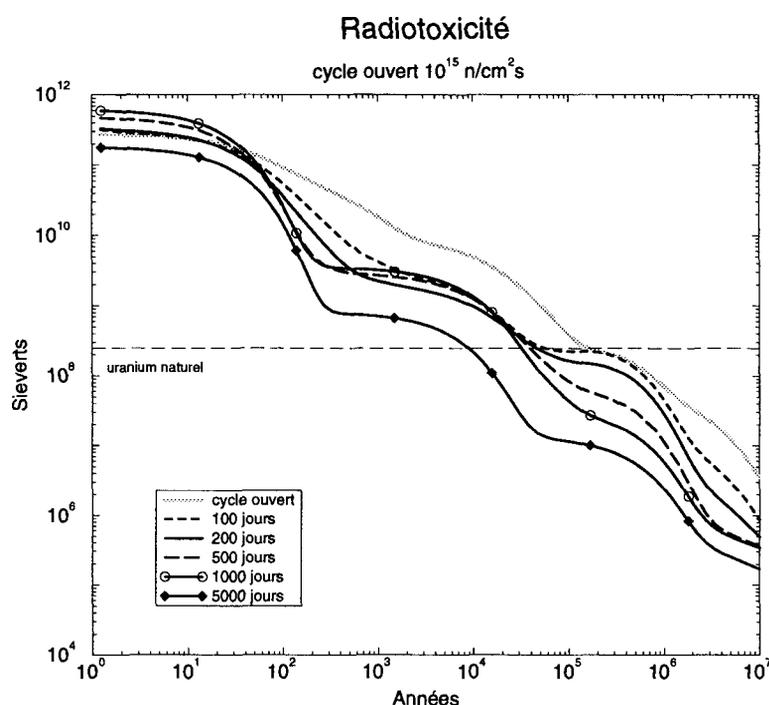


FIG. 4.3: Inventaire radiotoxique après transmutation dans un spectre thermique de 10^{15} n/cm²s des déchets issus du cycle ouvert. Des irradiations courtes conduisent à la fission du plutonium et des réductions d'inventaire radiotoxiques importantes, mais les gains ne permettent de revenir à trois fois le niveau de l'uranium naturel initial après un entreposage de quelques centaines d'années qu'au prix d'irradiation plus longues, typiquement 5000 jours. Une saturation du gain est observé entre 100 et 500 jours d'irradiation correspondant à la fin de la fission du plutonium et à l'accumulation de ²⁴⁴Cm.

Pour des durées d'irradiation courtes, quelques centaines de jours, un gain important est réalisé correspondant à la fission des isotopes fissiles du plutonium : ²³⁹Pu et ²⁴¹Pu (cf. figure 4.4). Cette fission est apparente dès cent jours d'irradiation et se poursuit jusqu'à deux cents jours. Notons que les gains après 10⁵ ans sont peu élevés, principalement à cause de la faible transmutation du ²³⁸Pu et l'impact radiotoxique de ses fils à durée de vie longue ($T_{1/2}({}^{234}\text{U}) = 2,45 \cdot 10^5$

Gains sur l'inventaire radiotoxique

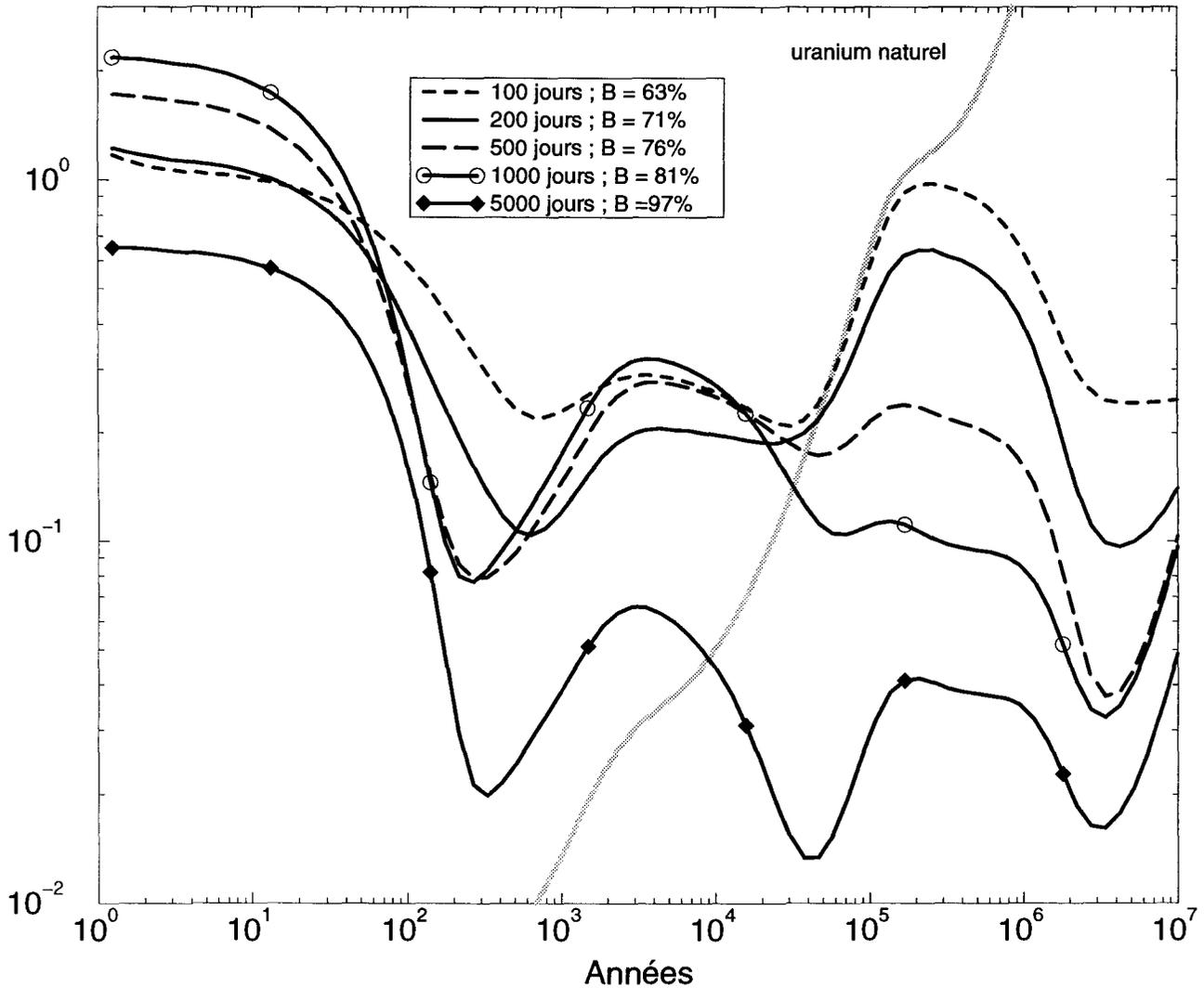
cycle ouvert $10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$ 

FIG. 4.4: Une deuxième représentation de l'inventaire radiotoxique consiste à faire le rapport entre l'inventaire final et celui des déchets du cycle ouvert (cf. figure 2.6). Ces courbes montrent les gains dus à la transmutation. Les mêmes conclusions que pour la figure 4.3 s'imposent, hormis un gain important entre 100 et 200 jours perdu après 500 à 1000 jours d'irradiation suite à l'accumulation de ^{244}Cm . Le remontée importante après 10^5 ans est due au ^{238}Pu , mais son importance est atténuée puisque la radiotoxicité globale est inférieure à celle de l'uranium naturel initial.

ans et $T_{1/2}(^{230}\text{Th}) = 7,53 \cdot 10^4$ ans). L'inventaire radiotoxique des actinides et PFVL juste après irradiation est aussi plus important que l'inventaire de référence suite à la production de ^{242}Cm et ^{244}Cm .

Si l'irradiation est prolongée, la quantité de plutonium décroît mais est remplacée, pour ce qui est de l'inventaire radiotoxique entre 10^2 et 10^5 ans, par l' ^{243}Am puis, après 400 jours d'irradiation, par le ^{244}Cm . Cela explique la saturation du gain après 200 jours, voire un gain moindre quand la quantité de ^{244}Cm est maximale. La figure 4.5 donne l'évolution de la composition isotopique du mélange.

Au delà de 500 jours d'irradiation, l'inventaire radiotoxique est déterminé par les isotopes pairs du curium. On observe une baisse significative de cet inventaire : une réduction d'un facteur 50 après 200 ans pour une irradiation de 5000 jours. Ce gain diminue pour n'être plus qu'un facteur 20 après 3000 ans d'entreposage. En effet, l'inventaire radiotoxique du mélange issu de l'irradiation montre un "plateau" entre 200 ans et quelques milliers d'années. Ses origines sont doubles (cf. figure 4.5) :

- pour des durées d'irradiation entre 800 et 3000 jours, le ^{244}Cm ($T_{1/2} = 18.1$ ans) décroît en ^{240}Pu ($T_{1/2} = 6564$ ans) ;
- pour des durées d'irradiation plus longues, le ^{246}Cm ($T_{1/2} = 4730$ ans) domine la radiotoxicité.

Il est important de noter que ces deux isotopes du curium possèdent un inventaire radiotoxique en sieverts par kilogramme équivalent sur cette plage de temps, d'où la transition "douce" au voisinage de 4000 jours d'irradiation (point correspondant à des masses équivalentes pour les deux isotopes, cf. annexe section B.3).

Afin de bien comprendre l'influence de ce plateau et le phénomène de "saturation" observé, il est possible de déterminer le temps nécessaire pour que l'inventaire radiotoxique atteigne une limite donnée. Nous avons retenu les limites de l'inventaire radiotoxique de l'uranium naturel initial et trois fois cette valeur. Il ressort qu'une durée d'irradiation de 5000 jours permet d'atteindre en quelques centaines d'années un niveau de radiotoxicité seulement trois fois supérieur à celui de l'uranium naturel initial. Il s'agit de la rupture de pente due à la disparition des isotopes ^{244}Cm et ^{246}Cm au profit des produits de fission formés pendant l'incinération (cf. figure 4.3).

Notons que les courbes d'évolution de la composition du mélange (figure 4.5) font apparaître une "borne" intrinsèque correspondant au transfert du ^{244}Cm vers le ^{246}Cm : le premier est transmuté progressivement avant d'être supplanté par le second, qui se détruit bien plus lentement. Comme nous avons vu que l'inventaire radiotoxique de ces deux isotopes est équivalent pour les périodes de temps concernées (entre 200 et quelques milliers d'années), un temps d'irradiation de l'ordre de 3500 jours représente un compromis possible puisqu'il correspond à un ralentissement de l'efficacité de transmutation (en vue de la réduction de l'inventaire radiotoxique ou de la masse).

En conclusion, l'étude menée sur l'incinération des déchets du cycle ouvert en spectre thermique, pour un flux de 10^{15} n/cm²s, indique trois possibilités :

- une irradiation courte, ≈ 200 jours, pour fissionner le plutonium, permettant d'espérer des gains d'un facteur 5 au moins sur l'inventaire radiotoxique. Le taux d'incinération (B) est de 71% ;
- une irradiation de 3500 jours correspondant à une rupture de pente de l'efficacité d'incinération, permettant toutefois une réduction importante de la radiotoxicité ($B = 95\%$) ;

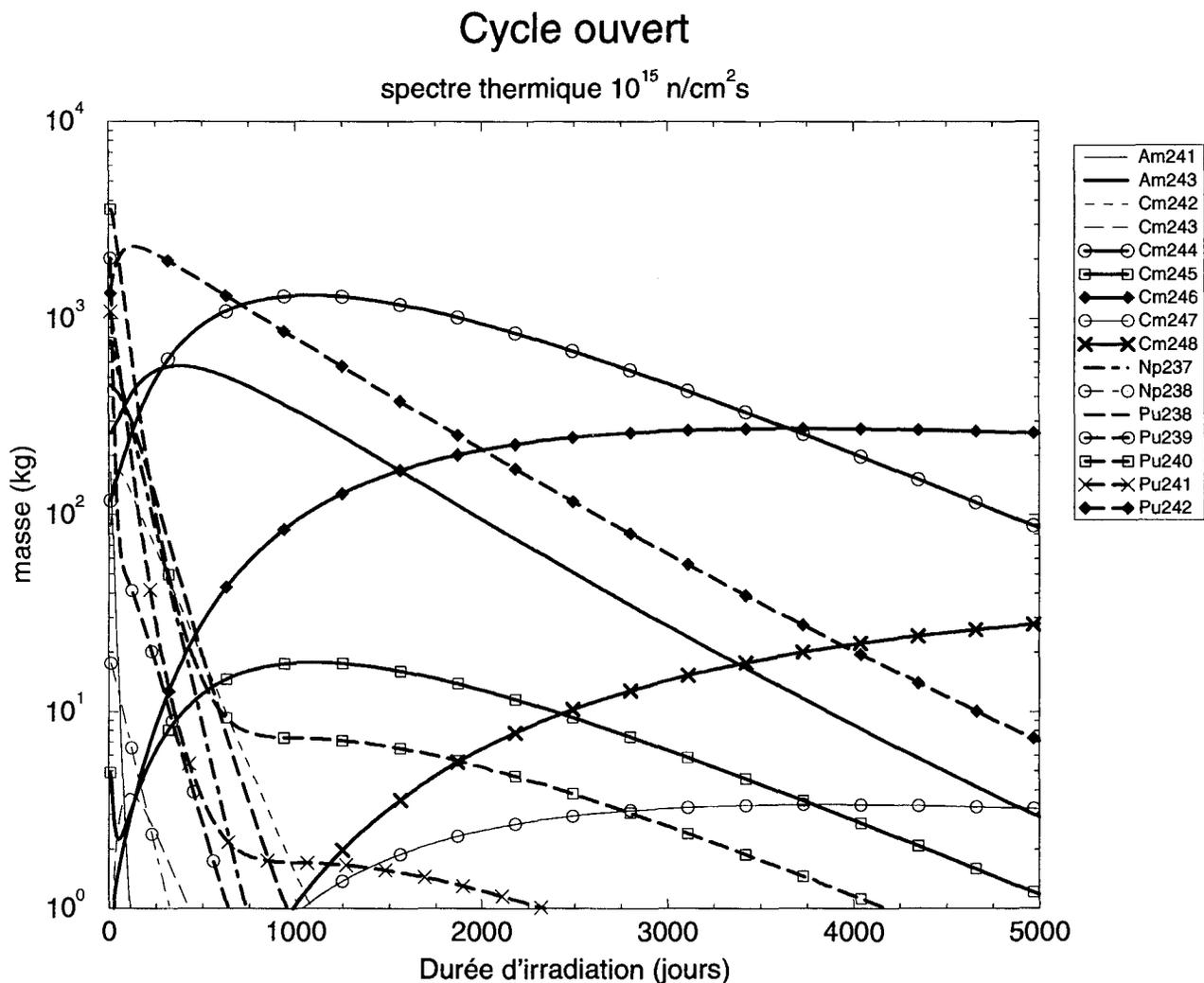


FIG. 4.5: La composition isotopique au cours de l'irradiation en spectre thermique des déchets du cycle ouvert sous un flux de $10^{15} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$. Après une phase de transmutation importante de tous les isotopes initiaux, principalement du plutonium, la composition du mélange se stabilise autour de deux isotopes du curium: le ^{244}Cm et le ^{246}Cm . Le premier de ces isotopes est produit en quantités importantes très tôt dans l'irradiation mais est transmuté. A contrario, le second est produit plus tardivement et a un taux de disparition très faible, dû aux sections efficaces de capture et de fission peu élevées.

- une irradiation de 5 000 jours permettant des gains substantiels ($B = 97\%$), avec essentiellement un retour à trois fois le niveau de l'uranium naturel initial en quelques centaines d'années.

Les résultats exposés ici concernent un flux unique de 10^{15} n/cm²s. Il est possible de mener la même étude pour des valeurs de flux différentes, ce que nous avons fait entre $5 \cdot 10^{14}$ n/cm²s et $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s. Les conclusions en termes de gains sur l'inventaire radiotoxique sont alors identiques pour tous les flux, pourvu que les fluences soient les mêmes ou encore que les taux d'incinération soient identiques. La raison principale de ce phénomène réside dans la composition isotopique du mélange irradié. Les sections efficaces de capture dans un spectre thermique sont importantes. Elles (i) entraînent la fission du plutonium et (ii) conduisent rapidement aux isotopes du curium (cf. figure 4.5) et “butent” sur ceux-ci car les sections efficaces sont plus faibles (1,22 barns pour le ²⁴⁶Cm), provoquant leur accumulation. Les deux isotopes ²⁴⁴Cm et ²⁴⁶Cm gouverneront à eux seuls le comportement radiotoxique du mélange après des irradiations longues, pour ce qui est des durées comprises entre 100 ans et le retour au niveau de l'uranium naturel initial.

4.1.1.2 Spectre rapide

L'incinération des déchets nucléaires en spectre rapide ne présente pas de “jalons” physiques pour la réduction de l'inventaire radiotoxique comme c'est le cas en spectre thermique. Les sections efficaces de capture et de fission sont toutes du même ordre de grandeur d'un isotope à l'autre, ne conduisant donc pas à un phénomène comparable à l'accumulation de ²⁴⁴Cm et ²⁴⁶Cm observée en spectre thermique avec les conséquences que nous avons déjà dégagées (la liste des sections efficaces pour tous les isotopes est donnée en annexe, section B.1).

L'évolution de la composition isotopique sous un flux de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s est illustrée par la figure 4.6. Avec la transmutation progressive du ²³⁹Pu, le mélange est dominé par le ²⁴⁰Pu qui décroît exponentiellement avec le temps d'irradiation. La production de ²⁴⁴Cm conduit à une masse maximale vers 3500 jours et cet isotope ne devient prépondérant qu'au delà de 10000 jours, ce qui correspond à des taux d'incinération supérieurs à 95%. L'inventaire radiotoxique, pour la plage qui nous intéresse (entre 10² et 10⁵ ans), sera gouverné par la masse restante de ²⁴⁰Pu. Les gains seront donc proportionnels au taux d'incinération¹ comme le confirme la figure 4.7. Ainsi, la fission de 90% des déchets du cycle ouvert permet d'obtenir des gains d'un facteur 10 sur l'inventaire radiotoxique.

Remarquons que le “plateau” qui apparaît sur ces courbes de gain est identique au plateau observé en spectre thermique. Il est dû dans les deux cas au ²⁴⁰Pu, soit parce que celui-ci est présent dans le mélange (spectre rapide), soit parce qu'il est produit par décroissance du ²⁴⁴Cm (spectre thermique). Nous observons aussi, pour des irradiations prolongées en spectre thermique, une contribution du ²⁴⁶Cm. Cette constatation et les courbes de composition isotopique (figures 4.5 et 4.6) expliquent pourquoi nous n'observons pas de phénomène de saturation du gain en spectre rapide, y compris vers 15000 jours d'irradiation quand les masses de ²⁴⁰Pu et ²⁴⁴Cm sont comparables.

Ainsi, alors que pour le spectre thermique il apparaît trois scénarios précis, les schémas de réduction de l'inventaire radiotoxique en spectre rapide sont plus ouverts et le scénario final

1. La relation adéquate entre le taux d'incinération et les gains portant sur la réduction de l'inventaire radiotoxique peut se mettre sous la forme $gain \propto \frac{1}{1-B}$, mais pour simplifier nous nous autoriserons par la suite l'abus de langage utilisé ici.

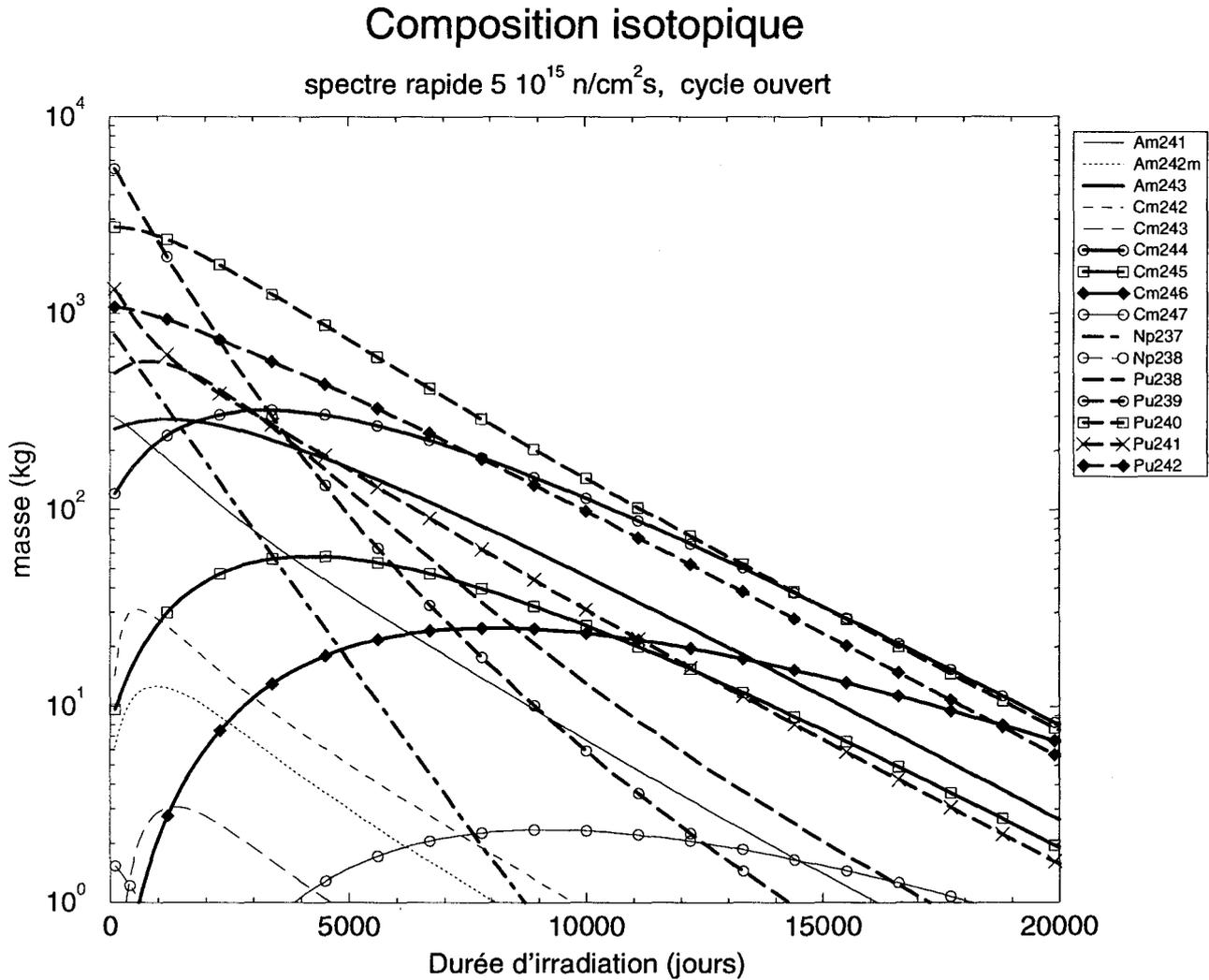


FIG. 4.6: L'évolution de la composition isotopique lors de l'incinération des déchets du cycle ouvert sous un flux rapide de $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$ présente moins de fluctuations qu'en spectre thermique. Le ^{239}Pu initial est fissionné et transmuté en ^{240}Pu , ce dernier étant l'isotope principal du mélange à partir de 1000 jours d'irradiation ($B=38\%$). Les isotopes du curium produits par captures successives atteignent leurs masses maximales bien avant de devenir prépondérants, au contraire du spectre thermique.

Gains en inventaire radiotoxique

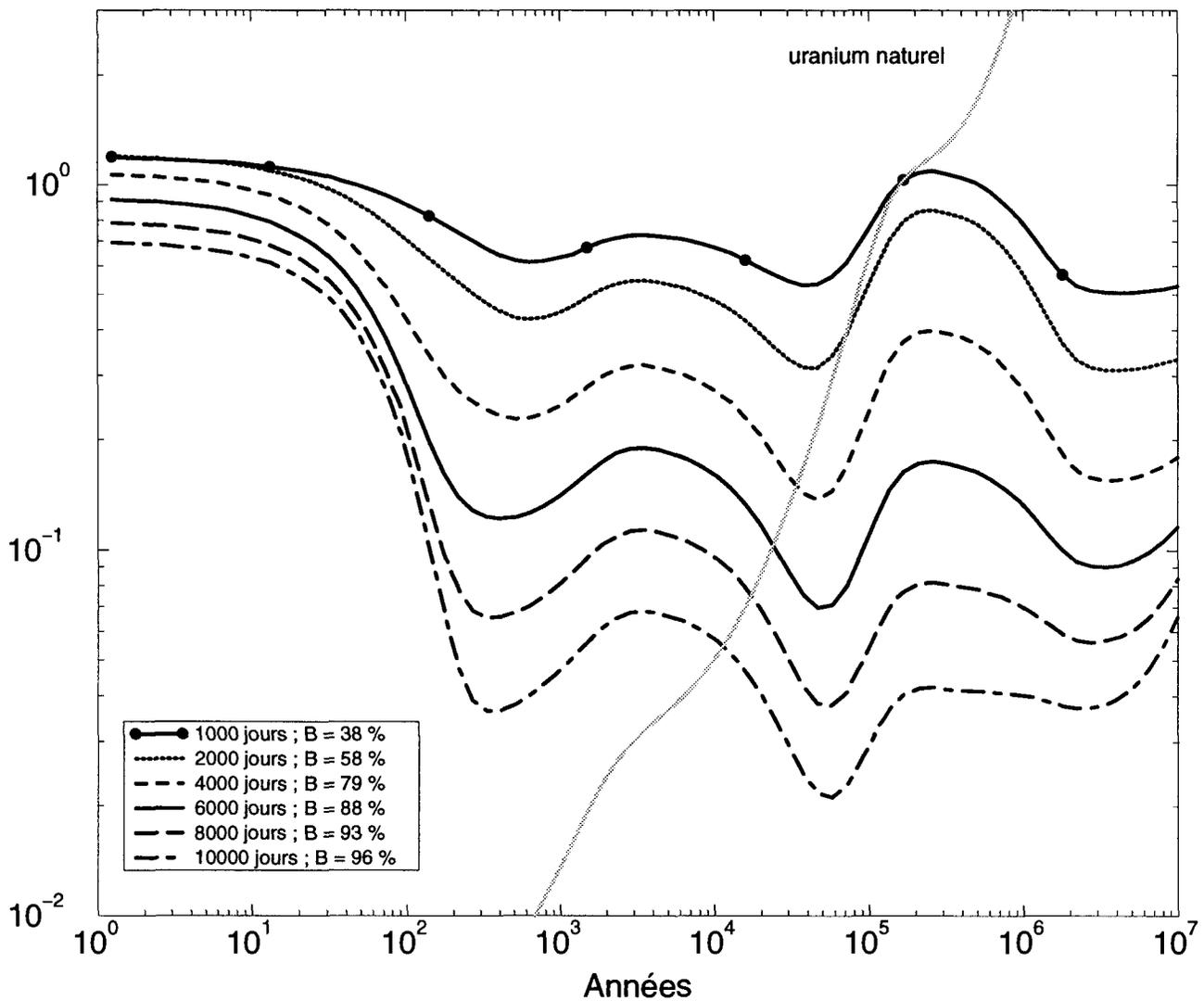
spectre rapide $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$, cycle ouvert

FIG. 4.7: L'étude de la composition isotopique du mélange au cours de l'irradiation montre que l'inventaire radiotoxique sera dominé par le ^{240}Pu pour la gamme de temps qui nous intéresse (entre 10^2 et 10^5 ans). Les gains réalisés pour des durées d'incinérations inférieures à 1000 jours sont négligeables car la masse de ^{240}Pu n'évolue pas. Au delà, nous avons une relation quasi-linéaire entre la réduction de l'inventaire radiotoxique et le taux d'incinération. La "bosse" entre 10^3 et 10^4 ans due au ^{240}Pu est identique à celle observée en spectre thermique (cf. figure 4.4 après 1000 jours d'irradiation) car le ^{244}Cm décroît en ^{240}Pu .

sera déterminé par des contraintes d'un autre ordre (neutronique, puissance ...). Plus le taux d'incinération sera élevé, plus les gains seront importants.

Les résultats exposés ici à un flux de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s sont extrapolables. Les calculs effectués avec 10^{15} et 10^{16} n/cm²s conduisent à des résultats semblables : les gains en terme de réduction de l'inventaire radiotoxique sont directement reliés au taux d'incinération. Remarquons tout de même que les temps d'irradiation se chiffrent en dizaines d'années : environ 20 ans pour un gain d'un facteur 10. Par ailleurs, une réduction équivalente à celle du régime de saturation en spectre thermique (schéma d'irradiation courte, 200 jours), nécessite 16 ans d'incinération en spectre rapide.

4.1.2 Scénarios MOX1 et MOX2

La teneur en plutonium de ces scénarios demeure importante. Le même comportement que dans le cycle ouvert est donc attendu, en particulier, dans le cas du spectre thermique, la saturation du gain après la fission du plutonium et avant l'accumulation de curium. Les résultats de l'incinération en spectre thermique des déchets du scénario MOX2 sont donnés figure 4.8 dans laquelle la saturation est explicite. Nous pouvons constater que :

1. l'inventaire radiotoxique est plus important au début, suite à la présence de ²⁴²Cm puis de ²⁴⁴Cm à mesure que l'incinération est prolongée ;
2. le gain entre 10^2 et 10^3 ans s'accroît au fur et à mesure des irradiations grâce à la fission du ²⁴¹Pu, permettant des gains d'un facteur 10 ;
3. entre 10^3 et 10^4 ans, la saturation observée dans le cas du cycle ouvert est toujours présente. Rappelons qu'elle est due au transfert de masse entre le ²⁴⁰Pu et le ²⁴⁴Cm en passant par l'²⁴³Am ;
4. le gain, une fois le niveau de radiotoxicité tombé en-dessous de celui de l'uranium naturel initial, est très faible pour les irradiations courtes, principalement à cause des restes de plutonium dans le mélange et s'améliore avec la transmutation quasi totale de ce dernier.

Les conclusions, explicitées ici dans le cas du scénario MOX2, sont identiques pour MOX1. On notera que les mêmes schémas d'irradiation apparaissent ici et dans le cas du cycle ouvert : irradiation courte, irradiation jusqu'au transfert entre le ²⁴⁴Cm et le ²⁴⁶Cm entraînant un ralentissement de l'efficacité d'incinération et irradiation prolongée pour retrouver un niveau de radiotoxicité proche de l'uranium initial. La conclusion importante de cette analyse est que la durée d'une irradiation "courte" varie peu pour un nombre limité de recyclages : deux cents jours d'irradiation permettent de réduire l'inventaire radiotoxique d'un facteur 5 au moins (en fait, un facteur 10 après quelques centaines d'années, qui devient un facteur 5 après 2000 ans). On notera tout de même que plus le nombre de recyclages est élevé, moins le gain réalisé après 200 jours d'irradiation est important. D'une part, la teneur en isotopes fertiles du curium (cf. table 4.1.2) est de plus en plus élevée au moment du transfert de masse du plutonium vers les isotopes du curium, réduisant par là les gains possibles par la fission supplémentaire de plutonium : le phénomène de saturation prend place sur une plage de gains de plus en plus réduite. D'autre part, il faut resituer ces gains vis-à-vis de ceux déjà réalisés par le combustible MOX dans les réacteurs de puissance (cf. figure 2.14). La part de l'incinération dans la réduction globale de l'inventaire radiotoxique diminue avec le nombre de recyclages.

Nous reviendrons plus loin sur les taux d'incinération nécessaires pour atteindre cet objectif et sur le bilan neutronique correspondant.

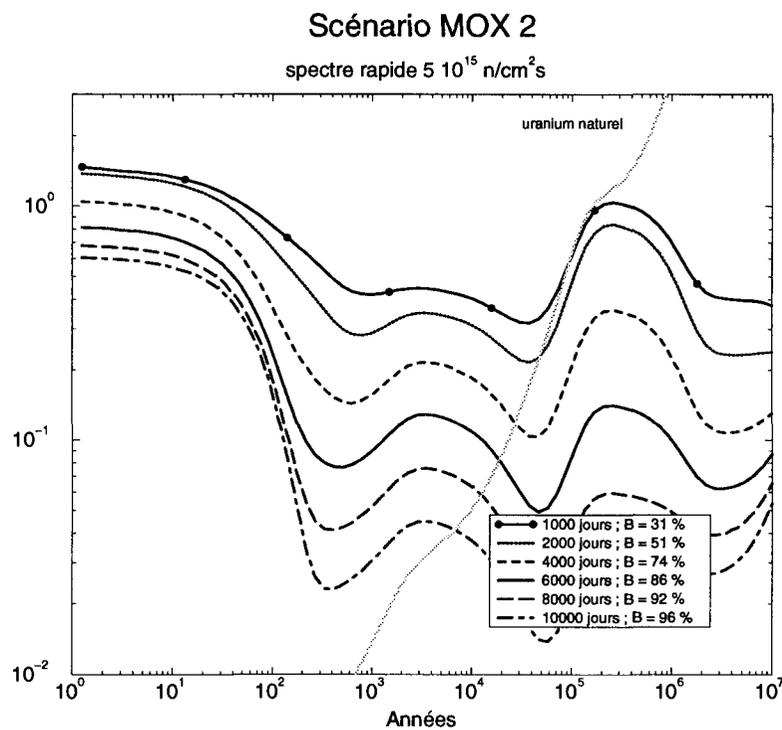
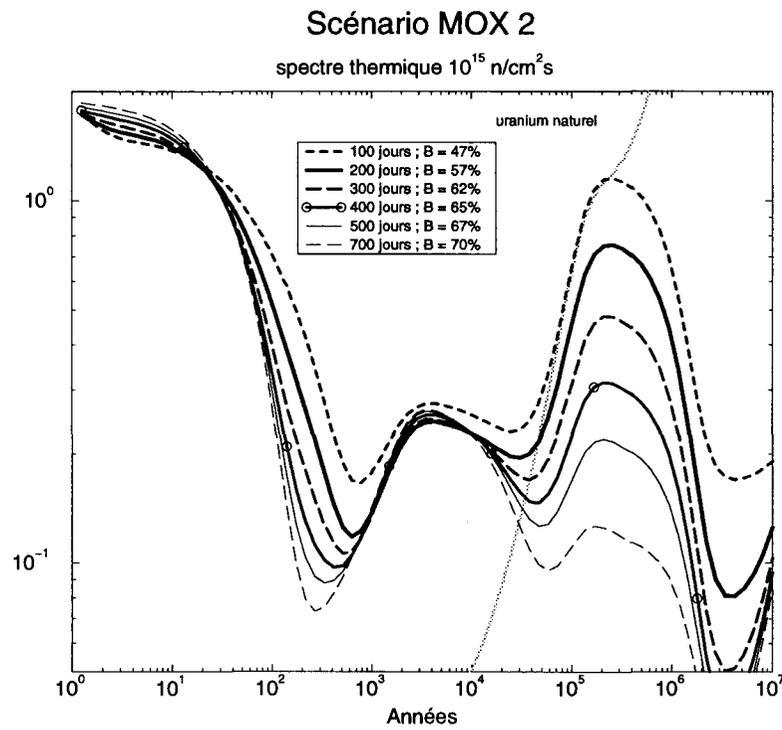


FIG. 4.8: *Spectre thermique* : le phénomène de saturation est encore plus marqué pour le scénario MOX 2 que pour le cycle ouvert, essentiellement en raison de la plus faible teneur en ^{239}Pu dans les déchets. Le gain moyen entre 10^3 et 10^4 années est de l'ordre de 5, identique au cycle ouvert sur la même période.

Spectre rapide : les courbes d'inventaire radiotoxique sont identiques à celles du cycle ouvert. Il faut simplement noter que les gains sont un peu plus importants pour ce scénario à taux d'incinération équivalents, simple conséquence de la diminution de la masse des déchets à détruire.

Isotopes	Scénario (tonnes)		
	cycle ouvert	MOX 1	MOX 2
²³⁷ Np	0,13	0,12	0,11
²⁴³ Am	0,50	0,54	0,51
²⁴² Cm	0,086	0,18	0,22
²⁴³ Cm	0,003	0,0063	0,0078
²⁴⁴ Cm	0,40	0,60	0,69
²⁴⁵ Cm	0,005	0,0078	0,009
²⁴⁶ Cm	0,06	0,013	0,016
²³⁸ Pu	0,18	0,19	0,20
²³⁹ Pu	0,025	0,027	0,027
²⁴⁰ Pu	0,19	0,15	0,12
²⁴¹ Pu	0,055	0,041	0,033
²⁴² Pu	2,2	1,8	1,2
Taux d'incinération	71 %	61 %	57 %

TAB. 4.1: Après 200 jours d'irradiation sous un flux thermique de 10^{15} n/cm²s, les déchets issus des différents scénarios ont été transmutés en produits de fission et en éléments plus lourds, essentiellement le ²⁴²Pu, l' ²⁴³Am et le ²⁴⁴Cm.

L'incinération en spectre rapide est identique pour les scénarios cycle ouvert, MOX1 et MOX2 (cf. figure 4.8). Le ²⁴⁰Pu est le principal responsable de l'inventaire radiotoxique et le gain varie linéairement avec le taux d'incinération. La réduction de la masse des déchets à détruire explique les gains plus importants pour le scénario MOX 2 par rapport au cycle ouvert, à taux d'incinération comparables (voir aussi figure 2.14). Aucun schéma privilégié n'est apparent et ces résultats se transposent à d'autres flux.

4.1.3 Scénario multirecyclage MOX

L'incinération des déchets issus du multirecyclage MOX, bien que dépourvus de plutonium, présente les mêmes caractéristiques que les autres scénarios (cf. figure 4.9).

La saturation des gains en radiotoxicité se produit après quelques centaines de jours d'irradiation, résultat de l'accumulation de ²⁴⁴Cm (cf. figure 4.9) provenant de la transmutation de l'américium. Comme nous l'avons déjà noté pour les scénarios avec un ou deux recyclages, le gain, lorsque cette saturation est atteinte, est plus faible que celui du cycle ouvert. Par ailleurs, le comportement est analogue pour toute irradiation prolongée : l'incinération en spectre thermique provoque l'accumulation rapide des isotopes fertiles du curium, quel que soit le scénario de départ, conduisant donc à des résultats d'incinération très voisins et à des schémas d'incinération comparables. Le taux d'incinération après 200 jours sous un flux thermique de 10^{15} n/cm²s est de 31 %.

Pour le spectre rapide, nous avons vu que le ²⁴⁰Pu domine l'inventaire radiotoxique. Or c'est aussi le fils du ²⁴⁴Cm qui se comporte de manière similaire sous irradiation. Les résultats doivent donc être semblables à ceux des autres scénarios. En effet, la figure 4.10 nous montre que le ²⁴⁴Cm est présent en quantité importante tout au long de l'irradiation et qu'aucun autre

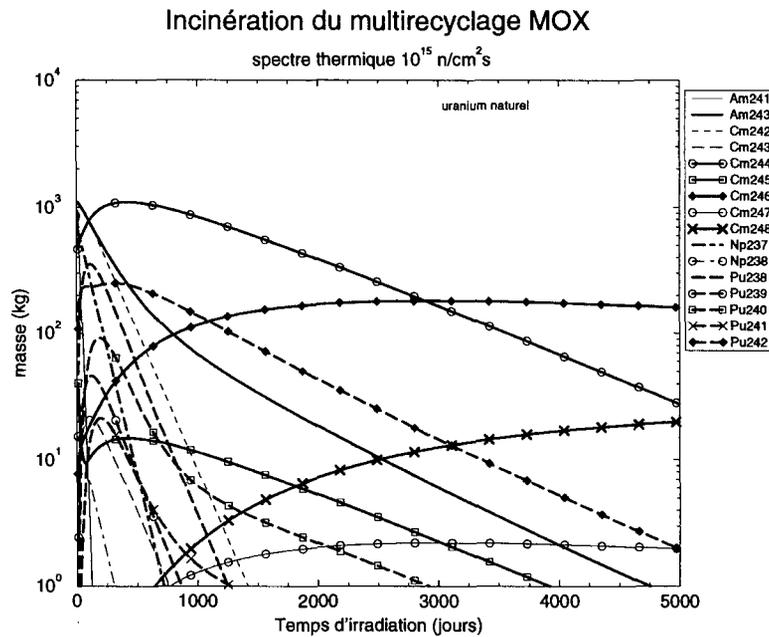
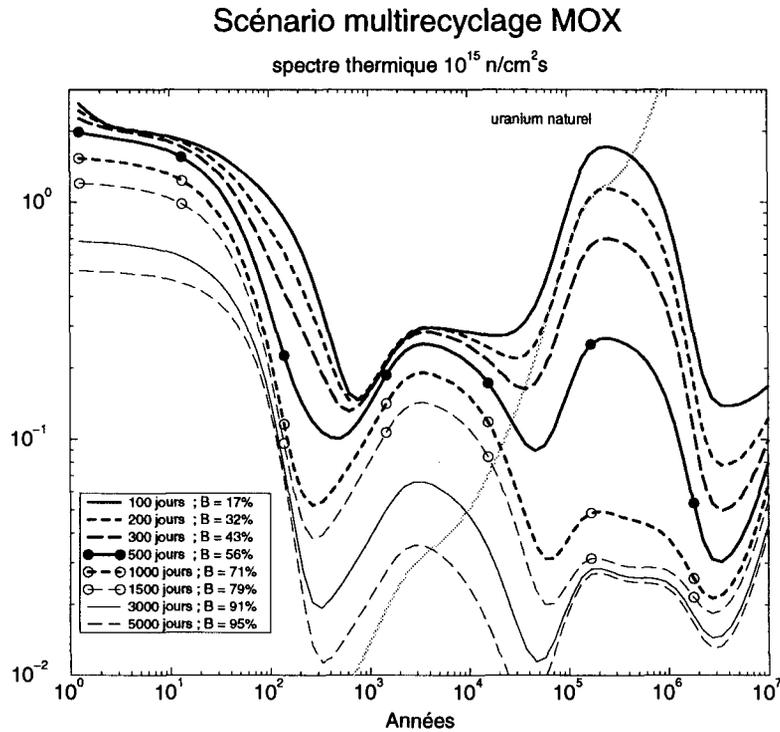


FIG. 4.9: Malgré l'absence de plutonium dans les déchets, le phénomène de saturation du gain est toujours apparent après une centaine de jours d'irradiation, résultat de l'accumulation progressive du ^{244}Cm . Pour des incinérations de courte durée, ce processus est responsable des gains limités. Si l'irradiation est poursuivie, la transmutation de cet isotope permet des gains importants où le plateau du ^{246}Cm entre 100 et 1000 ans est visible.

isotope, après 1000 jours, n'aura un impact plus important sur la radiotoxicité, si ce n'est le ^{240}Pu mais cela ne change en rien la relation entre le taux d'incinération et le gain réalisé.

Il faut noter que l'accumulation de ^{244}Cm pendant les premiers jours d'irradiation conduira à une saturation du gain mais, au delà, comme pour les autres scénarios, aucun schéma privilégié d'incinération n'est apparent. La solution sera donc dictée par des considérations de bilan neutronique, par exemple.

Les gains obtenus dans ce cas ci sont plus importants à même taux d'incinération suite à une masse plus faible de déchets et à un inventaire radiotoxique déjà réduit (cf. figure 2.14).

4.1.4 Conclusion

L'étude de l'incinération des déchets nucléaires en spectre thermique met en évidence trois schémas possibles d'incinération : (i) une irradiation de courte durée, 200 jours pour un flux neutronique de 10^{15} n/cm²s, réduisant l'inventaire radiotoxique d'un facteur 5 au moins, les taux d'incinération étant de 71% pour le cycle ouvert, 61% pour MOX1, 57% pour MOX2 et 31% pour le multirecyclage MOX ; (ii) une irradiation plus longue, 3 500 jours pour le scénario du cycle ouvert, permettant de détruire 95% des actinides, elle correspond à un ralentissement de l'efficacité d'incinération ; (iii) une incinération de 5 000 jours pour assurer le retour de l'inventaire radiotoxique à trois fois celui de l'uranium naturel en quelques centaines d'années, soit un gain d'un facteur 20. Pour tous ces schémas privilégiés, les taux d'incinération sont supérieurs à 30 %. Le scénario du cycle ouvert présente des avantages quant aux gains possibles à cause de sa forte teneur en plutonium fissile, mais les taux d'incinération à réaliser sont plus élevés que pour les autres scénarios, avec des durées d'incinération comparables. Rappelons que les isotopes principaux responsables de la radiotoxicité sont le ^{244}Cm et le ^{246}Cm , quel que soit le scénario.

L'incinération en spectre rapide quant à elle est beaucoup plus simple, à cause de l'homogénéité des sections efficaces entre isotopes : le gain varie linéairement avec le taux d'incinération. L'inventaire radiotoxique est dominé par le ^{240}Pu , soit en tant qu'isotope du mélange en fin d'irradiation pour les scénarios dont les déchets contiennent du plutonium, soit en tant que fils à durée de vie longue du ^{244}Cm pour le scénario de multirecyclage. Le choix du meilleur schéma d'irradiation se fera grâce à l'optimisation de certains paramètres du système comme la durée d'incinération ou le bilan neutronique.

Remarquons finalement que les gains sont plus importants en spectre thermique qu'en spectre rapide à taux d'incinération égaux. Une irradiation courte des déchets du cycle ouvert en spectre thermique, c'est-à-dire un taux d'incinération de 71%, conduit à des gains compris entre 5 et 10, alors que le spectre rapide permet de gagner au plus un facteur 3 par rapport au cycle ouvert. Cet écart, important pour des taux d'incinération correspondant à la saturation en spectre thermique, s'estompe pour des taux d'incinération plus élevés et pour les scénarios à plus faible teneur en plutonium.

4.2 Paramètres physiques des cœurs

Nous avons mis en évidence des schémas d'incinération qui permettent de réduire l'inventaire radiotoxique de manière significative. Ces calculs reposent sur un spectre et un flux de neutrons indépendants de la composition du mélange, à savoir que les déchets à détruire n'induisent qu'une perturbation négligeable du système. Reste à comprendre comment les pa-

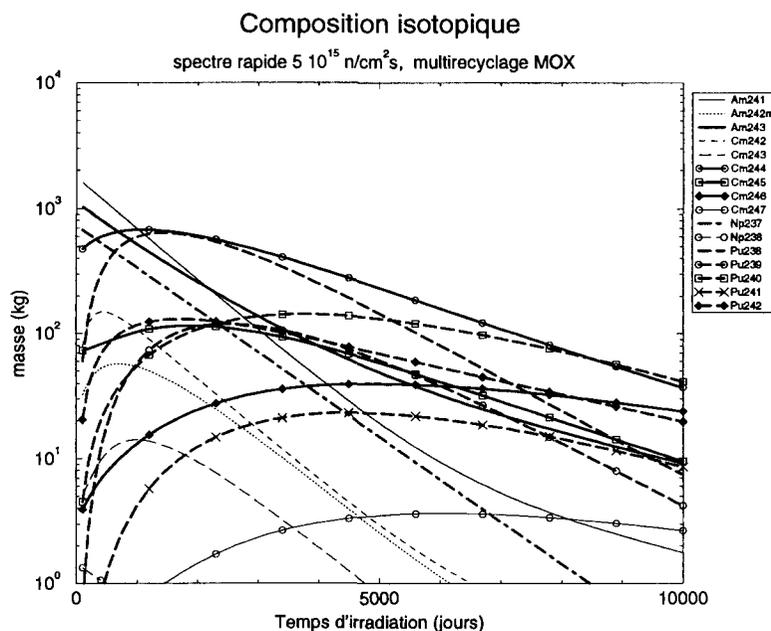
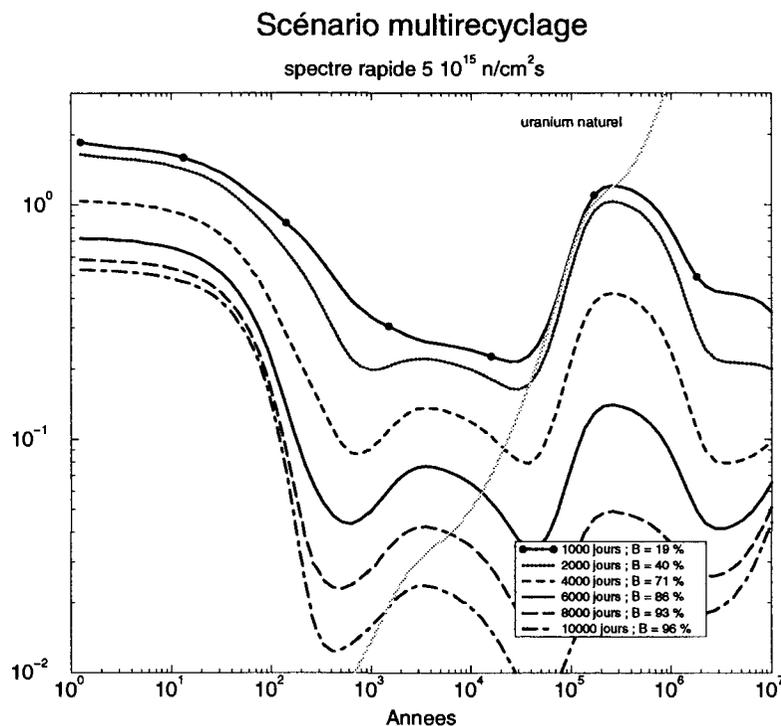


FIG. 4.10: La réduction de l'inventaire radiotoxique des déchets du multirecyclage MOX en spectre rapide présente les mêmes caractéristiques que les autres scénarios, à savoir une relation linéaire entre le taux d'incinération et le gain. Aucun schéma n'est privilégié comme c'est le cas pour le spectre thermique. L'explication vient de la composition isotopique du mélange, dont l'isotope principal est le ^{244}Cm . Ce dernier joue exactement le même rôle que le ^{240}Pu pour les autres scénarios.

ramètres globaux du système évoluent au cours de ces irradiations. L'étude sera centrée sur les grandeurs suivantes : la durée d'irradiation, le taux d'incinération, la puissance thermique dissipée et la consommation de neutrons (donc le bilan neutronique). Afin de déterminer les grandes tendances de chaque grandeur, nous considérerons trois valeurs de flux pour chaque spectre : $5 \cdot 10^{14}$, 10^{15} et $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s pour le spectre thermique et 10^{15} , $5 \cdot 10^{15}$ et 10^{16} n/cm²s pour le spectre rapide.

4.2.1 Le taux d'incinération

4.2.1.1 Spectre thermique

En comparant la réduction de l'inventaire radiotoxique pour différents flux neutroniques, nous avons constaté que seule importe la fluence, ou encore le taux d'incinération. Nous pouvons relier ce taux d'incinération à la durée d'irradiation. Dans le cas de l'incinération des déchets issus du cycle ouvert en spectre thermique, les résultats sont donnés figure 4.11, illustrant le comportement attendu d'une incinération sans alimentation pour des taux d'incinération inférieurs à 70 %, à savoir une évolution en $(1 - e^{-\mu t})$. Au-delà, le comportement constaté ci-dessus pour ce qui est de la variation de la composition isotopique est de nouveau visible. La production de ²⁴⁴Cm entraîne le ralentissement de l'incinération (cf. figure 4.5). Avec sa transmutation, après 1000 jours d'irradiation, l'incinération s'accélère avant de ralentir à nouveau avec l'accumulation de ²⁴⁶Cm.

Ce comportement, qui privilégie le premier schéma d'incinération considéré pour le cycle ouvert en spectre thermique, à savoir une incinération de courte durée pour détruire le plutonium sans accumuler trop de ²⁴⁴Cm, se traduit de manière analogue pour chaque flux, moyennant le décalage logarithmique dû au niveau de flux (cf. figure 4.11).

La relation entre la durée d'irradiation et le taux d'incinération dans les autres scénarios, MOX 1 et MOX 2, montre un comportement analogue (cf. figure 4.11) à celui observé dans le cas du cycle ouvert. Le ralentissement après quelques centaines de jours d'irradiation est toutefois moins prononcé, parce que la teneur initiale en plutonium est plus faible, d'où une vitesse d'incinération plus faible. Après 200 jours d'irradiation, nous retrouvons les taux d'incinération de 71%, 61% et 57% respectivement pour les trois premiers scénarios.

Dans le cas du multirecyclage MOX, l'absence de plutonium dans le "combustible" conduit à une combustion plus lente au début de l'irradiation, du fait de l'accumulation de curium. Après une centaine de jours d'irradiation, la fission de ²⁴⁵Cm commence, nettement marquée sur la figure 4.11.

Les résultats présentés ici valent également pour des niveaux de flux différents si l'on compense le niveau de flux par un facteur d'échelle portant sur la durée de l'irradiation.

4.2.1.2 Spectre rapide

L'homogénéité des sections efficaces pour les isotopes en spectre rapide conduit à un comportement plus régulier du taux d'incinération en fonction du temps. C'est ce que nous montre la figure 4.12 où nous retrouvons la courbe attendue en $(1 - e^{-\lambda t})$ obtenue par la décroissance exponentielle de la masse au cours de l'irradiation.

Nous remarquons aussi que le faisceau de courbes des différents scénarios est plus resserré que dans le cas thermique et qu'aucune discontinuité n'apparaît entre les déchets MOX 2 et

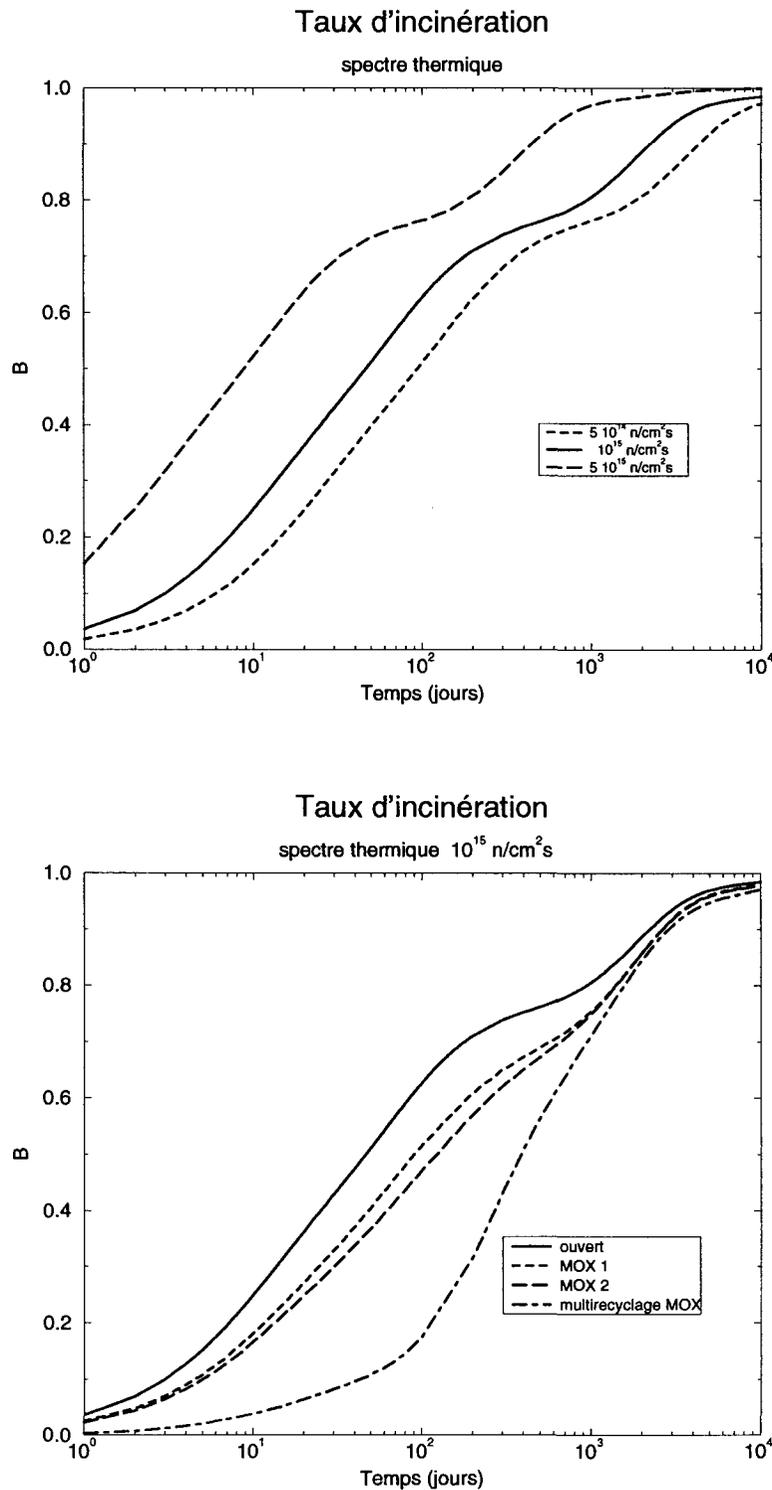


FIG. 4.11: Cycle ouvert : le type de relation entre le taux d'incinération et le temps nécessaire pour y parvenir est identique pour tous les flux considérés et nous distinguons trois phases essentielles. Pour les taux d'incinération faibles, le plutonium est fissionné, d'où le comportement attendu en $(1 - e^{-\mu t})$. Après 75% d'incinération, la production des isotopes pairs du curium provoque un ralentissement important du taux de réaction. Finalement, au delà de 90%, nous retrouvons le comportement attendu d'une réaction nucléaire.

Autres scénarios : nous retrouvons la même évolution, de moins en moins marquée puisque la teneur initiale en plutonium décroît. Pour le scénario de multirecyclage MOX au contraire, nous avons une rupture de pente, résultat de l'absence de plutonium. La vitesse de réaction est beaucoup plus lente pour les taux d'incinération inférieurs à 20%, à cause des sections faibles du ^{244}Cm , mais est plus importante après.

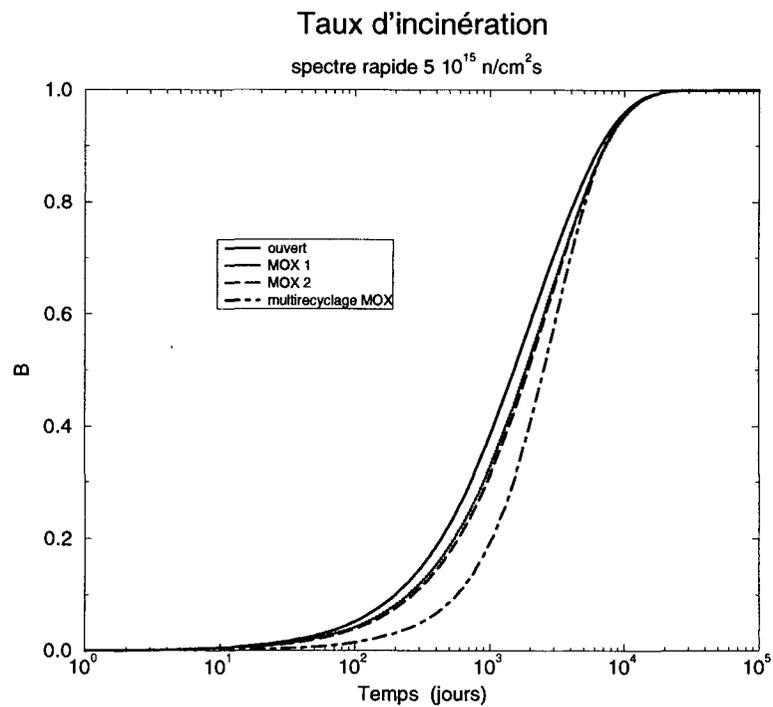
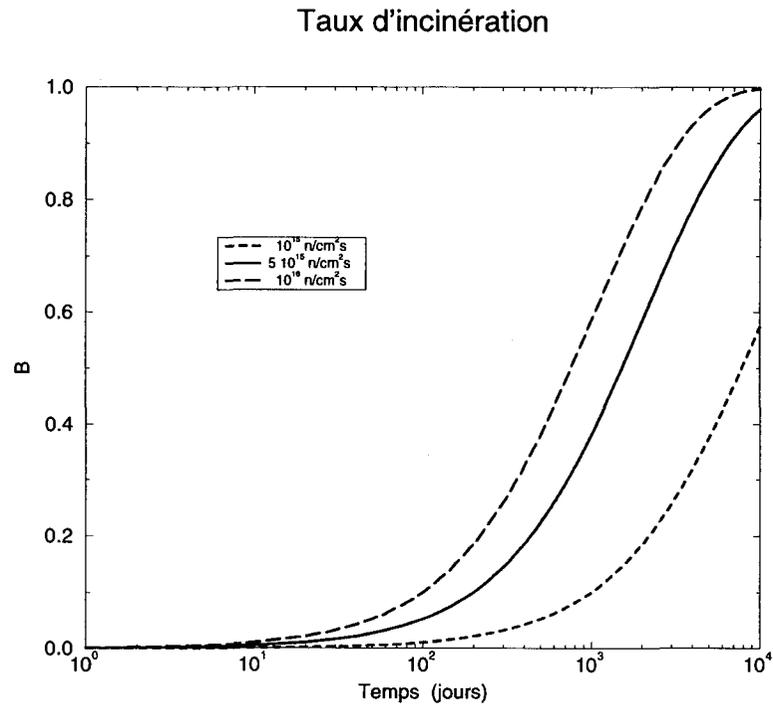


FIG. 4.12: La relation entre la durée et le taux d'incinération lors d'une irradiation en spectre rapide est plus intuitive que pour le spectre thermique. Nous retrouvons le comportement attendu à partir des sections efficaces homogènes entre isotopes. On n'observe pas non plus de discontinuité entre les scénarios MOX2 et multirecyclage MOX.

ceux issus du multirecyclage MOX. L'explication se trouve dans les valeurs absolues des sections efficaces comme nous l'avons déjà remarqué.

Hormis le caractère parfaitement homogène du spectre rapide vis-à-vis du taux d'incinération, il est important de noter les ordres de grandeurs des temps nécessaires pour atteindre un niveau donné d'incinération. Pour détruire les déchets à plus de 90 %, et donc obtenir une réduction de l'inventaire radiotoxique d'au moins un facteur² 10, il faut irradier les actinides pendant 20 ans.

4.2.2 Evolution de la puissance dissipée au cours de l'irradiation

Au cours de l'irradiation, la variation de la composition isotopique du mélange fait que la puissance thermique dissipée évolue. C'est là une contrainte importante sur le dimensionnement de l'installation.

4.2.2.1 Incinération en spectre thermique

Dans le cas de l'incinération des déchets du cycle ouvert, le plutonium est fissionné très tôt, en quelques centaines de jours, pour laisser place au curium nettement moins fissile. Cela se traduit par une diminution de la puissance thermique au cours de l'irradiation due à la fois à la modification de la composition et à la réduction de la masse d'actinides³.

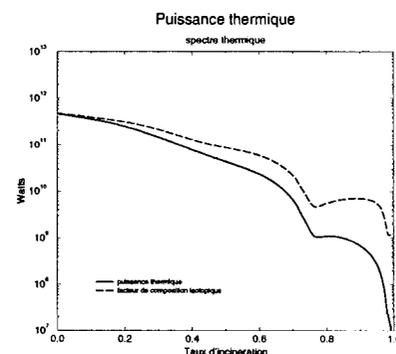
La figure 4.13 quantifie ce phénomène. La fission du plutonium initial, jusqu'à un taux d'incinération de 75%, conduit à une baisse de la puissance dissipée d'un facteur 200 : la composition isotopique du mélange est centrée sur les isotopes pairs, essentiellement le ^{242}Pu et le ^{244}Cm . Au-delà, la production de ^{245}Cm entraîne une stabilisation de la puissance, avant que cet isotope ne soit détruit à son tour.

De telles baisses de puissance ne permettent que très difficilement d'envisager un réacteur chargé au départ avec uniquement les déchets du cycle ouvert, car cela demande un surdimensionnement des installations. Ce phénomène étant principalement dû à la présence d'isotopes très fissiles, il peut être intéressant d'étudier l'évolution temporelle de la puissance thermique pour les scénarios à plus faible teneur initiale en ^{239}Pu (cf. figure 4.13).

En fait, la réduction en masse de plutonium dans les scénarios MOX1 et MOX2 n'est pas suffisante pour éviter que la distribution temporelle de puissance soit très piquée à l'origine.

2. Avec $B = 90\%$ nous avons une réduction de l'inventaire d'un facteur 10 par rapport aux déchets initiaux. Par ailleurs, il faut tenir compte du gain déjà réalisé par le combustible MOX pour les scénarios MOX1, MOX2 et multirecyclage MOX.

3. Cette dernière contribution est une fonction linéaire du taux d'incinération et contribue à la chute de puissance au cours du temps. Il est possible d'étudier l'effet de la composition isotopique sur la puissance thermique : le comportement est en tout point similaire à la tendance générale de la puissance totale dissipée, comme l'indique la figure ci-jointe.



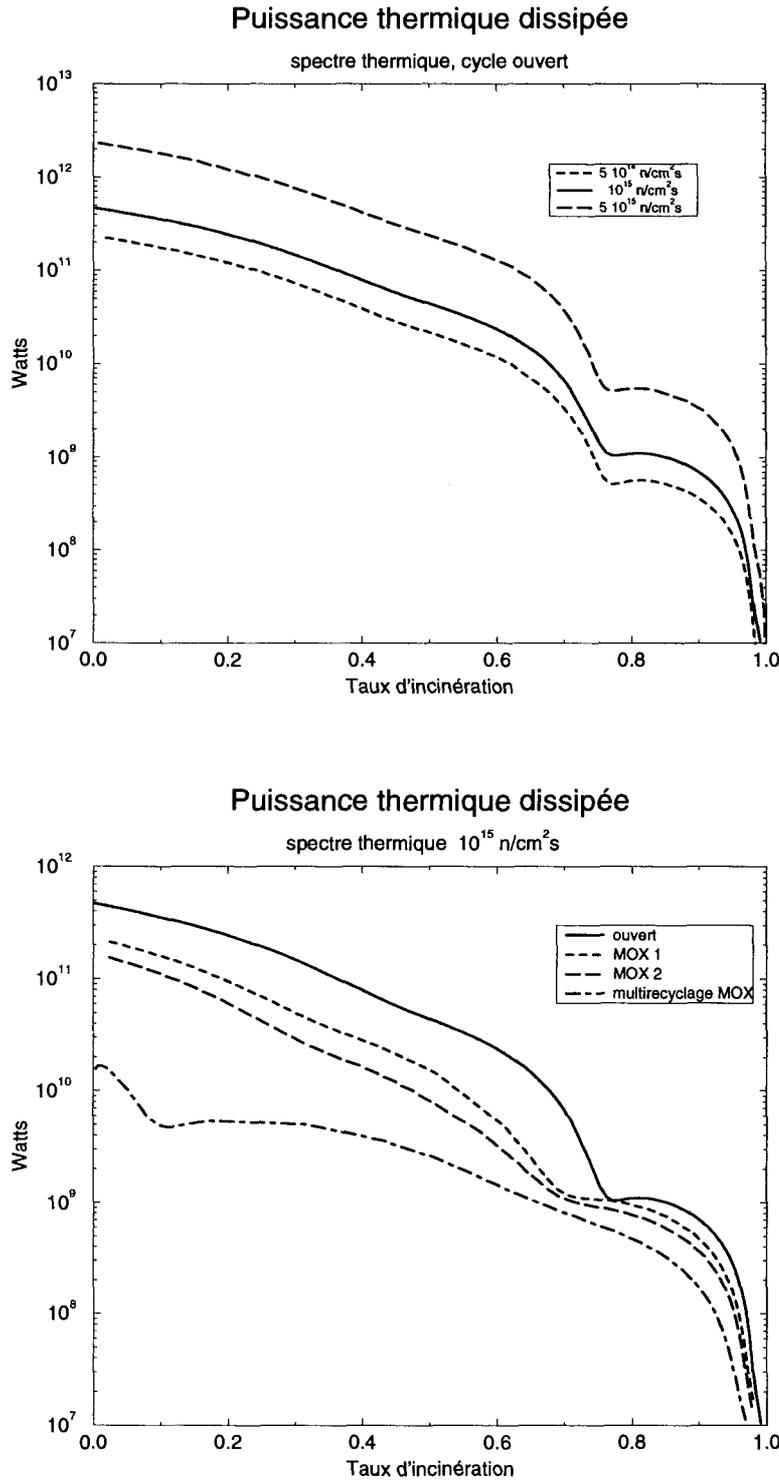


FIG. 4.13: La puissance dissipée au cours de l'irradiation des déchets issus du cycle ouvert décroît fortement lors de la fission du plutonium initial. Nous observons aussi une stabilisation de celle-ci après 80% d'incinération correspondant à la production et à la fission de ^{245}Cm . Il est important de rapprocher cette courbe de celle donnant le taux d'incinération en fonction de la durée d'irradiation (cf. figure 4.11) pour en déduire que la chute de puissance se déroule sur une centaine de jours et la stabilisation de la puissance sur des milliers de jours d'irradiation.

Ce n'est que dans le cas du multirecyclage MOX qu'un effet sensible est obtenu puisque non seulement la puissance varie moins en fonction du taux d'incinération, mais la vitesse d'incinération est aussi plus faible (cf. figure 4.11). Malgré une amélioration importante, la baisse de puissance demeure importante pendant une irradiation de courte durée (facteur 5).

L'étude du taux d'incinération et de l'évolution de la puissance thermique au cours de l'irradiation dans le cas du spectre thermique montre que le scénario de multirecyclage présente, à ce stade, trois avantages importants pour l'éventuelle utilisation de combustible solide :

- les taux d'incinération, dans le cas d'incinérations de courtes durées, sont plus faibles que pour les autres scénarios (32% au lieu de 57 % voire 71%), d'où des problèmes moindres quant à la tenue des matériaux lors de l'accumulation importante de produits de fission ;
- une distribution de puissance plus homogène dans le temps, même si elle présente d'importantes variations au cours de l'irradiation ;
- une puissance totale plus faible, donc un nombre d'incinérateurs pouvant être réduit, ce qui permet de limiter les infrastructures et l'impact de la transmutation des déchets sur le coût de l'électricité.

Le cycle ouvert, qui présente des avantages quant à la réduction de l'inventaire radiotoxique de par son incinération plus performante, est bien moins placé. Une irradiation courte est synonyme d'une perte de puissance d'un facteur 50.

4.2.2.2 Incinération en spectre rapide

La distribution temporelle de puissance lors de l'incinération en spectre rapide est donnée figure 4.14 pour les différents scénarios dans le cas d'un flux de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s. De nouveau, nous notons la grande similitude entre les scénarios. La puissance décroît d'un facteur 10 pour un taux d'incinération de 82%, à comparer au facteur 500 observé en spectre thermique au même taux d'incinération. Seul le multirecyclage présente une particularité : la puissance croît au début de l'irradiation (comme pour le spectre thermique d'ailleurs). Il s'agit d'une compensation partielle entre deux effets, le premier lié à la composition isotopique du mélange qui devient progressivement plus réactive avec la formation d'isotopes impairs du curium et le second lié à la diminution de la masse d'actinides, le premier l'emportant sur le second en début d'irradiation.

Comparée au spectre thermique, cette distribution est relativement plate donc plus facile à gérer.

4.2.3 Le bilan neutronique

Après avoir analysé l'évolution du taux d'incinération et de la puissance thermique, il nous reste à considérer le bilan neutronique du mélange. Cette étude déterminera les capacités du mélange à produire des neutrons en quantités suffisantes et donc la possibilité d'envisager un réacteur à combustible solide chargé uniquement avec les déchets du scénario retenu.

Nous utiliserons pour cela les résultats théoriques développés au chapitre 3 concernant la dynamique de la consommation de neutrons et la prise en compte des produits de fission issus de l'incinération. Nous n'y reviendrons pas, mais rappelons le règle fondamentale de cette notion : l'additivité des consommations de neutrons. Pour connaître le bilan neutronique d'un cœur, il suffit de faire la somme des différentes contributions.

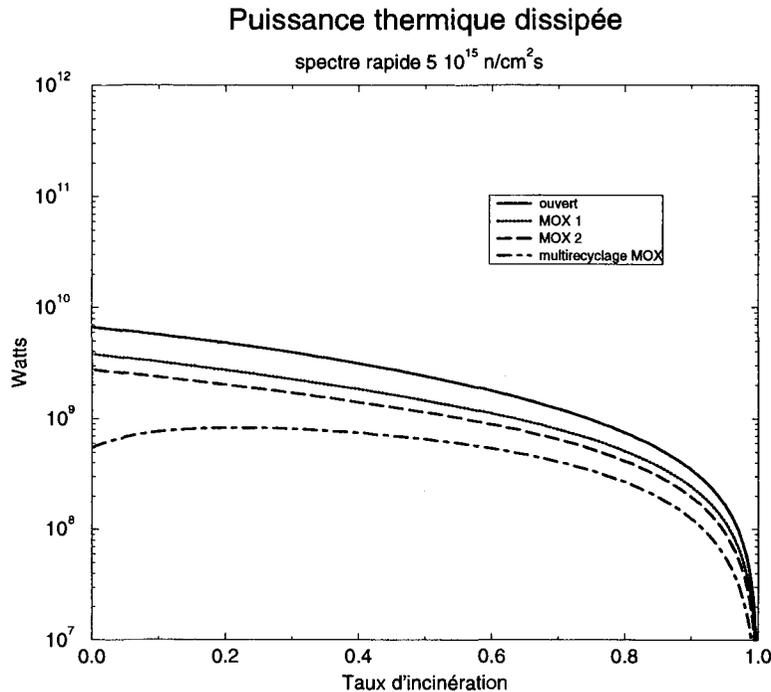


FIG. 4.14: La distribution de puissance au cours de l'irradiation est semblable pour les quatre scénarios, nonobstant le léger accroissement de puissance pour des taux d'incinération inférieurs à 20% dans le cas du multirecyclage MOX, provenant du caractère peu fissile du mélange initial et de la formation d'isotopes impairs du curium avant que la destruction des actinides devienne importante.

4.2.3.1 Spectre thermique

Dans le cas du cycle ouvert, comme pour le taux d'incinération et la puissance dissipée, nous retrouvons le comportement particulier du système soumis à un spectre thermique par suite de la présence de plutonium (cf. figure 4.15). Le mélange initial est très fissile grâce au ^{239}Pu présent en proportion importante: $D \approx -1,15$. Au cours de l'irradiation, le mélange évolue avec une diminution du surplus neutronique jusqu'à des taux d'incinération de 76% et la présence des produits de fission commence à être significative après 40% d'incinération. Par ailleurs, le bilan neutronique des actinides passe par un maximum: les isotopes ^{242}Pu et ^{244}Cm s'accumulent progressivement avant d'être transmutés et de conduire, notamment, au ^{245}Cm très fissile, responsable du meilleur bilan neutronique.

L'incinération des déchets issus du cycle ouvert sur de longues durées pose ainsi deux problèmes :

- les produits de fission conduisent à un bilan neutronique très positif au-delà de 60% d'incinération. Pour poursuivre la transmutation, le retraitement des combustibles irradiés s'impose. Comme ce retraitement est déterminé par un taux d'incinération, le temps d'irradiation correspondant dépend de la valeur du flux. Des contraintes sur le taux de chargement⁴ du cœur peuvent alors imposer des flux inférieurs à $5 \cdot 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$ et nous

4. En effet, plus le flux est élevé, plus la vitesse de transmutation est importante. Il faut donc assurer un renouvellement du combustible de plus en plus rapide, au point où les opérations de chargement prennent le pas

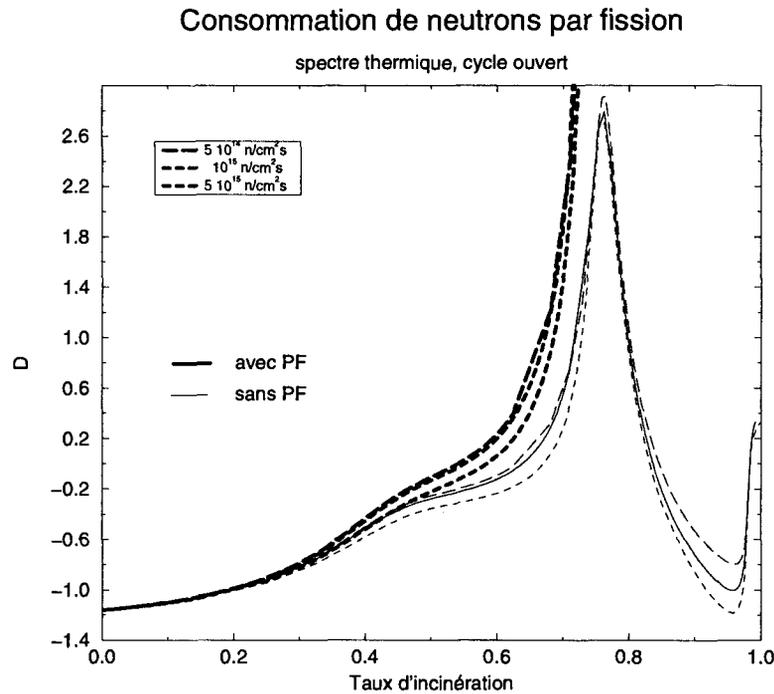


FIG. 4.15: L'évolution du bilan neutronique des déchets du cycle ouvert irradiés en spectre thermique (en gras le bilan comprenant actinides et produits de fission, sinon actinides uniquement). Pour les actinides seuls, nous observons un comportement tout à fait spécifique du spectre thermique. L'accumulation de ²⁴⁴Cm entraîne un pic de consommation de neutrons. Il correspond au début de la saturation de l'inventaire radiotoxique évoqué plus haut. Le bilan s'améliore pour des taux d'incinération supérieurs à 76% avec la formation progressive des isotopes impairs du curium. Quant au bilan avec les produits de fission, il ne cesse de croître avec le taux d'incinération. Seul le premier schéma privilégié (irradiation courte) dispose d'un bilan neutronique favorable.

retrouvons les flux neutroniques typiques des réacteurs REP ;

- même en supprimant les produits de fission, le bilan neutronique passe par un maximum à $D = 2,9$ (pour un taux d'incinération de 76%, soit 500 jours d'irradiation sous un flux de 10^{15} n/cm².s) provenant de l'accumulation de ²⁴²Pu et ²⁴⁴Cm et de la baisse de puissance simultanée.

Le cumul de ces deux effets sur le bilan neutronique permet difficilement d'envisager les irradiations longues évoquées plus haut.

Ces conclusions restent valables pour les scénarios MOX 1 et MOX 2 (cf. figure 4.16) pour lesquels le pic neutronique se produit pour des taux d'incinération plus faibles, simple conséquence de la diminution de la teneur initiale en plutonium. Par ailleurs, ce pic est moins prononcé car la baisse de puissance est moins importante lors de la transition entre le plutonium et le curium. Malgré ces gains sur le bilan neutronique des actinides, l'impact des produits de fission reste réhibitoire même pour les incinérations de courtes durées car ils sont les plus grans consommateurs de neutrons. Par ailleurs, l'impact d'un flux neutronique plus élevé est faible sur le

sur la durée fonctionnement du réacteur, limitant le flux réel "vu" par le déchets.

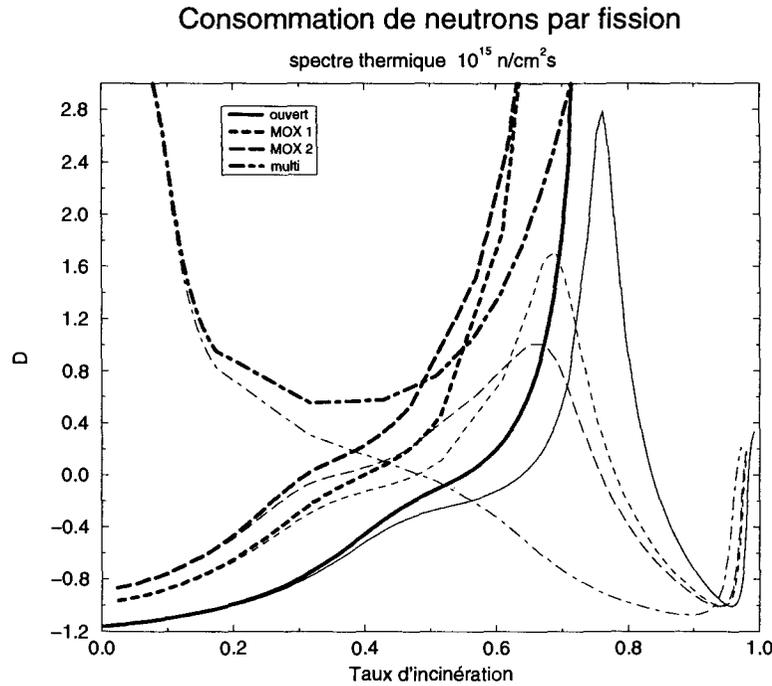


FIG. 4.16: L'incinération des scénarios MOX1 et MOX2 conduit aux mêmes remarques que dans le cas du cycle ouvert : les produits de fission dégradent le bilan neutronique significativement à partir d'un taux d'incinération correspondant à celui de l'incinération courte, c'est-à-dire le début de la saturation de l'inventaire radiotoxique, donc décroissant en fonction du nombre de recyclages (en gras le bilan comprenant actinides et produits de fission, sinon actinides uniquement). Le pic des actinides est aussi moins prononcé et se produit à des taux d'incinération plus faibles, conséquence de la proportion moindre de plutonium dans les déchets à incinérer. Le multirecyclage a un bilan neutronique des actinides qui s'améliore avec l'irradiation à cause du caractère fertile des déchets, mais la présence des produits de fission rend même l'incinération de courte durée irréaliste.

potentiel neutronique des actinides et donc sur le bilan neutronique. Notons toutefois qu'un flux plus élevé permet d'améliorer le bilan neutronique quel que soit le taux d'incinération.

Le scénario multirecyclage MOX présente des caractéristiques très différentes : le mélange d'actinides initial est fortement consommateur de neutrons pour un flux $10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$, ne devenant producteur qu'avec l'accumulation d'isotopes fertiles du curium, mais les taux d'incinération sont tels que les produits de fission dominent le bilan neutronique. A aucun moment le mélange global actinides - produits de fission n'est producteur de neutrons. Pour un flux plus important, le bilan neutronique est fortement modifié (cf. figure 4.19) mais demeure très médiocre. Cette transition s'explique par l'importance croissante de la fission dans les voies ouvertes à l' ^{242g}Am dont la durée de vie est de 16 heures (cf. section 3.1.3.2).

Nous reviendrons, lors de l'étude du chargement continu, sur certaines alternatives pour améliorer le bilan neutronique propre aux réacteurs hybrides incinérateurs de déchets. Par exemple, la production d'électricité n'étant pas un objectif en soi, il est concevable de fonctionner à une température plus faible pour profiter des variations en $1/v$ des sections efficaces et de la transition observée sur l' ^{241}Am .

4.2.3.2 Spectre rapide

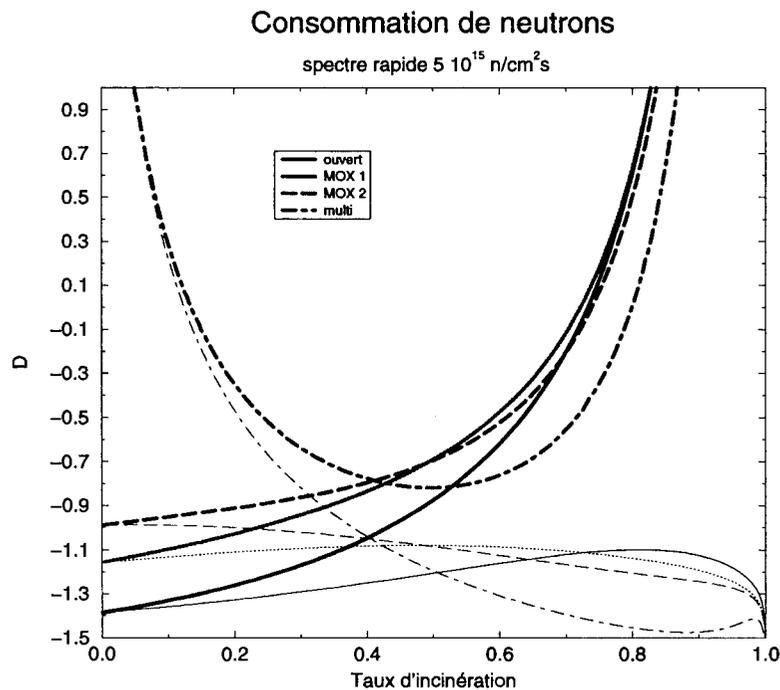


FIG. 4.17: Le bilan neutronique lors d'une irradiation en spectre rapide à $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$ est très négatif pour tous les déchets à forte teneur en plutonium et permet d'envisager des incinérations jusqu'à un taux de 70%. Le cas du multirecyclage MOX est atypique puisque le bilan initial est positif ($D = 2,51$) donc défavorable mais sa baisse importante, due à la forte teneur en isotopes impairs du curium, permet d'avoir un bilan neutronique satisfaisant jusqu'à un taux d'incinération de 78%.

Comme il a déjà été noté, le comportement du bilan neutronique en fonction du taux d'incinération est beaucoup plus "simple" que dans le cas du spectre thermique (cf. figure 4.17). Dans le cas des déchets du cycle ouvert, la consommation de neutrons augmente progressivement, passant de $-1,39$ à $-1,1$ après 4400 jours d'irradiation ($B = 81\%$). En effet, le bilan neutronique du mélange se détériore avec la disparition du ^{239}Pu et l'accumulation du ^{244}Cm , sans oublier bien évidemment le ^{240}Pu , isotope central dans toutes les incinérations en spectre rapide. Puis, avec la formation d'isotopes plus lourds, le bilan neutronique s'améliore, pour finir à $-1,94$ après 10^5 jours d'irradiation⁵. Les produits de fission dégradent cet excellent bilan, mais la marge initiale permet d'atteindre des taux d'incinérations assez élevés :

D	B
-0,3	68%
-0,15	71%

Notons que la réduction de l'inventaire radiotoxique est tout de même assez faible: le gain est d'un facteur 3.

⁵. Nous indiquons ce bilan neutronique uniquement à titre de référence, la durée d'incinération, 270 ans, étant bien évidemment irréaliste.

L'incinération des déchets issus des scénarios MOX1 et MOX2 conduisent à des taux d'incinération comparables. Par contre, la variation du bilan neutronique sans produits de fission est significativement différente dans les deux cas puisque dans le cas MOX2 la consommation de neutrons s'améliore sans cesse avec le taux d'incinération : le mélange initial est moins producteur de neutrons, tout en restant très négatif ($D = -0,99$), et la formation d'isotopes impairs du curium assez tôt dans l'irradiation permet de rendre ce bilan encore plus négatif.

Ce phénomène est encore renforcé dans le cas des déchets du multirecyclage MOX. Le bilan initial est de 2,51 et, après 7 000 jours d'irradiation ($B = 89\%$), nous avons $D = -1,47$. La courbe du bilan neutronique incluant les produits de fission est une "hyperbole" dont le minimum est $D = -0,82$ pour $B = 50\%$ au bout de 2500 jours d'irradiation. Par ailleurs, le taux d'incinération "maximal", au sens où le mélange reste suffisamment producteur de neutrons, est plus important, ce qui permet d'envisager de réduire l'inventaire radiotoxique d'un facteur 10 par rapport au cycle ouvert :

D	B
-0,3	76%
-0,15	78%

Finalement une hausse du flux neutronique permet toujours d'améliorer le bilan neutronique. Nous ne poursuivrons pas plus avant l'étude de ce paramètre car les différences mises en évidence ne changent en rien les tendances générales.

4.2.4 Conclusion

L'étude du comportement des actinides des différents scénarios sous un flux neutronique fait ressortir plusieurs points. Du strict point de vue de l'incinération et sans référence à un réacteur hybride, la destruction des déchets nucléaires en spectre thermique et en spectre rapide diffèrent significativement. Dans le premier cas, plusieurs schémas privilégiés ont été mis en évidence: une irradiation courte, une irradiation jusqu'au ralentissement de la vitesse de transmutation et un schéma permettant de rejoindre un niveau raisonnable de radiotoxicité après quelques centaines d'années de stockage. En spectre rapide au contraire, la réduction de l'inventaire radiotoxique est progressive et directement liée au taux d'incinération : plus celui-ci sera élevé, plus le gain sera important. La gestion, par transmutation, des déchets nucléaires est donc radicalement différente d'un cas à l'autre.

Certains problèmes techniques sont associés à ces incinérations. Rappelons à ce titre l'évolution temporelle de la puissance dissipée lors d'une incinération en spectre thermique.

Enfin, envisager la centralisation des déchets dans quelques unités spécifiques, des réacteurs hybrides par exemple, nous a conduit à étudier l'évolution du taux d'incinération et du bilan neutronique. Les constatations sont encore très différentes d'un spectre à l'autre.

En spectre rapide, tous les scénarios permettent des taux d'incinération supérieurs à 70%, soit une réduction de l'inventaire radiotoxique d'un facteur 5 à 10 par rapport au cycle ouvert. Notons que le taux d'incinération maximal évolue en fonction du scénario :

Scénario	ouvert	MOX 1	MOX 2	multirecyclage MOX
B_{max}	71%	69%	71%	78%

La puissance thermique dissipée diminue avec la durée d'irradiation, mais sa baisse reste mesurée. Le seul problème, à la fois technique et sociologique, est le temps nécessaire pour atteindre

les taux d'incinération adéquats. La durée des irradiations est de l'ordre de la dizaine d'années : entre 8 et 13 ans pour les différents scénarios. Il faut savoir si les gains attendus sont suffisants compte-tenu des problèmes que ces irradiations prolongées entraînent : tenue des matériaux et inventaire important d'actinides.

En spectre thermique, les produits de fission dominent la consommation de neutrons. Les actinides ne disposent pas d'une réserve suffisante de neutrons pour les irradiations courtes, encore moins pour les autres schémas privilégiés. Poursuivre l'étude du spectre thermique nécessite donc la prise en compte des différents modes de chargement d'un réacteur : du remplacement par tiers dans les REP au chargement continu dans les CANDU. Ceci doit fournir un supplément de neutrons qui pourrait permettre d'envisager certains schémas d'incinération.

4.3 Chargement continu

L'étude de l'incinération des déchets sous forme de combustible solide présentée plus haut met en évidence le comportement des pastilles placées dans un flux neutronique. Nous avons ainsi pu caractériser l'évolution du mélange, la durée d'irradiation nécessaire en vue d'une réduction de l'inventaire radiotoxique et la distribution temporelle de puissance. Elle nous a permis de dégager certains schémas d'incinération. En spectre thermique, le bilan neutronique est insuffisant. Il convient d'assurer une alimentation en combustible neuf afin de compenser les captures par les produits de fission des pastilles à fort taux d'incinération. En spectre rapide, les gains dus à l'incinération seule sont au plus un facteur 5. Une réduction supplémentaire passe par des irradiations prolongées et des taux d'incinération plus élevés. La contrainte neutronique impose alors d'effectuer des chargements au même titre que pour le spectre thermique.

Nous pouvons envisager plusieurs schémas de chargement pour atteindre des taux d'incinération élevés. Le premier, que nous nous contenterons d'évoquer, consiste à charger le cœur par tranches comme pour les REP. Le combustible "neuf", dont le bilan neutronique est meilleur, fournit des neutrons au combustible déjà irradié et permet de poursuivre l'incinération. Il faut alors optimiser la durée du cycle pour maximiser le taux d'incinération.

La deuxième possibilité consiste à effectuer un chargement en continu tel qu'il est pratiqué dans les CANDU [85]. Le combustible circule à travers le cœur et des pastilles neuves et des pastilles irradiées sont présentes simultanément, le calcul étant que l'apport neutronique des premières compensera les captures par les produits de fission dans les dernières. L'évolution de la puissance des pastilles et la vitesse d'incinération sont inchangées par rapport à l'étude ci-dessus, mais la possibilité d'homogénéiser spatialement lors du chargement peut permettre d'amoinrir les effets de la variation de puissance. Un combustible sous forme de billes, comme celui envisagé pour la version allemande du HTR (High Temperature Reactor) [6], pourrait remplir les mêmes fonctions pourvu qu'un tri approprié de ces dernières soit faisable.

Afin d'approfondir ce dernier schéma, nous avons besoin d'une évaluation du bilan neutronique. Nous disposons pour cela de la formule sur les moyennes de consommation de neutrons :

$$D_{avec\ alimentation}(t) = \frac{\int_0^t D_{sans\ alimentation}(u) \mathcal{P}_{th}(u) du}{\int_0^t \mathcal{P}_{th}(u) du}$$

dans laquelle $D_{sans\ alimentation}(t)$ correspond à l'évolution du bilan neutronique d'une pastille (cf. figures 4.15, 4.16 et 4.17), $D_{avec\ alimentation}(t)$ donne la consommation de neutrons de l'ensemble "actinides et produits de fission" présents en cœur dans le cas d'un chargement continu.

Scénario	B	\mathcal{P} (GW_{th})	D	$\bar{\nu}$	G	k_{eff}	I (mA)
ouvert	71 %	23,9	-0,26	2,9	0,04	0,99	159
MOX1	61 %	14,6	-0,03	2,92	0,27	0,92	657
MOX2	57 %	10,7	0,09	2,93	0,39	0,88	695

TAB. 4.2: Caractéristiques des parcs d'incinérateurs en spectre thermique permettant de réduire l'inventaire radiotoxique d'un facteur 5 par rapport au cycle ouvert, en consacrant 0,3 neutrons par fission aux captures parasites et aux fuites, avec $\phi^* = 1$ et $\nu_s = 30$. L'intensité indiquée vaut pour l'ensemble du parc. L'alimentation continue permet d'envisager l'incinération, suivant le premier schéma privilégié, des déchets des scénarios cycle ouvert, MOX1 et MOX2. Etant donné le niveau de sous-criticité, le cycle ouvert offre aussi la possibilité d'une éventuelle transmutation des PFVL. En effet, prolonger l'irradiation vers des taux d'incinération plus élevés n'apporte aucune réduction supplémentaire de l'inventaire radiotoxique. Le parc dépendra alors de l'arbitrage entre la masse de PFVL détruits et les contraintes de sûreté et d'intensité. Limiter le nombre d'unités à 10 et l'intensité à 100 mA par accélérateur permet d'avoir une idée du parc d'hybrides.

L'idée est de profiter du couplage entre la forte puissance thermique et le bon bilan neutronique au début de l'irradiation pour compenser les captures en fin d'irradiation dues aux produits de fission et aux isotopes fertiles alors que la puissance thermique a fortement diminué.

Nous allons détailler, pour les deux spectres et pour chaque scénario, les conséquences de ce chargement continu sur le bilan neutronique et le taux d'incinération maximal afin de déterminer la réduction possible de l'inventaire radiotoxique.

4.3.1 Spectre thermique

Dans le cas des déchets issus du cycle ouvert, la figure 4.18 montre la consommation de neutrons avec et sans chargement pour une incinération en spectre thermique.

La consommation de neutrons est plus favorable dans le cas d'un chargement continu, quel que soit le taux d'incinération retenu : le plutonium produit un grand nombre de neutrons qui compensent les captures par les produits de fission dans les pastilles fortement irradiées. Le bilan neutronique est acceptable jusqu'à des taux d'incinération de l'ordre de 75% pour lesquels $D = -0,14$. De plus, le "pic" de consommation de neutrons disparaît au profit d'une dégradation plus lente du bilan neutronique.

Le premier schéma privilégié indiqué pour l'incinération des déchets du cycle ouvert, l'irradiation courte, devient viable du point de vue neutronique avec un chargement en continu et permet d'envisager une réduction de l'inventaire radiotoxique d'un facteur 5 au moins. Les deux autres schémas, correspondants à des taux d'incinération supérieurs à 90 % ne sont, par contre, pas réalistes.

L'étude des scénarios MOX 1 et MOX 2 conduit à des conclusions similaires (cf. figure 4.18) : le chargement continu permet d'envisager un cœur sous-critique composé uniquement de déchets nucléaires sous forme de combustible solide irradié pendant environ 200 jours, les schémas d'irradiation plus longs étant toujours exclus.

Il nous faut maintenant revenir sur une de nos hypothèses importantes : la section efficace moyenne des produits de fission. Nous avons estimé cette section efficace à 6 barns dans le cas

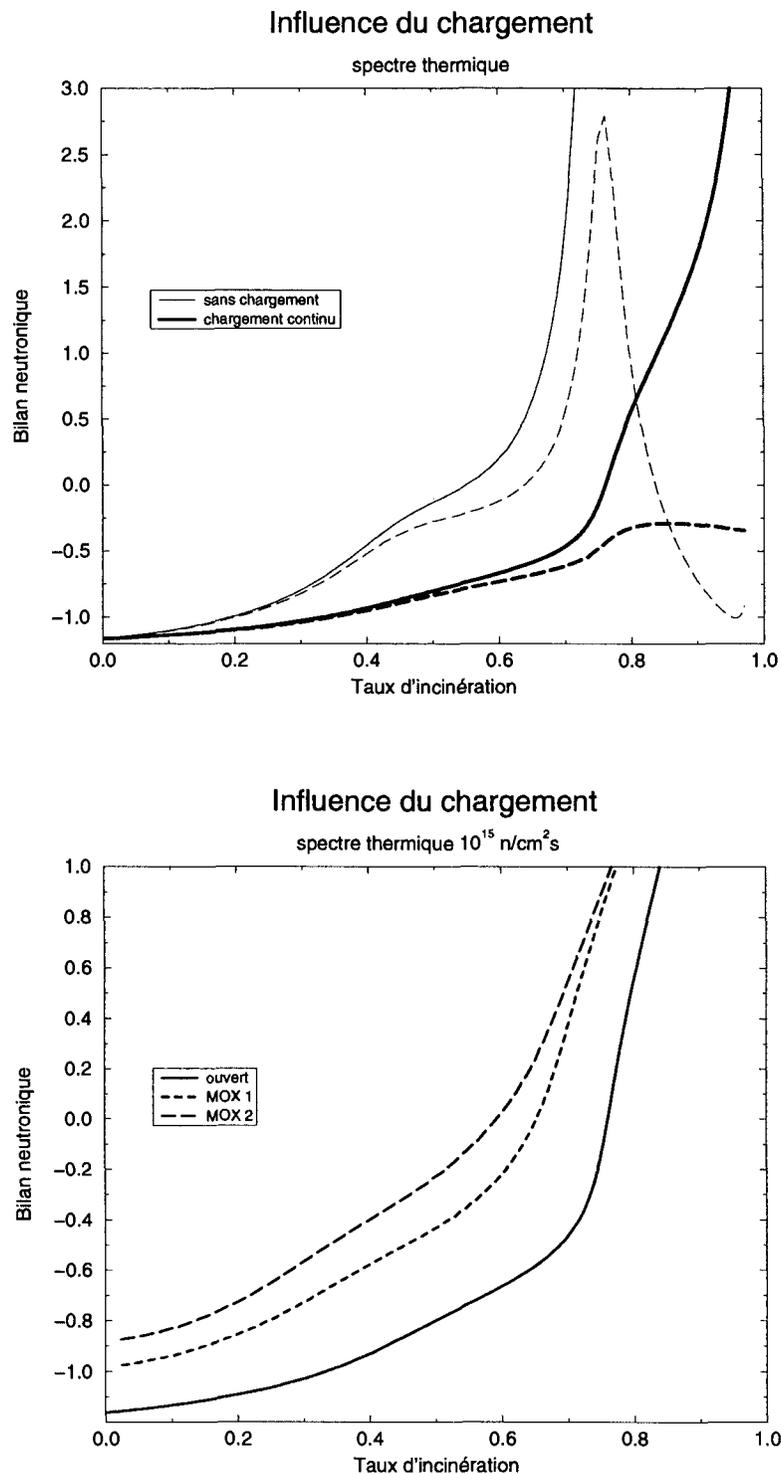


FIG. 4.18: L'apport continu de combustible neuf permet d'améliorer nettement le bilan neutronique du mélange, principalement grâce à la forte production de neutrons par le plutonium et grâce à la distribution de puissance très piquée au début de l'irradiation. Un tel schéma d'irradiation permet d'envisager des taux d'incinération supérieurs à 70%, dans le cadre du premier schéma d'irradiation développé ci-dessus : une incinération de 200 jours sous un flux de $10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$.

d'un spectre thermique. La figure 3.14 donne sa variation en fonction de la durée d'incinération. Bien que ce calcul repose sur l'incinération de ^{239}Pu uniquement, il semble clair que l'hypothèse de 6 barns n'est pas valable pour les irradiations de 200 jours. En considérant un chargement continu de "pastilles" dans le cœur, nous pouvons établir, comme pour les actinides, une section efficace globale, obtenue en moyennant sur toutes les pastilles. Cette section efficace varie avec le temps d'irradiation, au même titre que la section efficace moyenne, et nous trouvons :

Durée (jours)	$\langle \sigma_{PF} \rangle$ (barns)
100	17,3
200	13,3
300	11,0
400	8,7
1000	5,8

Puisque l'isotope principal des scénarios cycle ouvert, MOX1 et MOX2 est le ^{239}Pu , nous retenons une nouvelle valeur de 12 barns pour la section efficace globale des produits de fission. En utilisant la méthode explicitée section 3.2.2.1 page 97, nous pouvons réévaluer la contribution des PF à la consommation de neutrons par fission.

Cette étude du premier schéma d'incinération nous conduit à trois possibilités pour un parc de réacteurs hybrides dont les caractéristiques sont données tableau 4.2 pour un flux de 10^{15} n/cm²s. Les déchets du cycle ouvert, pour 200 jours d'irradiation, disposent d'un bilan neutronique, produits de fission compris, de l'ordre de $-0,3$. En consacrant, comme pour les réacteurs industriels [52, 73, 76], 0,3 neutrons par fission aux captures parasites et aux fuites, le bilan neutronique s'établit à $+0,04$, soit un coefficient de multiplication de 0,99. L'intensité globale du parc d'hybrides est alors de 160 mA, soit un parc de 10 unités, chacune alimentée par un accélérateur de 16 mA et produisant $2,4$ GW_{th} . Une sous-criticité plus importante passe nécessairement par un accélérateur plus puissant et, soit des inefficacités (réacteurs non-optimisés), soit l'incinération de produits de fission à vie longue, puisque un taux d'incinération plus élevé est sans intérêt (cf. figure 4.4).

Les deux autres scénarios ne présentent pas la même ressource en neutrons, conduisant à des intensités plus élevées. Pour fixer les idées, soit 100 mA l'intensité de chaque accélérateur, nous aurions pour le scénarios MOX1, avec un flux de 10^{15} n/cm²s, 7 réacteurs hybrides de $2,1$ GW_{th} ayant une sous-criticité de $k_{eff} = 0,92$ alimentés chacun par un courant de 94 mA. Réduire l'intensité impose un plus grand nombre d'installations de moindre puissance (ex : 10 unités de $1,5$ GW_{th} avec 66 mA). Pour le scénario MOX2 nous aurions 7 centrales de $1,5$ GW_{th} avec $k_{eff} = 0,88$ et une intensité de 100 mA. Tous les parcs ainsi constitués permettent de réduire l'inventaire radiotoxique d'un facteur 5 au moins par rapport au cycle ouvert, sans pouvoir espérer d'avantage à cause du phénomène de saturation.

Notons que le bilan neutronique peut être amélioré par rapport aux valeurs citées ici en augmentant le flux, ce qui présente aussi l'avantage de réduire la durée d'irradiation et donc la masse d'actinides présents à un instant donné dans le cœur. Une masse moindre peut améliorer les conditions de thermalisation en diminuant la concentration d'actinides. L'impact sur l'inventaire radiotoxique résiduel sera, par contre, faible.

La destruction des déchets issus du multirecyclage MOX avec un chargement en continu, quant à elle, ne permet pas d'espérer la réalisation du premier des schémas d'irradiation : le bilan neutronique n'est jamais inférieur à 1 (cf. figure 4.19).

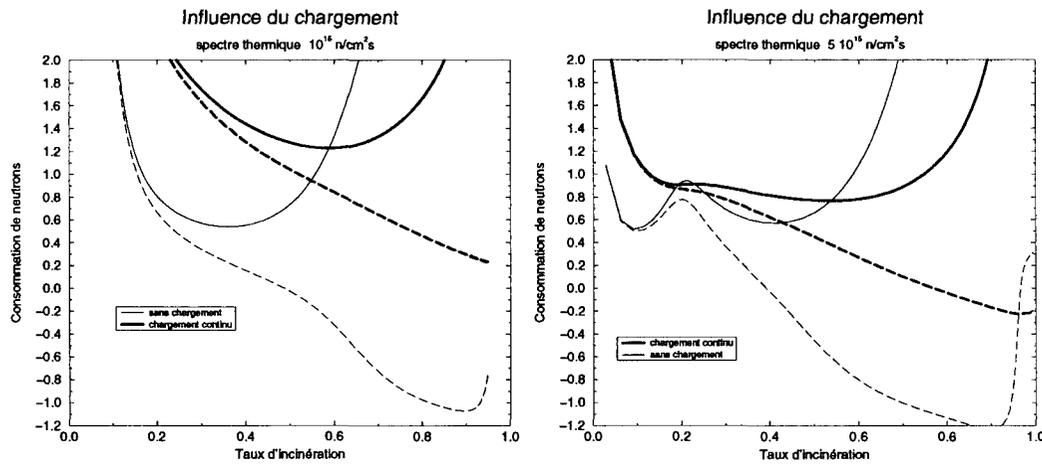


FIG. 4.19: *Le bilan neutronique lors de l'incinération en spectre thermique des déchets issus du multirecyclage MOX ne permet pas d'envisager un cœur contenant uniquement les transuraniens. Les alternatives que sont un flux plus élevé ou une température de fonctionnement plus faible n'assure pas une économie de neutrons adéquate, si ce n'est au prix d'une très importante sous-criticité.*

Trois alternatives se présentent pour surmonter cette difficulté :

- augmenter le flux neutronique afin de tirer profit de la section efficace de fission élevée de l' ^{242}gAm qui est inutilisée à cause de la courte durée de vie de cet isotope (16 heures) ;
- choisir une température de fonctionnement plus faible (ce qui est possible puisque le système n'a pas pour objectif de produire de l'énergie) afin d'augmenter les sections efficaces⁶ et profiter ainsi de la section efficace de fission ;
- effectuer un ou plusieurs retraits en cours d'irradiation, mais cela semble délicat pour des incinérations de 200 jours et, dans la mesure où ces retraits doivent se succéder rapidement, il vaudrait mieux envisager une boucle fermée et un combustible liquide (cf. chapitre 6).

En présentant les bilans neutroniques à $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$, la figure 4.19 répond aux deux premières options. Il faudrait envisager des flux bien plus élevés ou des températures proches de 20°C pour avoir une consommation de neutrons acceptable. Le bilan neutronique est minimal pour un taux d'incinération de 53 % ($D = 0,77$) et la sous-criticité est de 0,75, à la limite de l'auto-suffisance énergétique, posant des problèmes de distribution spatiale de puissance comme nous le verrons par la suite en exploitant le modèle de cœur. Notons que l'impact de la section efficace de fission de l' ^{242}gAm est clairement visible même si sa contribution n'est pas suffisante (cf. figure 4.19).

4.3.2 Spectre rapide

Bien que le bilan neutronique soit déjà très favorable lors de l'irradiation de pastilles de déchets en spectre rapide, l'alimentation en continu permet d'aller vers des taux d'incinération encore plus importants (cf. figure 4.3.2). On retrouve l'évolution particulière du bilan neutronique des déchets du multirecyclage. Pour des taux d'incinération faibles, le mélange est

6. Dans la partie thermique du spectre des neutrons, les sections efficaces varient comme l'inverse de la racine carrée de l'énergie cinétique des neutrons.

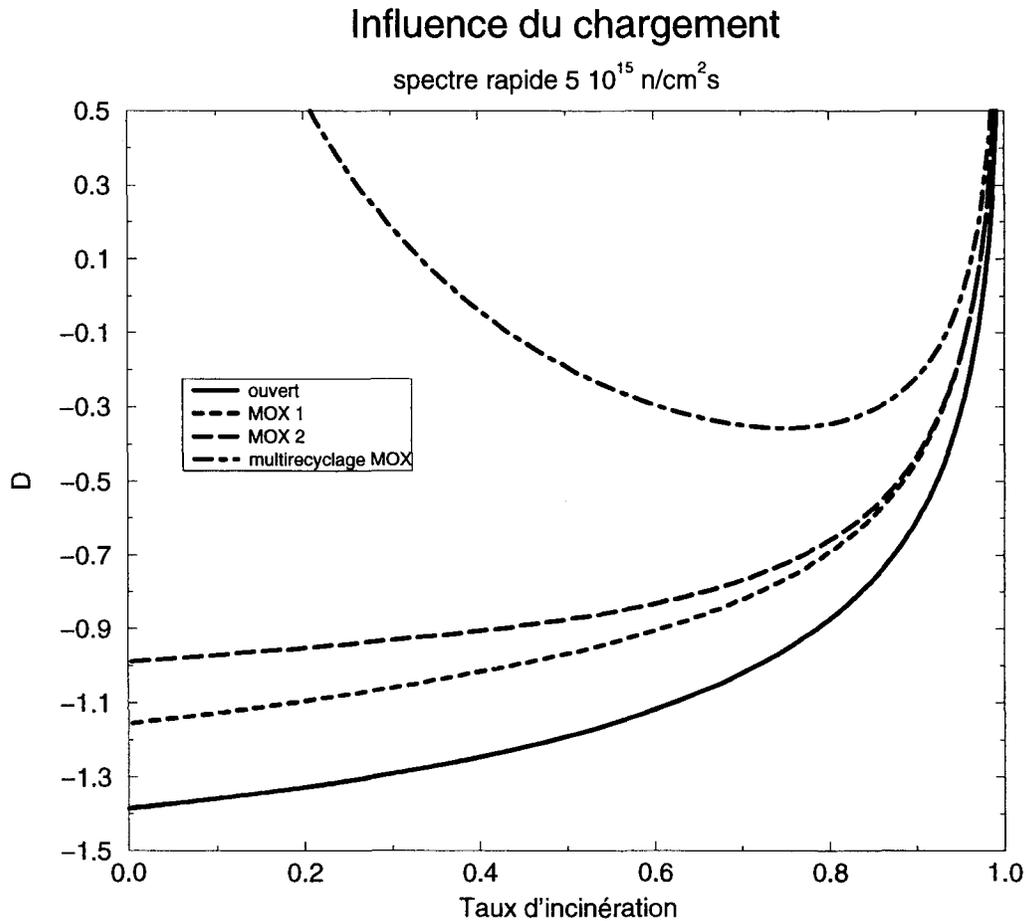


FIG. 4.20: Le bilan neutronique en spectre rapide est très favorable et permet d'envisager des taux d'incinération très élevés. Notons que ce bilan se dégrade avec le nombre de recyclages. Nous retrouvons le cas du multirecyclage MOX où le mélange ne sera adéquat que si le taux d'incinération est suffisant.

consommateur de neutrons car constitué principalement d'isotopes fertiles. Avec les captures successives, les isotopes fertiles s'accumulent et le bilan s'améliore malgré les produits de fission. Cet équilibre tourne au profit des produits de fission pour des taux d'incinération supérieurs à 75 %, alors que la composante purement actinides continue à décroître.

Par ailleurs, nous avons remarqué lors de l'étude de la réduction de la radiotoxicité qu'aucun schéma privilégié n'existait pour certains taux d'incinération : plus ce taux sera élevé, plus la réduction de l'inventaire radiotoxique sera importante. La limite théorique est donc fixée par le bilan neutronique. En consacrant 0,3 neutrons par fission aux captures parasites et aux fuites, et pour une sous-criticité de 0,95, le taux d'incinération optimal est déterminé de manière unique par $D = -0,15$. Les valeurs trouvées sont données tableau 4.3.

Les gains par rapport au cycle ouvert sont très importants, culminant à un facteur 50 pour le multirecyclage MOX. Mais il ne faut pas oublier que le multirecyclage dans les réacteurs de puissance contribue pour une partie à ce gain comme le montre la figure 2.14. Le gain apporté par l'incinération n'est en fait que d'un facteur 16. L'incinération du cycle ouvert demeure le schéma au plus haut rendement.

Scénario	B	gain	\mathcal{P} (GW_{th})	k_{eff}	I (mA)
ouvert	97 %	20	33	0,95	820
MOX1	95 %	25	23	0,95	570
MOX2	95 %	30	18	0,95	450
multi	92 %	50	9,7	0,95	240

TAB. 4.3: Taux d'incinération maximal en spectre rapide, en imposant $D = -0,15$, gain sur l'inventaire radiotoxique correspondant (par rapport au cycle ouvert) et caractéristiques des parcs de réacteurs hybrides assurant une réduction de l'inventaire radiotoxique comprise entre un facteur 20 pour le cycle ouvert et un facteur 50 pour le multirecyclage MOX. L'intensité est donnée pour l'ensemble du parc, quelque soit le nombre de réacteurs.

Les configurations de parcs que nous pouvons en déduire sont données tableau 4.3. En se limitant à 10 unités pour limiter les coûts d'infrastructures, nous avons des unités dont la puissance varient entre $3,3 GW_{th}$ et $970 MW_{th}$. La sous-criticité est de $k_{eff} = 0,95$ et l'intensité de l'accélérateur est comprise entre 82 et 24 mA.

Ces solutions assurent la réduction de l'inventaire radiotoxique d'un facteur au moins 20, mais il ne faut pas oublier que la durée d'incinération est de 30 ans. Ceci a des conséquences à la fois techniques (tenue des matériaux, gestion de la matière ...) mais aussi sociologiques (inventaire de déchets en cours d'irradiation, fiabilité ...).

4.4 Conclusion

L'analyse de l'incinération des déchets nucléaires avec un combustible solide peut s'articuler suivant deux points. Le premier concerne l'évolution de la composition isotopique et la réduction de l'inventaire radiotoxique. Le second est l'évaluation des besoins neutroniques pour la réalisation des schémas d'irradiation mis en évidence par le premier point. Nous allons en faire ici la synthèse.

Réduction de l'inventaire radiotoxique L'évolution de l'inventaire radiotoxique suit deux comportements distincts en spectre thermique et en spectre rapide. Pour le spectre thermique, l'incinération des déchets fait ressortir trois schémas privilégiés: (i) une irradiation de courte durée, 200 jours sous un flux de 10^{15} n/cm²s permettant de réduire la radiotoxicité d'au moins un facteur 5 dans le cas du cycle ouvert, d'un facteur moindre pour les autres scénarios; (ii) une incinération prolongée, de l'ordre de 3000 jours, correspondant à un ralentissement de l'efficacité de transmutation; et (iii) une irradiation longue permettant de rejoindre trois fois le niveau de l'uranium naturel initial en quelques centaines d'années. Ces schémas pourraient correspondre à des incinérations en réacteurs critiques si ce n'était les problèmes de sûreté liés à une proportion trop importante d'actinides mineurs dans le cœur ou une distribution de puissance très peu homogène dans le temps.

En spectre rapide au contraire, l'ensemble des évolutions est lent et progressif. Le gain sur la radiotoxicité est proportionnel au taux d'incinération et la puissance est mieux répartie qu'en spectre thermique. Mais le problème du spectre rapide réside justement dans sa lenteur: il faut des irradiations de plusieurs dizaines d'années pour avoir des taux d'incinération élevés et donc des gains importants.

Incinération en réacteurs hybrides Le deuxième point que nous évoquions concerne la réalisation de réacteurs sous-critiques dont le seul combustible serait les déchets. Ceci suppose que certaines contraintes soient vérifiées, dont le bilan neutronique. L'analyse de ce paramètre nous a montré qu'en spectre thermique, parmi les trois schémas privilégiés, seul le premier, l'irradiation courte, était envisageable pour les scénarios cycle ouvert, MOX1 et MOX2, et ce moyennant une alimentation continue. Les déchets du multirecyclage MOX ne peuvent être détruits avec un combustible solide.

Les irradiations dans ces schémas sont de 200 jours et la réduction de l'inventaire radio-toxique est d'un facteur 5. Les taux d'incinération sont inférieurs à 71% et décroissent avec le nombre de recyclages. Par contre, les problèmes de la puissance thermique et de l'alimentation continue demeurent, nous y reviendrons.

En spectre rapide, les incinérations sont plus efficaces puisqu'elles permettent des gains supérieurs à un facteur 20 si une alimentation continue est assurée. Les taux d'incinération sont voisins de 95%. Par contre, la durée d'incinération, pour un flux de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s, est de 30 ans ! D'où des problèmes techniques de tenue de matériaux à la fois sur la durée mais aussi pour de tels taux d'incinération. Finalement, cela suscite des interrogations quant à la gestion des déchets pendant ces 30 ans et le gain global durée d'irradiation – réduction de l'inventaire est à discuter.

Nous reviendrons au chapitre 6 sur les images de cœurs et l'étude des différents parcs de réacteurs hybrides. La méthodologie qui y sera développée s'applique aisément au cas d'un combustible solide sans recyclage. La seule difficulté est la connaissance de la composition isotopique des actinides, nécessaire pour estimer correctement la masse mais la section efficace totale d'absorption. Une démarche plus simple est explicitée dans l'annexe A.5.

Un réacteur spécifique Chacun des schémas explorés lors de cette analyse nécessite une alimentation continue. Plusieurs configurations existantes sont à notre disposition dont les CANDU et les HTR. Parmi ces derniers, nous pouvons évoquer la conception allemande dont les avantages pour le propos sont liés à la conception du combustible (le caloporteur est gazeux). Celui-ci se présente sous la forme de boulets de 6 cm de diamètre contenant 20 000 billes de 1 mm de diamètre (cf. section 1.1). Ce combustible permet une alimentation continue essentielle ici. Ceci permet aussi le prélèvement d'une partie du combustible du cœur. Il reste à trouver une méthode expérimentale pour distinguer les boulets fortement irradiés afin de les trier et les retirer du cœur, tout en réintroduisant les boulets insuffisamment incinérés. Cette conception, qui assurerait la destruction des déchets nucléaires, s'apparente aux mécanismes de torréfaction du café et pourrait en prendre le nom.

Chapitre 5

Incinération sans recyclage : cas d'un combustible liquide

L'étude de l'incinération des déchets nucléaires en combustible solide nous a montré l'intérêt potentiel d'une alimentation continue permettant de prolonger les irradiations jusqu'à des taux d'incinération élevés et ainsi de réduire significativement l'inventaire radiotoxique. Les problèmes techniques liés à cette alimentation sont nombreux : fréquence de chargement élevée, gestion de la matière, gonflement des gaines ...

Certains auteurs ont proposé, suite aux expériences d'Oak Ridge, des réacteurs hybrides à sel fondu [31, 52, 61] : les actinides sont dilués dans une masse liquide facilitant la gestion du combustible nucléaire. Rappelons, à titre d'exemple, l'une des propositions de C. Bowman [61]. Les déchets issus de REP sont fluorés pour séparer l'uranium. Les actinides et produits de fission accumulés lors du passage en réacteur critique sont introduits dans un sel $NaF - ZrF_4$. L'extraction en continu d'une fraction du sel, produits de fission et actinides compris, maintient le système à l'équilibre.

Ces solutions en combustible liquide permettent de diluer les actinides, afin de profiter d'une thermalisation optimale des neutrons en spectre thermique et de diminuer les effets d'auto-protection des sections efficaces et de dépression du flux dans les "pastilles". Mais malgré ces avantages techniques et outre les problèmes liés au sel (pour lesquels nous disposons en partie de l'expérience acquise à Oak Ridge sur le Molten Salt Reactor Experiment), il convient de démontrer l'intérêt d'une telle approche en vue de l'objectif premier : la réduction du risque engendré par les déchets, risque quantifié pour cette étude par l'inventaire radiotoxique.

Comme pour l'analyse du combustible solide, nous allons reprendre les différents aspects tels que le temps moyen d'incinération, la réduction effective de la radiotoxicité et le bilan neutronique, pour chaque scénario, afin de mieux cerner les avantages et inconvénients de l'homogénéisation du combustible dans le cœur (cf. figure 5.1). Nous nous focaliserons ici sur l'étude d'un schéma sans recyclage, illustré par la figure 5.2.

5.1 Irradiation dans un sel fondu

Avant de commencer cette analyse, il nous faut revenir sur la dynamique du système. Jusqu'ici nous avons traité les cas de combustible solide (pour lesquels les équations de Bateman sans terme constant sont résolues) et le cas du régime d'équilibre (utile pour les calculs de bilan neutronique D). Ce dernier correspond à un recyclage continu des actinides dans le cœur,

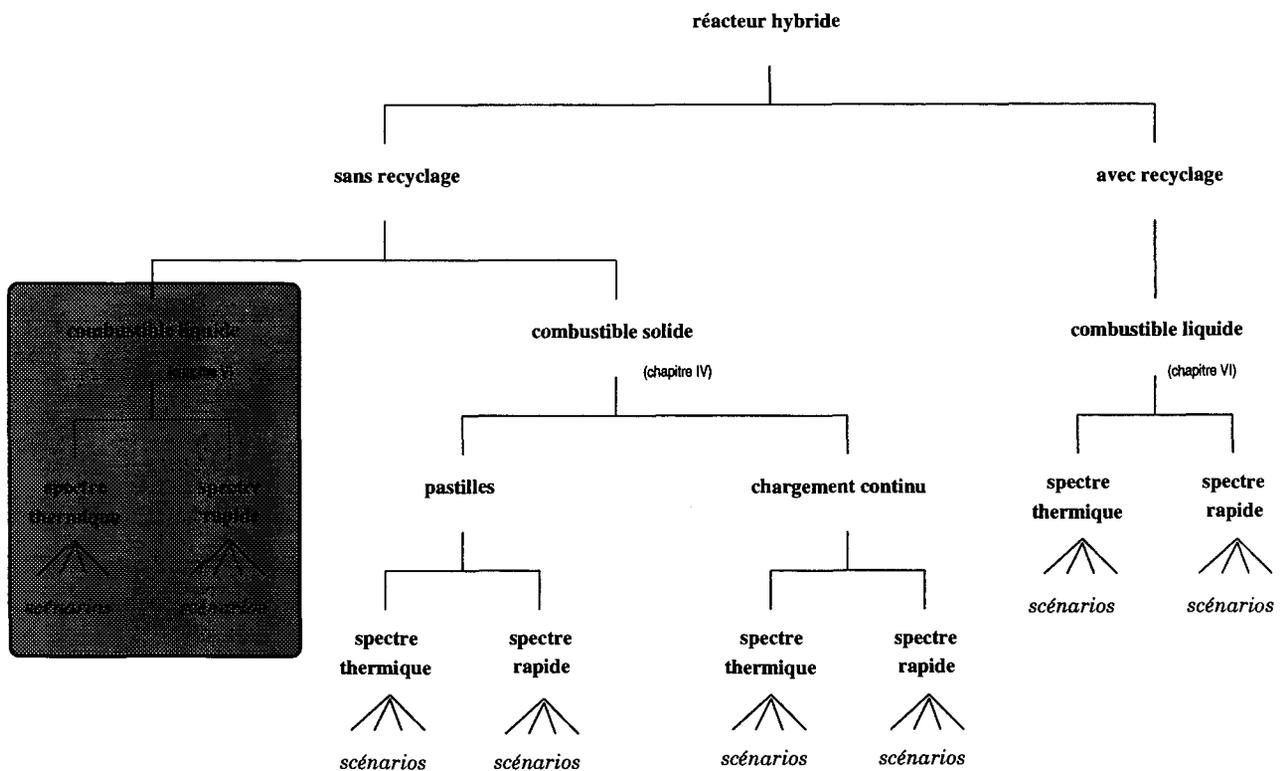


FIG. 5.1: *Domaine d'analyse du chapitre 5.*

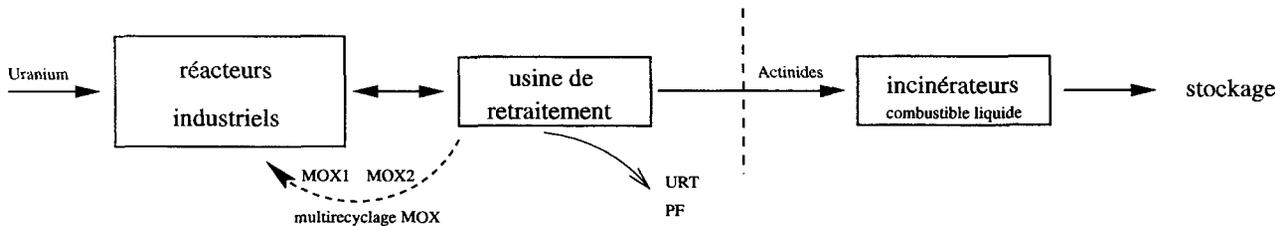


FIG. 5.2: *Flux de matières pour l'incinération sans recyclage d'un combustible liquide.*

comme nous l'avons vu au chapitre 3. Le cas d'une irradiation "once-through" avec un combustible liquide est intermédiaire : les actinides sont introduits en continu dans le réacteur et une fraction du mélange actinides-produits de fission en est extraite continuellement. Un nouveau régime d'équilibre s'établit caractérisé par le taux de prélèvement.

5.1.1 Définition du taux de prélèvement

La prise en compte de l'alimentation continue d'actinides dans le cœur se fait à l'aide d'un terme constant dans les équations de Bateman décrivant l'évolution des isotopes sous un flux neutronique donné. L'extraction continue peut être introduite de la même manière - un terme de retrait proportionnel au vecteur isotopique. L'équation d'évolution du vecteur isotopique s'écrit :

$$\left(\frac{dN_i}{dt}\right) = (A\phi + B) \cdot (N_i) + (S_i) - \lambda(N_i) \tag{5.1}$$

en utilisant les mêmes notations que page 70 et en notant λ la fraction du cœur prélevée par unité de temps (λ est en s^{-1}). Cette grandeur, le taux de prélèvement, est la même pour tous les isotopes présents dans le mélange du cœur, produits de fission compris, à cause de l'homogénéisation. En considérant un chargement à un taux maintenu constant, il s'établit un régime d'équilibre donné par :

$$\left(\frac{dN_i}{dt}\right) = 0 \quad (5.2)$$

et chacun de ces états d'équilibre est caractérisé par un taux de prélèvement λ et un flux ϕ :

$$(N_i(\phi, \lambda)) \quad (5.3)$$

En effet, le taux de prélèvement se traduit physiquement par un terme de décroissance, décroissances représentées par la matrice \mathbb{B} . L'arborescence décrite au chapitre 3 (cf. figure 3.1) est identique aux constantes de décroissance près : la chaîne de noyaux se développe et, pour les mêmes raisons, un régime d'équilibre apparaît.

De la même manière qu'il s'établit un régime d'équilibre pour les actinides, la teneur en produits de fission se stabilise avec le temps : initialement, la proportion de produits de fission est nulle et ceux-ci s'accumulent progressivement suite à la fission des actinides, mais ils sont aussi extraits continuellement au même titre que les actinides. Le taux de prélèvement agit ici encore comme une constante de décroissance des PF. Pour prendre ces noyaux en compte, il suffit de considérer un vecteur isotopique comprenant à la fois les actinides et les produits de fission, le formalisme restant le même. Nous les intégrerons par la suite dans tous nos raisonnements.

Le vecteur isotopique d'équilibre nous permet d'accéder à l'ensemble des grandeurs caractéristiques de l'irradiation, dont le bilan neutronique $D(\lambda)$ et la composition des déchets résiduels obtenus par l'extraction en ligne, responsables de l'inventaire radiotoxique final. Ces grandeurs seront *ipso facto* moyennées sur l'ensemble du cœur en raison du caractère liquide du combustible.

Par ailleurs, on ne peut définir ni un taux d'incinération, ni un temps d'irradiation unique. Les actinides introduits dans le réacteur à un instant donné ne restent pas tous pendant la même durée dans le flux neutronique. Certains de ces noyaux seront prélevés très rapidement et d'autres resteront "indéfiniment" dans le cœur. Il n'y a donc pas de taux de combustion unique pour tous les actinides. Nous disposons tout de même d'un temps de séjour caractéristique en cœur pour les actinides, donné par :

$$T = \frac{1}{\lambda} \quad (5.4)$$

En effet, si nous regardons un noyau introduit en cœur, sa chaîne isotopique va progressivement s'étendre. La loi d'évolution de la masse m des noyaux dans cette chaîne, produits de fission compris, s'écrit $\frac{dm}{dt} = -\lambda m$ (cf. expression 5.1) dans laquelle nous retrouvons le temps caractéristique T .

Nous pouvons aussi définir un taux d'incinération moyen \bar{B} comme le rapport de la masse des produits de fission présents dans le cœur sur la masse totale d'actinides et de PF une fois le régime d'équilibre atteint. Cette notion caractérise l'état du cœur et nous reviendrons sur son lien avec le taux de destruction des déchets, le burn-up.

Cet état stationnaire peut être déterminé en résolvant l'équation matricielle :

$$\{\mathbf{A}\phi + \mathbf{B} - \lambda\mathbf{I}\} \cdot (N_i) = -(S_i) \quad (5.5)$$

dans laquelle \mathbf{I} est la matrice identité, ou encore en intégrant numériquement les équations de Bateman pour déterminer à la fois le régime d'équilibre et la dynamique du système dans son évolution jusqu'à ce régime stationnaire (cf. page 70).

La composition à l'équilibre permet d'accéder aussi à la teneur en produits de fission, c'est-à-dire au niveau d'incinération. Notons deux valeurs particulières du bilan neutronique, celui qui prévaut pour un taux de prélèvement¹ tendant vers 1 et celui qui prévaut pour un taux de prélèvement nul (cf. tableau 5.1). Dans le premier cas, les actinides n'ont pas le temps d'évoluer, étant prélevés immédiatement après leur introduction en cœur et le bilan neutronique est le même que celui des actinides au temps $t = 0$ (voir page 70). Dans le second cas, le bilan neutronique des actinides correspond au cas d'équilibre avec alimentation continue et l'on retrouve les valeurs de bilans neutroniques usuelles (cf. expression 3.1), mais le bilan neutronique des actinides plus produits de fission, $D_{AM} + D_{PF}$, tend vers $+\infty$ car la proportion de produits de fission ne cesse de croître au sein du système, aucun n'étant prélevé.

Taux de prélèvement	Sans PF	Avec PF
$\lambda \rightarrow 1$	$D(t = 0)$	$D(t = 0)$
$\lambda \rightarrow 0$	$D(t \rightarrow +\infty)$	$+\infty$

TAB. 5.1: *Bilan neutronique pour des taux de prélèvement particuliers.*

La relation entre le taux d'incinération et le taux de prélèvement (ou le temps caractéristique de séjour dans le cœur) dépend du spectre, du flux et des déchets à détruire. Les figures 5.3 et 5.4 illustrent ces relations pour deux spectres, thermique et rapide, suivant les différents scénarios.

Les résultats concernant le spectre thermique conduisent à quatre constatations :

1. plus le taux de prélèvement est faible (le temps moyen en cœur augmente), plus les actinides restent en cœur, laissant le temps aux produits de fission de s'accumuler ;
2. les taux d'incinération, à temps de séjour comparables, décroissent avec les scénarios, de par la nature moins fissile des déchets ;
3. le phénomène de saturation des scénarios cycle ouvert, MOX1 et MOX2, a disparu ;
4. pour des temps d'irradiation équivalents², le taux d'incinération est plus faible pour un combustible liquide que pour un combustible solide.

En fait, nous retrouvons les mêmes caractéristiques d'évolution que pour le spectre rapide (cf. figure 4.12). D'une part, l'homogénéisation "dilue" l'effet du ^{244}Cm en augmentant sa teneur à taux d'incinération identiques, la transition se trouvant ainsi répartie sur une plage de temps plus importante. D'autre part, l'impossibilité de trier les pastilles ne peut conduire qu'à un résultat moins favorable. La possibilité d'étiqueter chaque pastille donne un avantage certain au combustible solide. Une partie du potentiel d'incinération est perdu lors de la ponction d'isotopes récemment introduits dans le cœur. Un taux d'incinération de 70% correspond à une

1. La notation $\lambda \rightarrow 1$ est un abus d'écriture et doit être comprise comme la limite à incinération nulle.

2. Nous entendons par là un temps caractéristique en cœur comparable au temps d'irradiation du combustible solide.

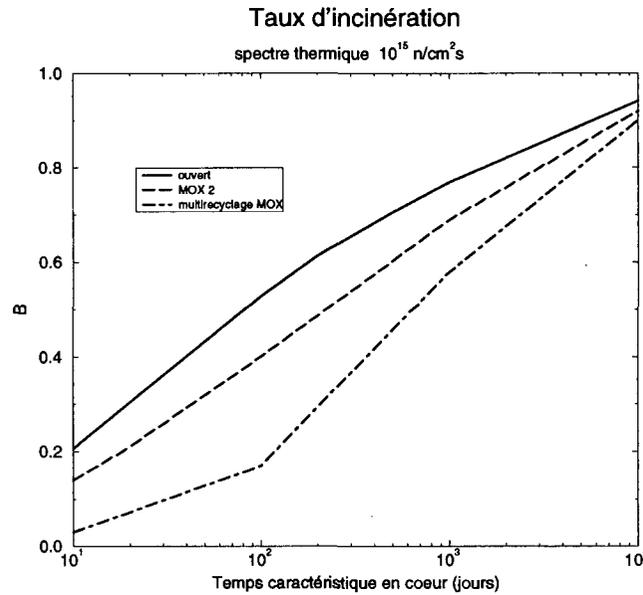


FIG. 5.3: *Tout phénomène de saturation observé avec un combustible solide (cf. figure 4.11) a disparu à cause de l’homogénéisation des actinides. Nous retrouvons un comportement “classique” d’irradiation. A noter que la combustion demeure plus lente dans le cas du multirecyclage MOX, comme pour le combustible solide.*

irradiation de 200 jours en combustible solide et un temps moyen en cœur de 500 jours, pour le scénario cycle ouvert sous un flux de 10^{15} n/cm²s.

Dans le cas du spectre rapide, la figure 5.4 montre le même comportement en combustible liquide ou solide, si ce n’est, comme pour le spectre thermique, une efficacité d’incinération moindre à temps d’irradiation égaux. A titre de comparaison, une irradiation de 10^4 jours conduit aux taux d’incinération $B = 96\%$ et $B = 80\%$ en combustible solide et liquide respectivement (pour un niveau de flux de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s).

La comparaison des deux spectres fait aussi ressortir une différence de comportement entre les scénarios. Alors qu’en spectre rapide nous avons un faisceau de courbes assez étroit, en spectre thermique de grands écarts apparaissent, essentiellement pour des taux d’incinération limités, semblables aux écarts observés avec un combustible solide (cf. figure 4.11), provenant de l’accumulation importante de ²⁴⁴Cm qui marque une “transition” dans l’ordre de grandeur des sections efficaces.

Par ailleurs, l’influence du niveau de flux se fait principalement par l’intermédiaire du produit $\phi_0 T$ comme le montre l’expression 5.5 dans la limite où les décroissances sont négligeables. Une hausse du niveau de flux ϕ'_0 entraîne une diminution de l’inventaire, nous y reviendrons, mais la relation entre le taux d’incinération et le temps caractéristique demeure pourvu que le temps soit contracté par un facteur ϕ'_0/ϕ_0 , à la fois le temps caractéristique et le temps d’évolution. Ainsi un taux d’incinération correspondra aux couples (ϕ_0, T) et $(\phi'_0, T \phi_0/\phi'_0)$

L’incinération des déchets nucléaires en combustible liquide avec une gestion “once-through” fait disparaître les phénomènes de saturation observés en combustible solide pour le spectre thermique. Nous examinerons plus loin l’effet de la composition isotopique, radicalement différente pour les deux cycles (liquide ou solide), sur l’inventaire radiotoxique. Par ailleurs, pour

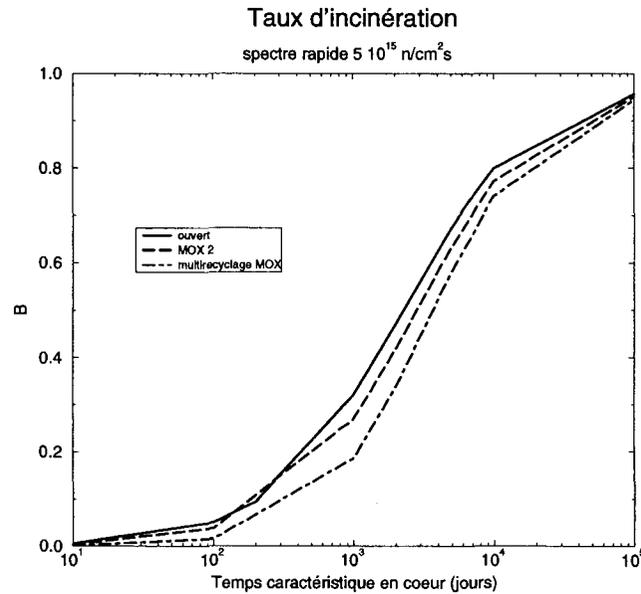


FIG. 5.4: De par l'homogénéité des sections efficaces, le combustible liquide ne change pas le comportement du mélange déjà mis en évidence figure 4.12. Remarquons que cette combustion est toutefois moins importante à durée d'irradiation comparable.

des temps d'incinération voisins, le combustible liquide est moins "performant" car les taux d'incinération sont moins importants.

5.1.2 Considérations générales

Avant de regarder l'impact du combustible liquide sur la réduction de l'inventaire radio-toxique, il nous faut éclaircir la notion utilisée ici de taux d'incinération. Elle correspond à un rapport de masse et n'indique pas *a priori* le niveau de destruction des déchets comme c'était le cas en combustible solide.

Afin de faire ce lien, nous pouvons faire quelques commentaires généraux sur la puissance thermique totale nécessaire pour les réacteurs hybrides et de la masse d'actinides prélevés et qu'il faut stocker.

Le taux d'incinération est le rapport de la masse des produits de fission en cœur à la masse totale, actinides et produits de fission. Par ailleurs, la notion de burn-up est relative au niveau d'incinération d'une pastille ou d'un ensemble de noyaux d'actinides. Nous voyons que dans ce schéma d'incinération en "once-through", tout comme il n'existe pas de temps de séjour unique en cœur mais une distribution, il n'existe pas de burn-up unique pour tous les noyaux alimentés dans le système mais seulement une valeur moyenne³. Les figures 5.5 et 5.6 donnent les variations de la masse d'actinides à stocker et de la puissance en fonction du taux d'incinération (défini comme le rapport des masses) pour les deux spectres et pour différents

3. En effet, certains ensembles de noyaux d'actinides resteront très peu de temps en cœur car ils seront prélevés immédiatement, d'où un burn-up faible pour ceux-ci ; d'autres resteront indéfiniment dans le cœur et auront un burn-up de 1. Il n'est pas possible de définir un burn-up unique pour tous les noyaux car il s'agit d'une distribution de probabilité. Par contre, celle-ci peut être caractérisée en partie par sa valeur moyenne, seul paramètre d'intérêt ici.

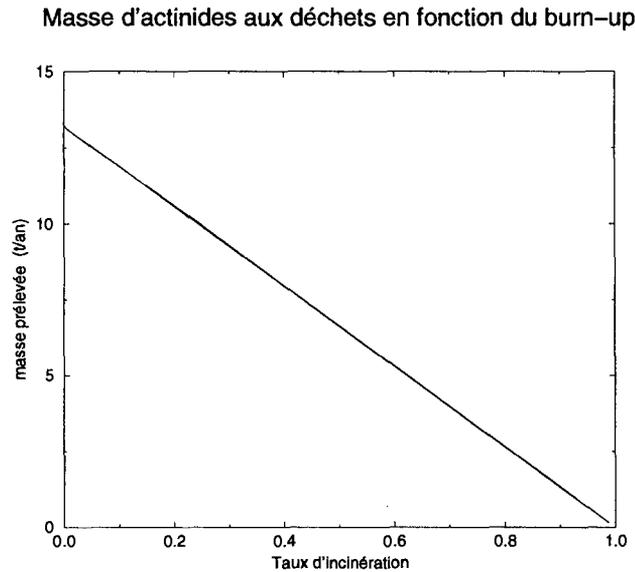


FIG. 5.5: La masse d'actinides aux déchets décroît linéairement avec le taux d'incinération même dans ce cas d'alimentation en continu avec un régime d'équilibre qui dépend du taux de prélèvement. Le cas présenté ici est celui du cycle ouvert pour lequel la masse d'actinides à détruire est de 12.8 tonnes. La proportion de produits de fission, le taux d'incinération, correspond au burn-up moyen des actinides dans le cœur.

flux⁴. Nous retrouvons les courbes attendues pour le taux de destruction des déchets. La masse des actinides extraits annuellement, et qu'il faut donc stocker, décroît linéairement avec le taux d'incinération suivant la relation :

$$M_{AM\text{extraits}} = M_{\text{alimentation}} \cdot (1 - B) \quad (5.6)$$

Ceci implique que la puissance totale dissipée par les cœurs est linéaire, comme le confirme la figure 5.12. On peut le mettre sous la forme :

$$\mathcal{P}_{\text{totale}} = \mathcal{P}_{\text{alimentation}} \cdot B \quad (5.7)$$

avec $\mathcal{P}_{\text{alimentation}}$ la puissance que dissiperait l'incinération totale des actinides, déchets du premier niveau de réacteurs.

Le taux d'incinération introduit ici comme le rapport entre la masse de PF et la masse totale (actinides et PF) dans le cœur est donc identique au taux de destruction de déchets, le burn-up utilisé en combustible solide. Maintenir un niveau donné de produits de fission dans le cœur est synonyme de détruire la même fraction d'actinides, et ce malgré le caractère homogène du combustible et l'existence d'une distribution du temps d'irradiation plutôt qu'une valeur unique. Par la suite, nous confondrons donc les deux notions.

4. Les différentes courbes sont indifférentiables, nous ne les avons donc pas indiquées par une légende spécifique.

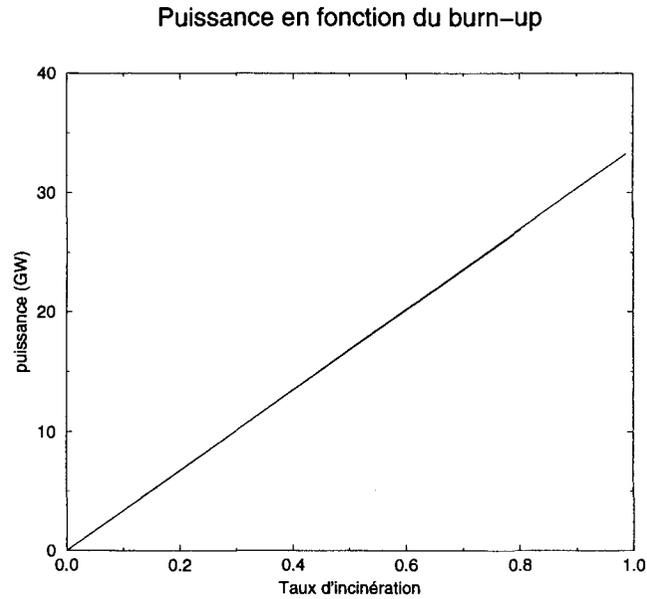


FIG. 5.6: Plus le taux d'incinération, c'est-à-dire la proportion de produits de fission dans le cœur, est important, ou encore plus le temps moyen de séjour en cœur est long, plus la puissance dissipée doit être élevée.

5.2 Réduction de l'inventaire radiotoxique

Comme pour l'étude du combustible solide, nous portons d'abord notre intérêt sur les gains susceptibles d'être réalisés lors de l'incinération du combustible liquide. Les présentations des inventaires radiotoxiques seront normalisées aux déchets du cycle ouvert et comprendront :

- la radiotoxicité des actinides et des produits de fission à vie longue extraits du cœur⁵ ;
- les produits de fission à vie longue produits par les réacteurs critiques de puissance.

5.2.1 Le cycle ouvert

5.2.1.1 Spectre thermique

Dans le cas du combustible solide, la modification de la composition isotopique du mélange au cours de l'incinération, a mis en évidence différents schémas d'irradiation permettant de tirer parti du découplage partiel entre les sections efficaces (pour la transmutation) et les constantes de décroissance (pour l'évolution de l'inventaire radiotoxique avec le temps), c'est-à-dire entre les taux de réaction et la radiotoxicité. C'est le cas de la transmutation de l'américium en curium dont l'accumulation représente un "jalon" physique. Cette flexibilité n'existe plus dans le cas d'un combustible liquide comme l'indique la relation entre le taux d'incinération et le temps caractéristique des actinides en cœur (cf. figure 5.3).

Pour une irradiation des déchets du cycle ouvert sous un spectre thermique de $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$, la réduction de la radiotoxicité augmente avec le taux d'incinération de manière quasi linéaire (cf. figure 5.7). Il n'y a ni saturation, ni transition. Nous observons les caractéristiques attendues

5. La masse d'actinides devant être stockés est donnée par $m_{Act} = \lambda \mathcal{M}_{Act}$ dans laquelle \mathcal{M}_{Act} est l'inventaire en actinides du cœur.

de l'accumulation de curium, à savoir l'oscillation entre 10^2 et 10^4 ans déjà mise en évidence. L'inventaire radiotoxique durant les dix premières années varie avec le taux d'incinération. Si ce dernier est faible, la production de ^{242}Cm n'est pas trop pénalisante. Au delà de 60%, ce dernier isotope contribue de manière importante à l'inventaire radiotoxique, avant que sa proportion dans le mélange ne décroisse au profit du ^{244}Cm et ^{246}Cm . Rappelons tout de même que la radiotoxicité est dominée par les PF pendant les 100 premières années.

Aucun schéma d'irradiation ne semble privilégié du point de vue de la réduction de l'inventaire radiotoxique. Notons que les gains réalisés ici sont plus faibles que ceux du combustible solide à taux d'incinération équivalent, ce qui se comprend à cause de la teneur importante en ^{242}Pu et ^{244}Cm à l'équilibre (cf. tableau 5.2).

Isotope	masse (t)	fraction massique
^{237}Np	0,2059	3,84
^{241}Am	0,014	0,26
^{243}Am	0,585	10,91
^{242}Cm	0,080	1,49
^{243}Cm	0,0021	0,04
^{244}Cm	0,947	17,67
^{245}Cm	0,0128	0,24
^{246}Cm	0,0527	0,98
^{238}Pu	0,1885	3,52
^{239}Pu	0,1702	3,18
^{240}Pu	0,6915	12,90
^{241}Pu	0,2053	3,83
^{242}Pu	2,203	41,10
Total	5,36	99,96 %

TAB. 5.2: *Isotopes principaux à l'équilibre lors de l'incinération des déchets du cycle ouvert sous un flux thermique de 10^{15} n/cm²s pour un taux de prélèvement $\lambda = 2 \cdot 10^{-3}$ jour⁻¹, soit une durée caractéristique en cœur de 500 jours et un taux d'incinération moyen de 71%.*

5.2.1.2 Spectre rapide

Nous retrouvons des résultats identiques à ceux de l'irradiation avec un combustible solide. Ceci provient toujours du caractère fissile des isotopes en spectre rapide qui limite l'extension de la chaîne isotopique. Le gain est proportionnel au taux d'incinération et aucun schéma n'est privilégié.

L'ensemble de l'inventaire radiotoxique est dominé par le plutonium (cf. figure 5.8), principalement le ^{240}Pu pour la période comprise entre 10^3 et 10^4 années. Au delà le pic qui ne s'estompe pas comme en combustible solide, est dû au ^{238}Pu (et à ses fils) dont la concentration demeure élevée à cause de l'alimentation continue. Mais ce pic, bien que significatif, reste en-dessous du niveau de l'uranium naturel initial du cycle ouvert.

5.2.2 Scénarios MOX1 et MOX2

L'incinération des déchets issus des scénarios MOX 1 et MOX 2 conduit à des résultats semblables à ceux du cycle ouvert. Aucun schéma d'irradiation privilégié n'existe. L'incinération

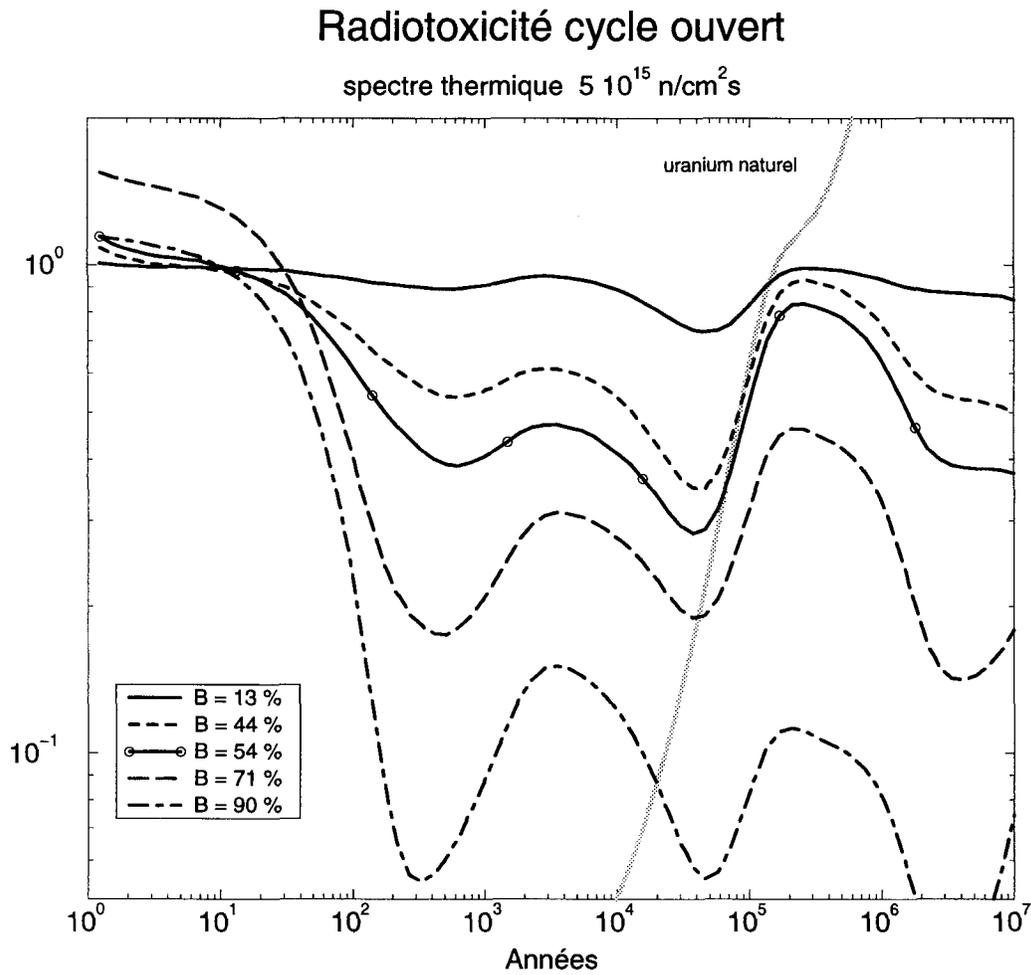


FIG. 5.7: Inventaire radiotoxique, normalisé à l'inventaire radiotoxique du cycle ouvert, après incinération sous un flux thermique de $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$ de ces mêmes déchets. Toute saturation du gain disparaît avec la "dilution" de l'effet ^{244}Cm à cause du combustible liquide. Nous retrouvons des inventaires radiotoxiques voisins des résultats en spectre rapide, voire meilleur ici pour des taux d'incinération identiques.

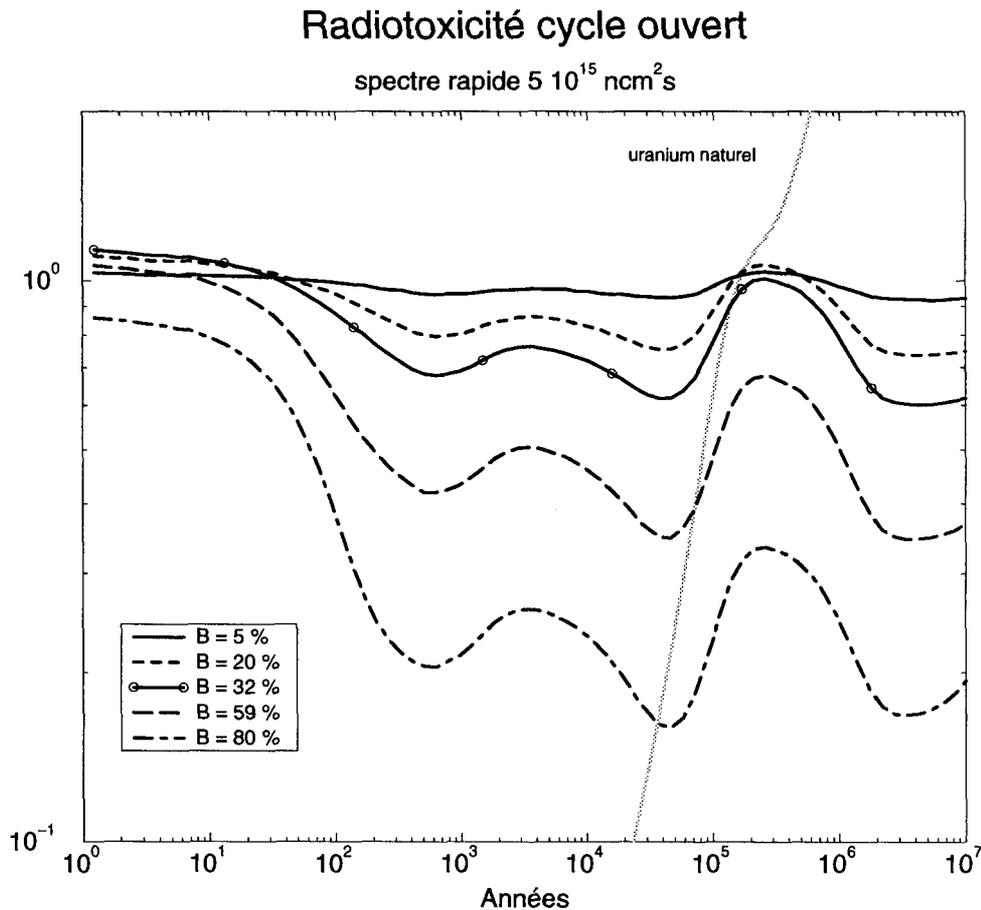


FIG. 5.8: *Inventaire radiotoxique après incinération sous un flux rapide de $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ des déchets issus du cycle ouvert, avec la même normalisation qu'en spectre thermique. Nous retrouvons les mêmes résultats que pour le combustible solide, les gains étant voisins, voire légèrement supérieurs, pour des taux d'incinération équivalents.*

consiste principalement à détruire les isotopes fertiles produits par transmutation du plutonium. Les gains seront donc proportionnels au taux d'incinération moyen.

Spectre thermique Toute transition ou saturation, visible dans le cas du combustible solide, a disparu (cf. figure 5.9). La comparaison entre les combustibles solide et liquide indique que les gains sont moindres en combustible liquide jusqu'à des taux d'incinération de 70%. En effet, le combustible solide a l'avantage de "basculer" rapidement la composition isotopique vers les isotopes lourds du curium conduisant par ce transfert sans réduction de masse à un gain, dû aux différences de durée de vie, qui ne peut donc pas être observé en combustible liquide. Au-delà de 70%, nous retrouvons un comportement analogue dans les deux configurations.

Spectre Rapide La seule modification notable est l'accentuation du pic dû au ^{238}Pu après 10^5 ans (pic qui demeure cependant sous le niveau de l'uranium naturel initial), la teneur en cet isotope étant maintenue grâce à l'alimentation (cf. figure 5.9). Finalement, l'inventaire radiotoxique est principalement dû au plutonium, sauf pour une contribution du curium pendant

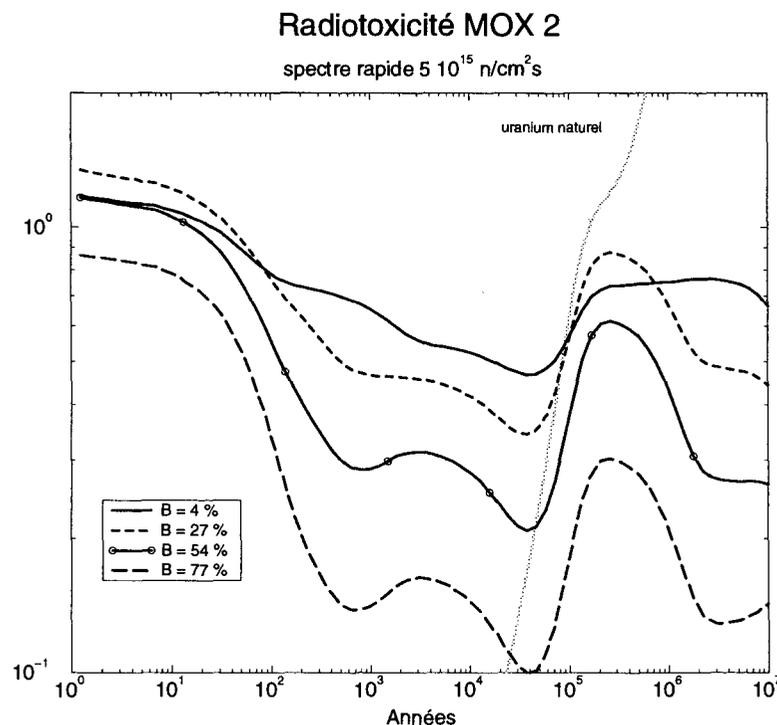
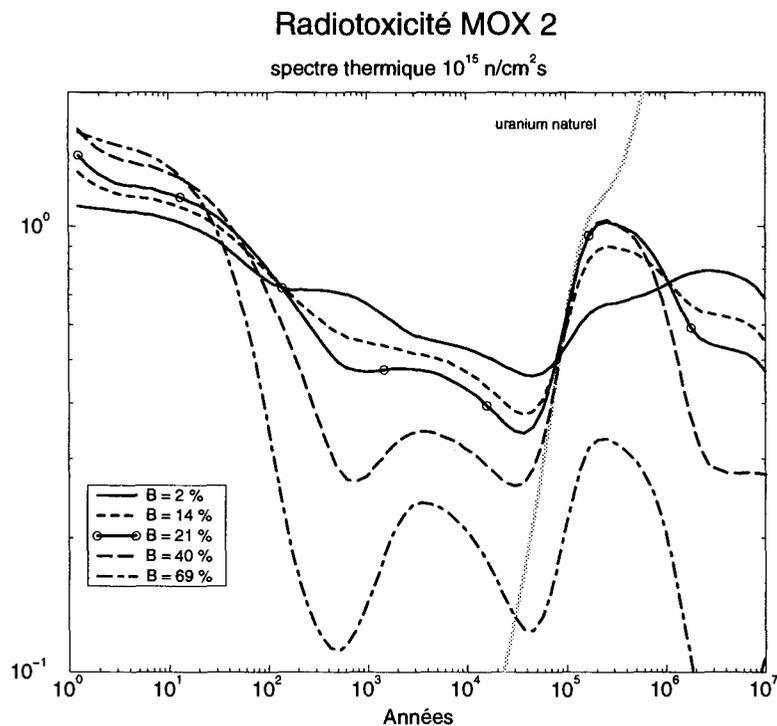


FIG. 5.9: Inventaire radiotoxique après incinération sous un flux thermique de $10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$ et un flux rapide de $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$ des déchets issus du scénario MOX 2. Les gains sont proportionnels au taux d'incinération.

les premières centaines d'années pour des taux d'incinération élevés ($B > 70\%$), sans oublier les produits de fission à courte durée de vie toujours prépondérants

5.2.3 Le multirecyclage MOX

5.2.3.1 Spectre thermique

Dans le cas de combustibles sans plutonium, scénario multirecyclage MOX, nous observons une saturation en deçà d'un taux d'incinération de 20% provenant de l'accumulation du ^{244}Cm et ce malgré la proportion moindre d' ^{243}Am (cf. figure 5.10). Les gains observés au-delà de 20% d'incinération sont en tous points similaires à ceux qui prévalent dans les autres scénarios. Les gains sont proportionnels au taux d'incinération car il s'agit de transmuter les isotopes fertiles du curium.

Il semblerait donc que ce scénario présente un schéma d'irradiation "naturel" correspondant à cette saturation. Malheureusement, les gains réalisés sont faibles. En effet, si l'on se réfère à la courbe 2.14 donnant l'inventaire radiotoxique des déchets du multirecyclage MOX avant irradiation, les gains obtenus par l'incinération prennent place après une période de stockage allant de $2 \cdot 10^2$ à $4 \cdot 10^3$ ans, et atteignent tout au plus un facteur 3 dans le cas d'un taux d'incinération de 17% (cf. figure 5.10). La contribution de cette irradiation est donc réduite.

5.2.3.2 Spectre rapide

Nous retrouvons le même comportement qu'en combustible solide, si ce n'est la "disparition" du pic entre 10^3 et 10^4 années (cf. figure 2.14). Ceci provient de la contribution de l' ^{243}Am (clairement visible sur la courbe $B = 2\%$) qui précède celle du ^{244}Cm et conduit au plateau observé (cf. figure 5.10).

Les gains sont comparables et pour avoir une réduction significative de l'inventaire radiotoxique grâce à cette irradiation, il faut des taux d'incinération de l'ordre de 70%, car le scénario de multirecyclage s'accompagne déjà d'une réduction d'un facteur ≈ 3 .

Les résultats de l'incinération des déchets nucléaires en combustible liquide tranche avec ceux du combustible solide, principalement pour le spectre thermique. Tout schéma privilégié a disparu et le seul effet de saturation, observé pour le multirecyclage MOX, correspond à des taux d'incinération relativement faibles et les gains espérés sont limités. En fait, nous observons un comportement analogue à celui du spectre rapide en combustible solide: la réduction de l'inventaire radiotoxique est proportionnelle au taux d'incinération.

5.3 Paramètres physiques

5.3.1 L'inventaire en cœur

La masse d'actinides et de produits de fission est un paramètre important pour le calcul des images de cœurs puisqu'elle conditionne la concentration et le nombre d'unités. Cette masse, approximativement inversement proportionnelle au flux, peut s'écrire par définition :

$$m_{Act+PF} = m_{Act} \cdot \frac{1}{1-B} \quad (5.8)$$

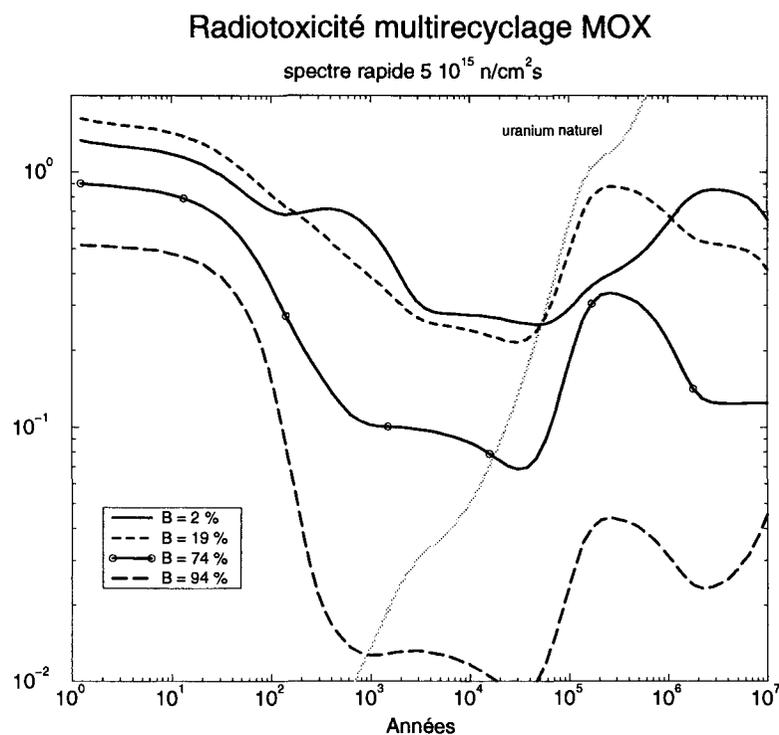
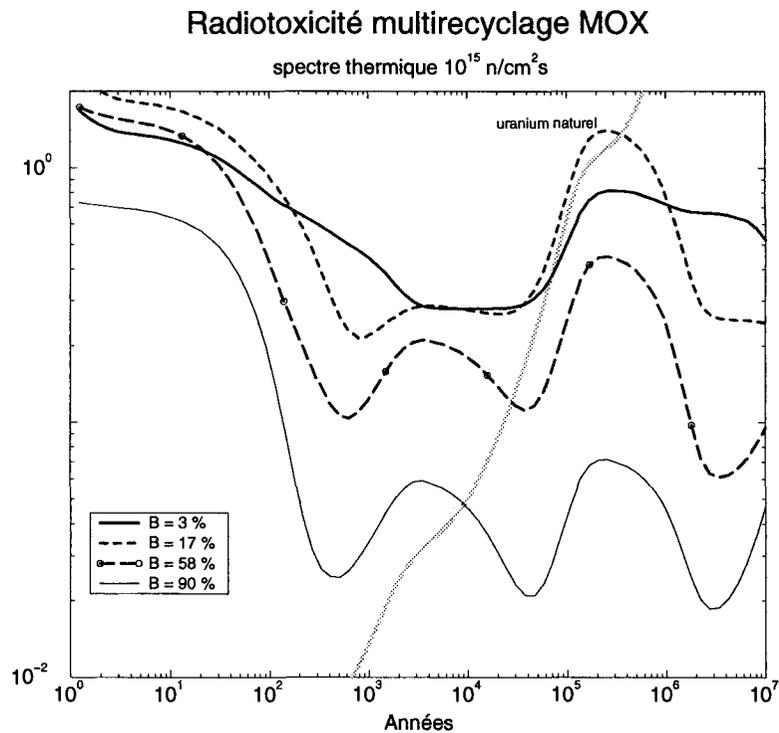


FIG. 5.10: Inventaire radiotoxique après incinération sous un flux thermique de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s des déchets issus du multirecyclage MOX. Nous observons une saturation en spectre thermique, mais les gains sont réduits car il faut les comparer à la réduction de l'inventaire radiotoxique déjà réalisé par le multirecyclage MOX. En spectre rapide, nous retrouvons toujours le même comportement "linéaire".

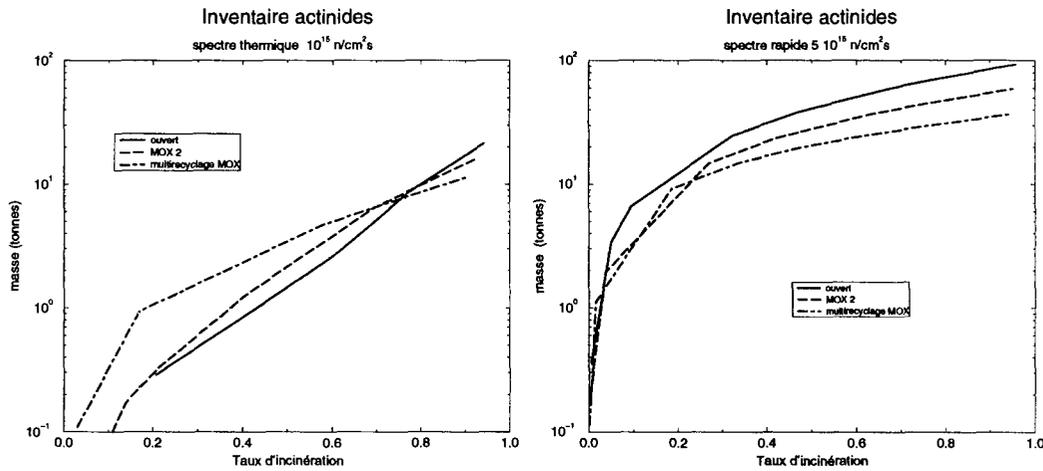


FIG. 5.11: Inventaire en actinides après incinération sous un flux thermique de 10^{15} n/cm^2s et un flux rapide de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm^2s . La masse croît avec le taux d'incinération car la chaîne isotopique à l'équilibre s'étend. La grande différence entre l'inventaire en thermique et en rapide est liée aux écarts de sections efficaces.

La figure 5.11 donne la variation de la masse d'actinides en fonction du taux d'incinération B .

La masse d'actinides croît avec le taux d'incinération. C'est la conséquence de la mise à l'équilibre de la chaîne isotopique à alimentation constante (cf. figure 3.1) : une combustion importante nécessite la présence de plus d'actinides donc d'une masse supplémentaire. Autre perspective : pour atteindre des taux d'incinération élevés, le taux de prélèvement (λ) doit être faible et le temps caractéristique en cœur (T) plus long. Les actinides sont donc plus longtemps en cœur permettant leur accumulation.

Par ailleurs, l'accroissement relatif de la masse est plus important en spectre thermique pour les scénarios de déchets à forte teneur en plutonium. L'explication est identique à la précédente : pour des taux d'incinération faibles, le combustible à base de plutonium brûle efficacement et la chaîne isotopique est réduite, l'impact des isotopes lourds du curium insignifiant (c'est la raison de l'écart important entre le cycle ouvert et le multirecyclage MOX constaté figure 5.3, qui n'apparaît pas en spectre rapide). Avec des taux d'incinération plus élevés, l'importance du curium devient prépondérante en raison de ses sections efficaces plus faibles. Ceci explique aussi la baisse du rapport des masses entre les deux spectres, m_{rap}/m_{th} , avec l'augmentation du taux d'incinération :

B	m_{rap}/m_{th}
20%	≈ 40
94%	≈ 4

Ces chiffres correspondent à un flux thermique de 10^{15} n/cm^2s et un flux rapide de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm^2s , lors de l'irradiation des déchets issus du cycle ouvert. Ceci nous permet aussi de comprendre l'évolution relative des masses pour les différents scénarios qui se croisent entre 70% et 80% d'incinération.

Notons finalement l'écart important d'inventaire entre le spectre thermique et le spectre rapide, conséquence des différences de sections efficaces moyennes. Ecarts qu'il convient de garder à l'esprit en vue du dimensionnement des installations.

5.3.2 Le bilan neutronique

Aucun schéma d'irradiation privilégié n'est apparu dans l'étude de la réduction de l'inventaire radiotoxique. Les gains de l'irradiation sont "proportionnels" au taux d'incinération. Les possibilités d'incinération seront donc déterminées par le potentiel neutronique et le taux d'incinération maximal qui en découle.

Les figures 5.12 et 5.13 donnent la variation de la consommation de neutrons suivant les scénarios cycle ouvert, MOX2 et multirecyclage, pour les spectres thermique et rapide respectivement.

L'allure générale des courbes en spectre thermique est identique au cas de chargement continu avec un combustible solide. Plus le taux d'incinération augmente, moins le bilan neutronique est favorable à cause de l'accumulation de produits de fission. Seule exception, le scénario de multirecyclage MOX pour lequel la consommation de neutrons s'améliore pour de faibles taux d'incinération avant de revenir à un comportement plus "classique". L'origine en est toujours le caractère peu fissile des déchets, progressivement transmutés pour augmenter la fraction d'isotopes impairs du curium dans le mélange.

Par ailleurs le bilan neutronique est toujours moins favorable en combustible liquide qu'en combustible solide et ce malgré l'amélioration de la consommation de neutrons d'une pastille pour des taux d'incinération élevés⁶ $B > 80\%$ (cf. figure 4.16). Ceci provient de l'accumulation de produits de fission. Dans le cas du combustible solide, la masse de PF correspondant à un taux d'incinération donné est proportionnelle à l'intégrale de la distribution temporelle du taux d'incinération⁷ (cf. figure 4.11). La teneur totale en PF dans le cœur à combustible solide se met sous la forme :

$$\langle B \rangle = \frac{\int_0^T B(t) dt}{T} \quad (5.9)$$

dans laquelle T est le temps d'irradiation de la plus vieille pastille, la pastille extraite, correspondant à un taux d'incinération B_{max} et $B(t)$ l'évolution du burn-up d'une pastille au cours de l'irradiation.

Par contre, en combustible liquide, le taux d'incinération comprend l'ensemble des PF du cœur et pas uniquement ceux de la pastille extraite. Ainsi, à taux d'incinération équivalent, le cœur en combustible liquide contient une quantité plus importante de produits de fission que le cœur en combustible solide, d'où la dégradation du bilan neutronique.

Cet effet est encore plus visible pour le spectre rapide. La limite $D = -0,15$ en combustible liquide correspond à des taux d'incinération inférieurs à 80%, au lieu de 95% en combustible solide. Le scénario de multirecyclage MOX est d'ailleurs limité à 60% d'incinération et ceci suppose une importante sous-criticité, $k_{eff} = 0,9$.

Remarquons que la teneur maximale en produits de fission en cœur est identique pour les deux types de combustibles (cf. formule 5.9). La différence d'efficacité de l'incinération tient à la possibilité de "trier", impossible en combustible liquide. La figure 5.14 illustre ce propos dans le cas des déchets du cycle ouvert irradiés en spectre rapide à $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s : si nous considérons une irradiation en combustible solide, la plus "vieille" pastille a un taux d'incinération B_{max} ,

6. On aurait pu penser que la mise à l'équilibre de la chaîne isotopique permettrait de tirer profit de l'amélioration significative de D au-delà de $B = 80\%$. Ce n'est malheureusement pas le cas.

7. En effet, la masse de produits de fission dans une pastille est proportionnelle au taux d'incinération et il faut additionner l'ensemble des pastilles présentes en cœur, ce qui revient à faire une intégrale sur le temps d'irradiation dans le cas d'un chargement continu.

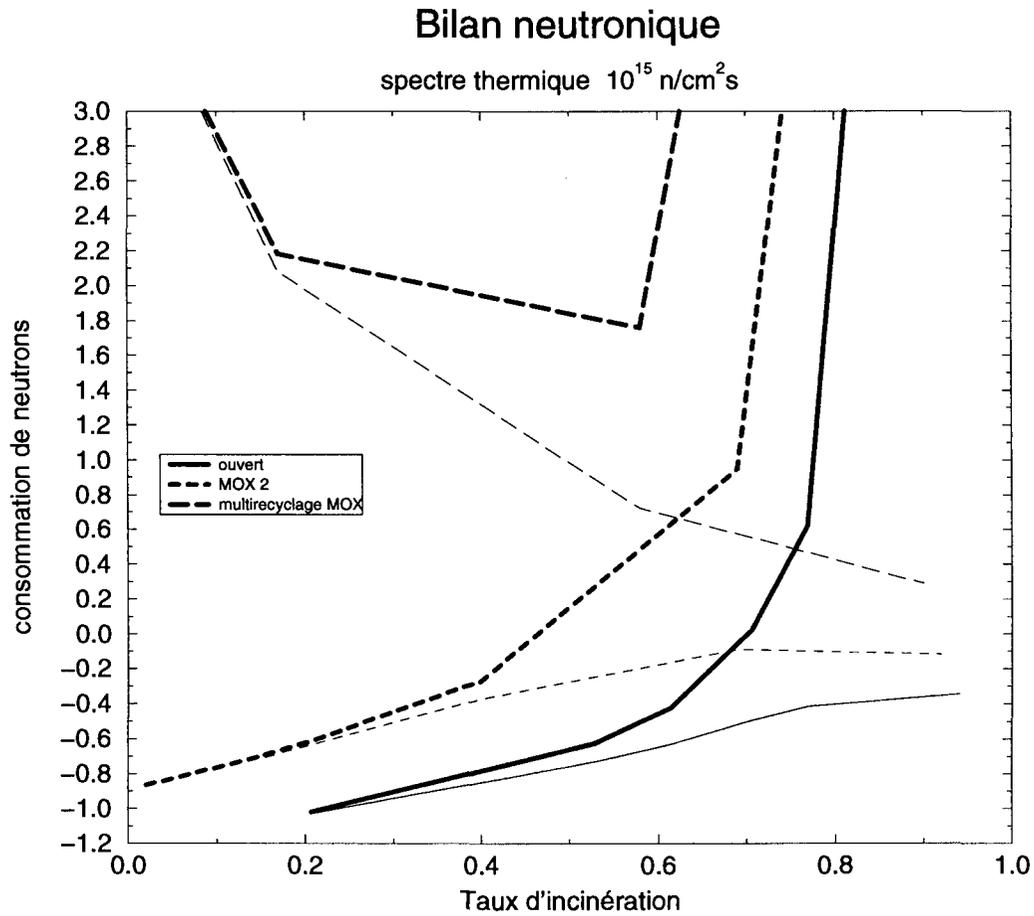


FIG. 5.12: Les consommations de neutrons avec et sans produits de fission. Le bilan neutronique est toujours aussi limité en spectre thermique. Les taux d'incinération maximum sont au plus de 70%. Ils sont inférieurs à ceux du combustible solide. Et le multirecyclage MOX reste irréaliste, quelque soit le burn-up.

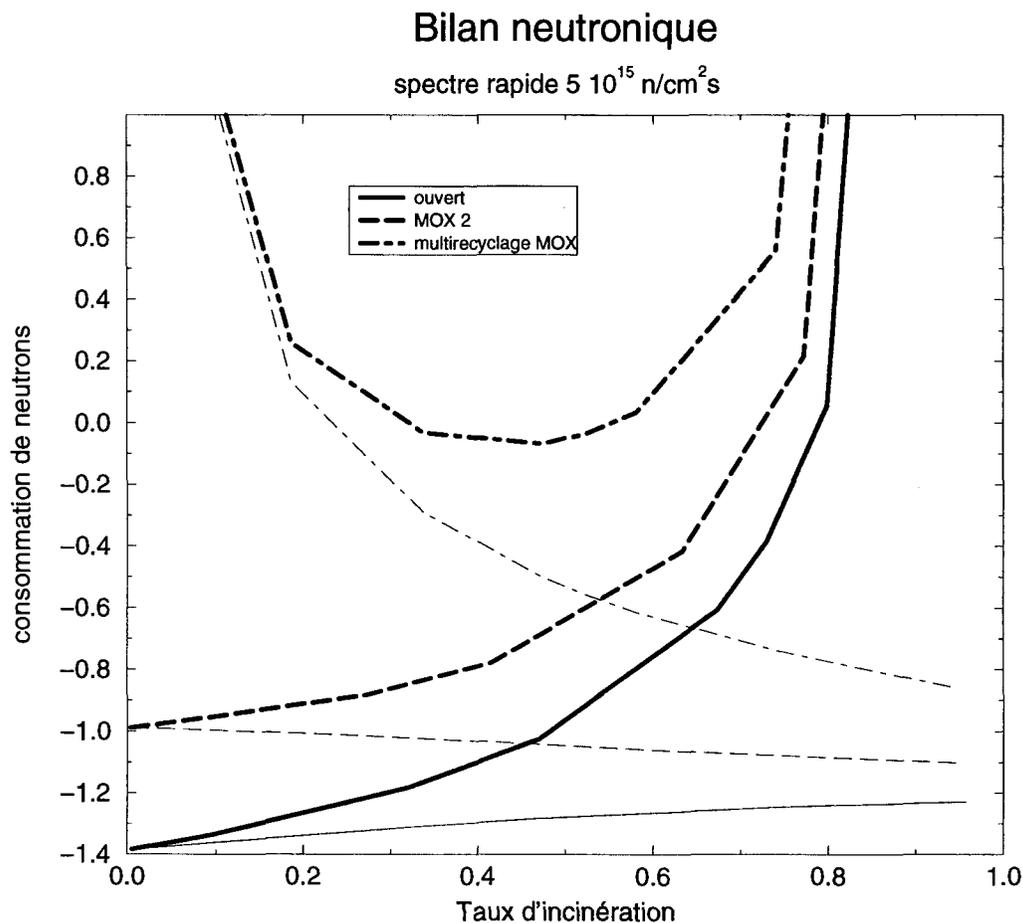


FIG. 5.13: Les consommations de neutrons avec et sans produits de fission en spectre rapide. La différence entre le combustible liquide et le combustible solide est frappante. Alors que le deuxième permettait des taux d'incinération supérieurs à 90% en alimentation continue, celui-ci est limité à 75% et ce burn-up maximal décroît avec le scénario, jusqu'à rendre le multirecyclage MOX irréaliste. Cette différence provient de la teneur en PF dans le cœur et de la possibilité de trier les pastilles en combustible solide, irréalisable en milieu liquide.

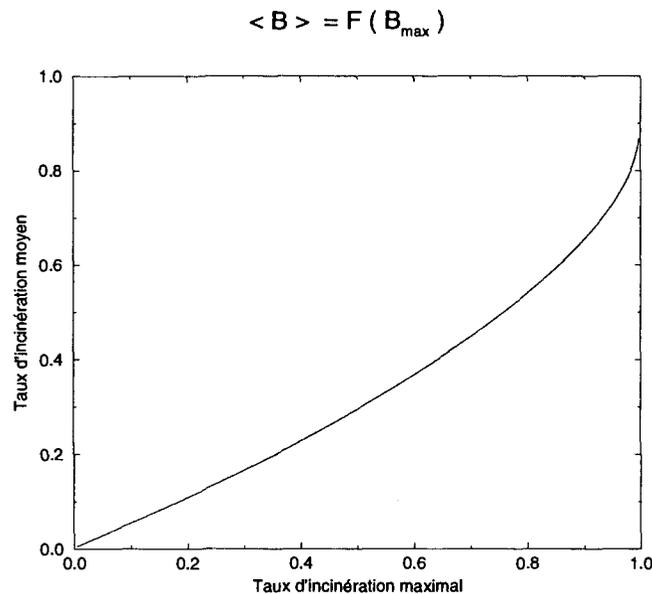


FIG. 5.14: Relation entre les taux d'incinération en combustible solide B_{\max} et en combustible liquide $\langle B \rangle$. Il s'agit des déchets issus du cycle ouvert, irradiés en spectre rapide à $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s. La teneur moyenne en PF est toujours inférieure à la teneur maximale, teneur de la plus vieille "pastille". Nous constatons que la limite sur le taux d'incinération est la même pour les deux type de combustibles puisque en combustible solide nous avons $B_{\max} = 95\%$, ce qui correspond à $B_{\text{moy}} = 80\%$, limite observé figure 5.12.

alors la teneur moyenne de produits de fission pour l'ensemble des pastilles, qui n'est autre que le taux d'incinération calculé en combustible liquide, est $\langle B \rangle$. Cette explication de la réduction du burn-up en combustible liquide ne tient pas compte des différences de bilan neutronique dues aux actinides mineurs, mais celles-ci sont moins significatives, sachant que les deux valeurs de D convergent vers une limite identique pour $B = 1$.

Finalement, la possibilité de travailler à plus haut flux permet d'améliorer légèrement le bilan neutronique, mais l'ordre de grandeur du taux d'incinération maximal n'est pas sensiblement modifié et les gains radiotoxiques envisageables sont inchangés

5.4 Dynamique de convergence

Après avoir analysé les gains susceptibles d'être réalisés en combustible liquide et les limites neutroniques, il faut revenir sur la dynamique du système. Alors que le combustible solide atteint son régime asymptotique après une durée égale à celle de l'incinération, le combustible liquide nécessite la mise à l'équilibre de l'ensemble de la chaîne isotopique (cf. figure 3.1).

Il serait possible d'étudier de manière approfondie cette dynamique de convergence mais nous ne le ferons pas pour plusieurs raisons :

- l'intérêt du combustible liquide sans recyclage en spectre rapide est très limité puisque le taux d'incinération maximal est fortement réduit par rapport à celui du combustible solide;

- le spectre thermique peut y trouver une simplification technique à cause des problèmes évoqués en combustible solide (durée très courte d'irradiation, distribution de puissance "piquée" à l'origine) mais ses temps d'incinération entraînent une convergence rapide, au plus quelques années ;
- la convergence est d'autant plus rapide que le taux de prélèvement est important, ce qui est le cas en spectre thermique ;
- nous étudierons la mise à l'équilibre de manière détaillée lors du retraitement en ligne, soit $\lambda = 0$. Nous montrerons que les temps de convergence sont de quelques années, ce qui doit *a fortiori* être le cas ici, moyennant un schéma de chargement adapté pendant le régime transitoire.

Nous renvoyons donc au chapitre 6 pour les données chiffrées et l'analyse des paramètres susceptibles de réduire la durée du régime transitoire.

5.5 Conclusion

L'introduction du combustible liquide visait à alléger certaines contraintes technologiques liées à l'alimentation continue en combustible solide. Une analyse détaillée des conséquences sur la réduction de l'inventaire radiotoxique et sur le bilan neutronique fait ressortir le peu d'avantages du combustible liquide. Ce sera essentiellement sur le plan de la gestion de la matière nucléaire, une plus grande homogénéité de la puissance dissipée, et l'absence de problèmes liés aux gaines.

Par contre, les inconvénients sont nombreux et vont à l'encontre de l'objectif principal de l'incinération des déchets : réduire leur nocivité. Pour ce qui est du spectre rapide, le combustible liquide ne tire pas profit de l'excellent bilan neutronique des actinides. Le taux d'incinération maximal est de 80% pour les déchets du cycle ouvert, soit un gain d'un facteur 5 tout au plus, alors que le combustible solide peut laisser espérer des gains d'un facteur 20. La raison essentielle réside dans la teneur en produits de fission du cœur.

En spectre thermique, tout schéma privilégié a disparu par la dilution de l'effet du ^{244}Cm . La possibilité de tirer profit d'un découplage partiel entre la transmutation et l'évolution de la radiotoxicité n'existe plus. Les gains s'en trouvent limités puisque un taux d'incinération de 70% conduit à un gain plus faible en combustible liquide qu'en combustible solide (environ un facteur 2). Le taux d'incinération maximal est aussi réduit, pour les mêmes raisons qu'en spectre rapide.

Le combustible liquide ne permet donc pas d'améliorer l'incinération, quelque soit le spectre retenu. Parmi les deux effets constatés, l'absence de saturation bénéfique est irrémédiable, mais les problèmes liés à la teneur en produits de fission peuvent être contournés en introduisant un retraitement en ligne. Ce que nous allons maintenant explorer.

Chapitre 6

Incinération avec recyclages

L'incinération des déchets nucléaires avec un combustible solide et sans recyclage nous a montré qu'il était possible de réduire l'inventaire radiotoxique de manière significative en spectre rapide et de manière moins importante en spectre thermique. L'étude du combustible liquide, intéressant pour assurer une alimentation continue, nous a conduit à étudier de près la teneur en produits de fission dans le cœur. Ce paramètre influence fortement les gains susceptibles d'être réalisés par une incinération. L'introduction d'un retraitement en ligne permet de faire fi de ce problème.

Nous allons examiner les grandes lignes d'un réacteur avec un recyclage continu (cf. figure 6.1), en suivant la même logique que pour les études précédentes : les paramètres globaux comme le taux d'incinération, ou plutôt la fraction massique des produits de fission, l'inventaire radiotoxique et la masse, en approfondissant encore plus le bilan neutronique (cf. figure 6.2). De tels réacteurs peuvent se concevoir avec un combustible solide ou liquide. Nous avons déjà longuement évoqué les avantages respectifs de chacun en terme de technologies, de teneur globale en produits de fission, d'inventaire dans le cycle ... Nous nous contenterons d'examiner ici le cas d'un combustible liquide sachant que les résultats principaux pour un combustible solide peuvent être aisément extrapolés.

Ayant mis en évidence un certain nombre de solutions, il nous faut revenir sur la pertinence de l'approche à l'équilibre. Pour cela, il faut établir la dynamique de convergence et identifier certains paramètres qui réduisent la durée du transitoire.

Avec cette validation, nous utiliserons le modèle de cœur développé au chapitre 3 pour avoir des images complètes des incinérateurs. Nous pourrons ainsi déterminer l'influence des cinq paramètres fondamentaux du modèle et les configurations précises de chaque parc. Ceci nous permettra alors de vérifier la cohérence de notre démarche (cf. figure 2.15) en estimant le spectre neutronique réalisé pour chaque configuration et en le comparant au spectre initial. Un calcul Monte-Carlo nous permettra enfin de vérifier la pertinence de l'approximation du calcul analytique à un groupe dans un cas particulier.

6.1 Paramètres globaux

Le parc d'incinérateurs qui assure la destruction des déchets est caractérisé par des paramètres généraux. La puissance nous est donnée par la masse de déchets à détruire, puisque le taux d'incinération est proche de 1 (l'écart provient des pertes au retraitement). Il nous faut déterminer la réduction effective de l'inventaire radiotoxique, la masse d'actinides et le bilan

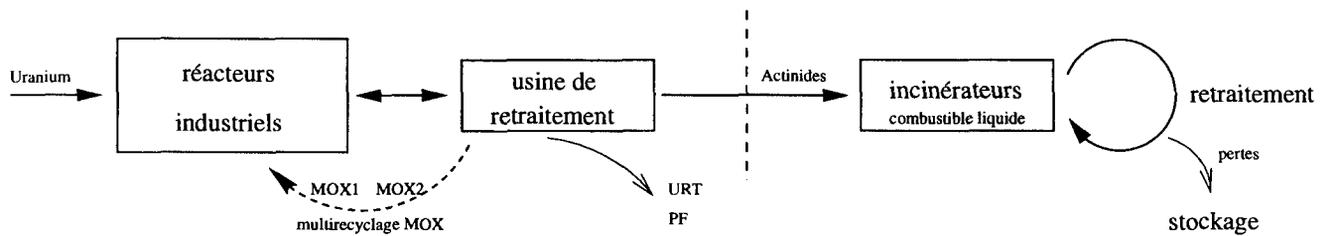


FIG. 6.1: Flux de matières pour l'incinération d'un combustible liquide avec un retraitement en ligne.

neutronique détaillé: actinides, PF, PFVL et pertes. Nous serons alors en mesure de tracer l'esquisse de quelques réacteurs remplissant l'objectif d'incinération.

6.1.1 Inventaire radiotoxique

Dans un schéma de recyclage continu, les pertes radiotoxiques proviennent uniquement des imperfections du retraitement chimique. Nous avons établi des relations entre le taux d'incinération, l'efficacité du retraitement et les pertes massiques (cf. section 3.3). La masse ne représente pas en elle-même un risque, il nous faut établir l'inventaire radiotoxique correspondant.

6.1.1.1 Spectre thermique

L'incinération en spectre thermique conduit à une composition isotopique dominée par trois isotopes¹ : ^{242}Pu , ^{244}Cm et ^{246}Cm et l'inventaire radiotoxique sera, de ce fait, dominé par le curium (cf. figure 6.3). Cette figure présente l'inventaire rapporté à la masse d'actinides présents dans le cœur (cf. section 6.1.2). Ce calcul en Sv/kg est adapté au modèle de flux de matières qui ne considère que des masses d'actinides ou de produits de fission. On y reconnaît le comportement typique des deux isotopes ^{244}Cm et ^{246}Cm déjà amplement décrit. Le plutonium, principal élément des déchets à détruire, ne contribue que très faiblement à l'inventaire final.

Etant donné que le spectre thermique "focalise" la composition isotopique sur quelques isotopes, quels que soient le flux et le scénario retenus, l'influence de ces deux paramètres est faible. Des calculs faits pour des flux différents, $5 \cdot 10^{14}$ et $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s, montrent que l'inventaire radiotoxique en sieverts par kilogramme varie d'au plus 6%.

La comparaison des quatre scénarios de référence, cf. figure 6.4, explicite les différences de compositions isotopiques à l'équilibre. Cette figure illustre le rapport entre l'inventaire radiotoxique (en Sv/kg) du scénario MOX1, MOX2 ou multirecyclage MOX et l'inventaire radiotoxique (en Sv/kg) du cycle ouvert. Moins le mélange initial contient de plutonium, plus la proportion de curium et principalement de ^{244}Cm et de ^{246}Cm , est importante à l'équilibre, expliquant les deux "bosses" du ^{242}Cm de la figure 6.4 (cf tableau 6.1). En effet, ce dernier isotope est produit par décroissance de ^{242g}Am , lui-même produit par capture sur ^{241}Am . Si les déchets contiennent beaucoup d'américium, la proportion de ^{242}Cm sera importante. Par contre, une forte teneur en plutonium conduit à une chaîne passant par ^{243}Am ne permettant pas l'accumulation de ^{242}Cm . Ceci se traduit par l'apparition des "bosses" car l'inventaire radiotoxique pendant les premières dizaines d'années est dû au ^{244}Cm , masquant la contribution

1. Dans le cas du scénario de multirecyclage MOX, il faut rajouter les isotopes ^{241}Am , ^{243}Am et ^{248}Cm .

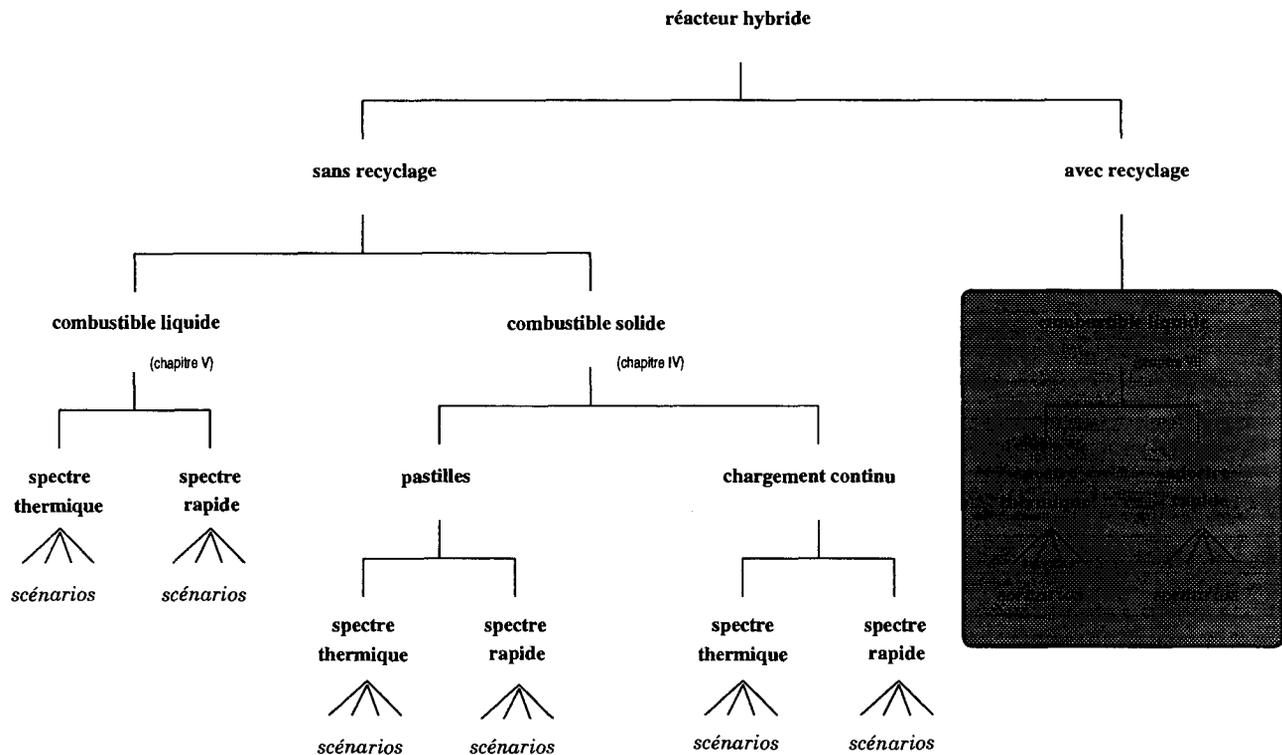


FIG. 6.2: *Domaine d'analyse du chapitre 6.*

croissante du ^{242}Cm , ce dernier ne se révélant qu'après une cinquantaine d'années.

Si nous intégrons les produits de fission à vie longue issus des réacteurs de puissance et des incinérateurs, la première "bosse" perd de sa pertinence car elle est en partie masquée. De même, la deuxième se situe à des durées telles que l'inventaire radiotoxique est très faible². En première approximation, on peut donc considérer que les différents scénarios, pour tout niveau de flux, conduisent à une même toxicité, exprimée en sieverts par kilogramme.

Enfin, la comparaison du niveau de l'uranium initial et des inventaires radiotoxiques entre 10^2 et 10^5 ans de stockage³ permet d'estimer à 100 kg les pertes massiques annuelles liées au retraitement "autorisées" si l'objectif est de revenir au niveau de l'uranium naturel initial au bout de 200 ans.

Cette limite annuelle de 100 kg est à relativiser. Toute diminution supplémentaire du niveau des pertes devient discutable vu (i) l'inventaire radiotoxique de l'uranium appauvri et de l'uranium de retraitement et (ii) la radiotoxicité des pertes liées aux opérations de retraitement du combustible des réacteurs de puissance. Mais, ceci demeure un ordre de grandeur et, par la suite, nous regarderons de plus près chaque scénario pour déterminer le niveau exact des pertes en fonction de l'objectif.

En reprenant les notations de la section 3.3, nous pouvons exprimer l'efficacité de retraite-

2. A ces époques, entre 10^5 et 10^6 années, même le cycle ouvert, sans incinération, a un inventaire radiotoxique inférieur au niveau de l'uranium naturel initial.

3. Cette plage de temps est la principale source d'intérêt comme nous l'avons déjà remarqué. Avant les produits de fission dominant et après la toxicité est revenue au niveau de l'uranium.

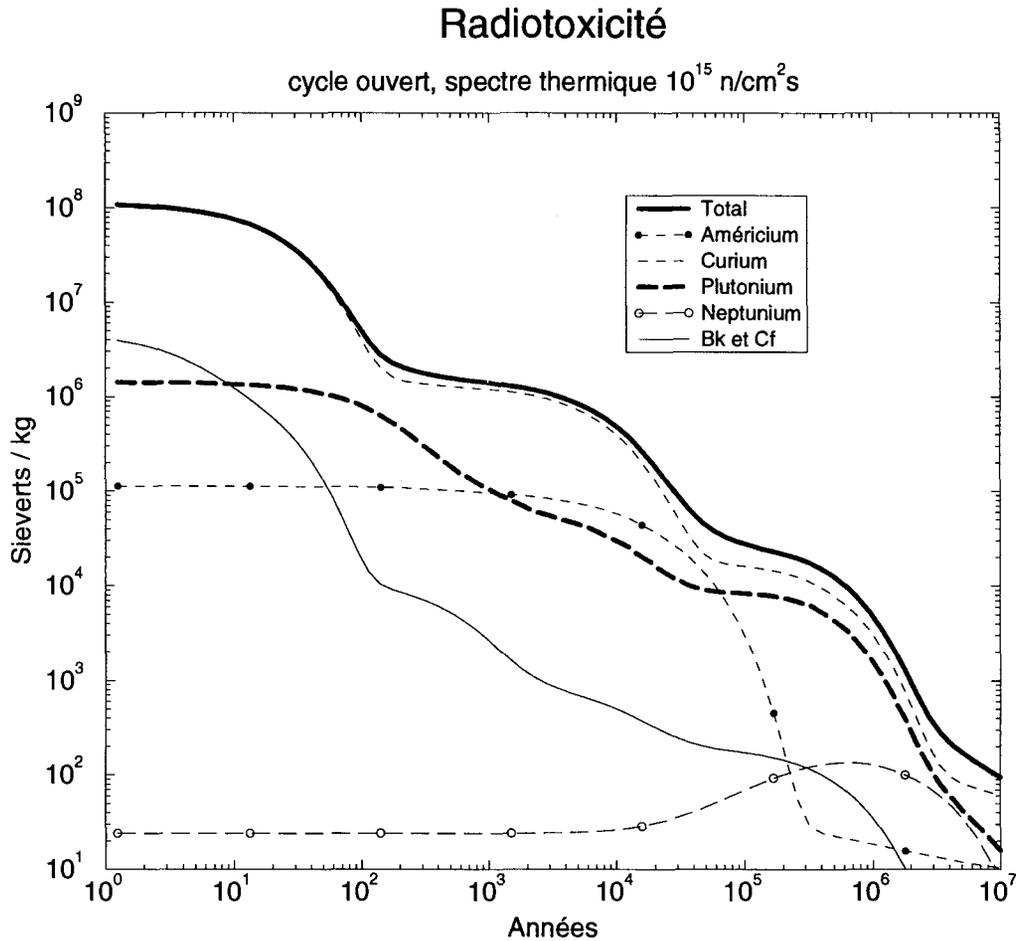


FIG. 6.3: L'inventaire radiotoxique en sieverts par kilogramme à l'équilibre lors de l'incinération des déchets du cycle ouvert sous un spectre thermique de $10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$, est principalement dû aux isotopes fertiles du curium, ^{244}Cm et ^{246}Cm . La proportion massique de ces isotopes dans le mélange n'étant que très peu modifiée par le niveau de flux, l'inventaire en sv/kg ne dépend pratiquement pas de ce dernier paramètre. Les calculs pour des flux différents, $5 \cdot 10^{14}$ et $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$, conduisent à des écarts d'au plus 6%.

Isotopes	cycle ouvert		multirecyclage MOX	
	tonnes	fraction	tonnes	fraction
²³⁷ Np	0,25	0,8%	0,22	1,4%
²³⁸ Pu	0,25	0,8%	0,29	1,8%
²³⁹ Pu	0,18	0,6%	0,04	0,3%
²⁴⁰ Pu	0,83	2,7%	0,11	0,7%
²⁴¹ Pu	0,24	0,8%	0,03	0,2%
²⁴² Pu	5,97	19,7%	0,91	5,6%
²⁴¹ Am	0,01	0,3%	0,08	0,5%
²⁴³ Am	2,03	6,7%	1,01	6,2%
²⁴² Cm	0,12	0,4%	0,65	4,0%
²⁴³ Cm	0,003	0,01%	0,02	0,1%
²⁴⁴ Cm	8,91	29,3%	5,46	33,7%
²⁴⁵ Cm	0,12	0,4%	0,08	0,5%
²⁴⁶ Cm	9,30	30,6%	5,98	36,9%
²⁴⁷ Cm	0,11	0,4%	0,07	0,4%
²⁴⁸ Cm	1,88	6,2%	1,21	7,5%
Total	30,2	99,7%	16,2	99,8%

TAB. 6.1: Composition isotopique du mélange d'équilibre obtenu en spectre thermique à 10^{15} n/cm²s à partir des déchets du cycle ouvert et du multirecyclage MOX. Pour le cycle ouvert, les trois isotopes principaux, le ²⁴²Pu, le ²⁴⁴Cm et le ²⁴⁶Cm, constituent près de 80% de la masse d'actinides et les autres isotopes fertiles, ²⁴³Am et ²⁴⁸Cm, totalisent environ 13% de la masse. Dans le cas du multirecyclage MOX, il n'y a plus que deux isotopes principaux, le ²⁴⁴Cm et le ²⁴⁶Cm. Ils représentent 71% de la masse. Les autres isotopes fertiles contribuent à hauteur de 29%.

ment y en fonction du taux d'incinération :

$$y = \frac{B}{1-B} \cdot \frac{a}{A-a} (1-z) \quad (6.1)$$

La figure 6.5 montre la variation de y en fonction de B , le taux d'incinération, dans le cas de l'incinération des déchets du cycle ouvert. Les performances de retraitement à La Hague, à savoir 10^{-3} , en les extrapolant pour tous les isotopes, identiques aux pertes envisagées par ATW [59], montrent que le taux d'incinération n'a pas besoin d'être supérieur à 10%. Les valeurs minimales de B pour chaque scénario sont données tableau 6.2: l'inventaire radiotoxique des pertes de retraitement après 200 ans étant pris égal au niveau de l'uranium naturel, qui dépend du scénario, nous pouvons déterminer la masse de ces pertes et le taux d'incinération en cœur compte tenu d'une efficacité de retraitement de $y = 10^{-3}$. Ce taux d'incinération est déterminé par l'égalité suivante :

$$B = \frac{A-a}{A+a \cdot \frac{1-z-y}{y}} \quad (6.2)$$

Deux effets opposés se conjuguent :

1. la réduction de la masse des déchets à détruire se traduit par la possibilité d'avoir des pertes proportionnellement plus importantes et donc un taux d'incinération plus faible⁴;

4. Le rapport a/yA est une fonction décroissante du taux d'incinération. Si les pertes sont imposées par une

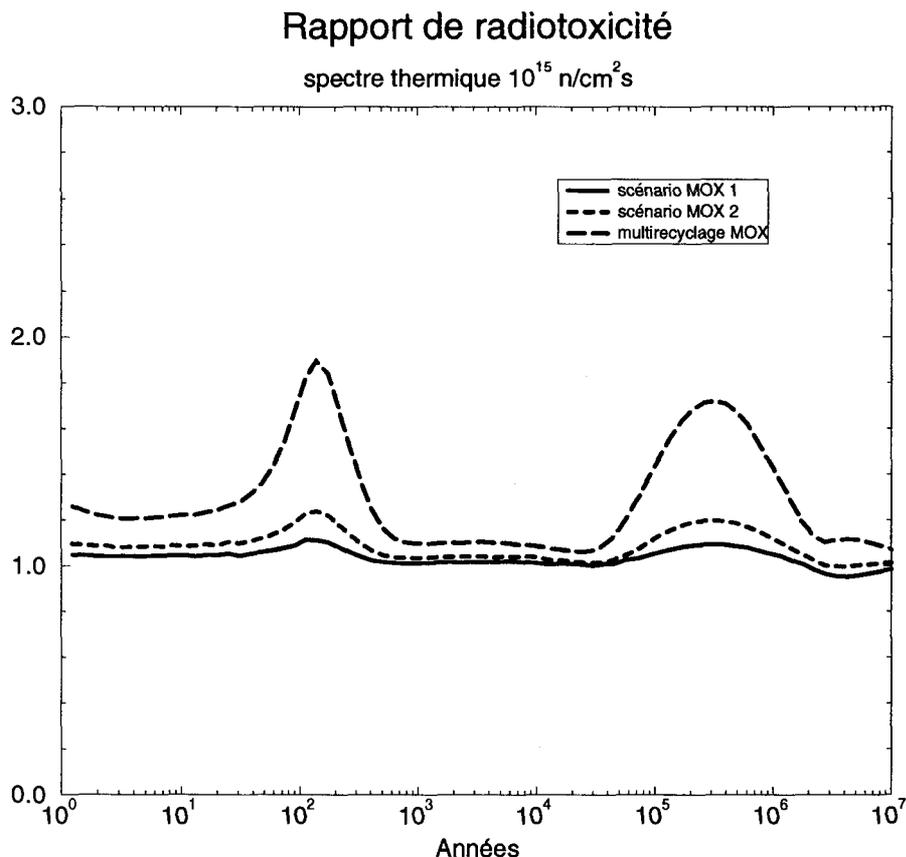


FIG. 6.4: Les différents scénarios conduisent à des inventaires radiotoxiques, en sieverts par kilogramme, comparables. On note l'apparition progressive, avec la disparition du plutonium dans les déchets à détruire, des deux bosses dues à une proportion croissante de ²⁴²Cm dans le mélange.

2. une diminution de la radiotoxicité de l'uranium naturel avec les scénarios, car le recyclage du plutonium permet de mieux exploiter l'uranium, combinée à une hausse de l'inventaire radiotoxique (cf. figure 6.4) au voisinage de 200 ans⁵.

Le premier de ces effets est le plus important comme nous le montrent les valeurs de taux d'incinération données tableau 6.2. Le burn-up est maximal pour le cycle ouvert, avec 10%, et décroît jusqu'à 6,9% pour le multirecyclage MOX.

Disposer d'un cœur dans lequel le taux d'incinération est supérieur à cette valeur permet de diminuer les pertes en limitant le nombre de retraitements, mais, outre le fait que l'inventaire radiotoxique global ne sera pas grandement modifié à cause des autres sources de radioactivité (cf. ci-dessus), cela "consomme" des neutrons qui auraient pu servir à la transmutation de produits de fission à vie longue ... (cf. schéma 3.15).

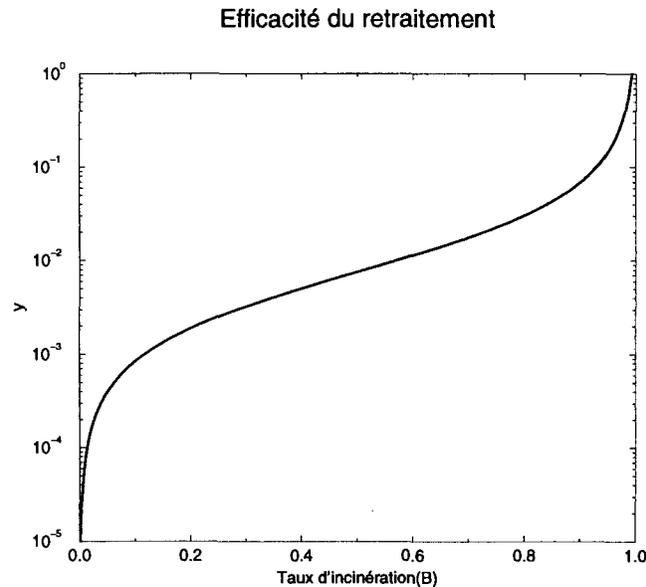


FIG. 6.5: En fixant une borne supérieure de 100 kg/an aux pertes, nous pouvons estimer l'efficacité minimale du retraitement y (cf. section 3.3). Les performances à La Hague et, a fortiori, celles de la pyrochimie [56, 59], nous montrent qu'en spectre thermique les taux d'incinération à réaliser pour l'incinération des déchets du cycle ouvert, n'ont pas besoin, dans ces conditions, d'être supérieurs à 10%.

6.1.1.2 Spectre rapide

Nous avons déjà constaté que l'incinération en spectre rapide conduisait à une composition isotopique très différente de l'incinération en spectre thermique (cf. tableau 6.3). En effet, cf. figure 6.6, le plutonium est la principale source de la radiotoxicité, sauf durant les premières années pendant lesquelles le curium est prépondérant. Cette importance du plutonium s'explique par les rapports $\frac{\sigma_f}{\sigma_c}$ très favorables à la fission. La composition isotopique est proche de celle des actinides à détruire. Ceci conduit à des mélanges différents pour les divers scénarios, à l'inverse du spectre thermique.

L'ordre de grandeur de l'inventaire radiotoxique des actinides à l'équilibre est voisin de celui observé en spectre thermique et ce malgré la différence de composition isotopique. Nous reviendrons plus loin sur une étude plus détaillée de cette comparaison entre spectres.

Par ailleurs, en poursuivant cette étude à d'autre flux, 10^{15} et 10^{16} n/cm²s, nous remarquons un comportement analogue à celui observé figure 6.4 : une diminution du niveau de flux conduit à l'apparition de deux pics identiques à ceux du spectre thermique. Une hausse du niveau de flux conduit à l'inverse : une dépression. La cause principale est la teneur en ²³⁸Pu. Avec des flux plus importants, cet isotope est moins présent. Nous reviendrons plus longuement sur le mécanisme exact en discutant le multirecyclage MOX pour lequel le phénomène est encore plus visible. Malgré l'apparition ou le creusement de ces pics, l'inventaire radiotoxique varie au plus de 20% au-delà de 10 ans. Ainsi, en première approximation, l'inventaire radiotoxique, par kilogramme d'actinides, des déchets issus du cycle ouvert est comparable pour tous les niveaux

contrainte sur l'inventaire radiotoxique, une diminution de la masse à détruire conduit à un taux d'incinération plus faible.

5. Cette hausse provient de la teneur accrue en ²⁴²Cm dans le mélange.

Scénario	Masse des pertes (kg)	Taux d'incinération B
cycle ouvert	120	10 %
MOX 1	96	8,8 %
MOX 2	82	8,2 %
multi MOX	55	6,9 %

TAB. 6.2: Nous pouvons déterminer les pertes massiques d'actinides afin d'avoir un inventaire radiotoxique (actinides uniquement) égal à celui de l'uranium initial. En supposant des conditions de retraitement identiques à celles de La Hague, ceci conditionne le taux d'incinération en cœur, à savoir le rapport de la masse de produits de fission et de la masse totale actinides et PF. Une masse plus faible à détruire implique moins de retraitement à taux d'incinération égal donc moins de pertes. Ce gain demeure malgré la baisse du niveau de l'uranium naturel avec les scénarios et la hausse de l'inventaire radiotoxique par unité de masse. Le combustible MOX permet ainsi de limiter la fraction massique des produits de fission dans les incinérateurs à 10%, au plus, en spectre thermique.

de flux.

Le scénario de multirecyclage présente quant à lui des caractéristiques légèrement différentes (cf. figure 6.7). Les contributions de l'américium et du curium sont à hauteur de celle du plutonium. En effet, malgré l'absence de plutonium dans les déchets initiaux, les isotopes ^{242}Cm et ^{244}Cm décroissent par désintégration α car les voies de capture et de fission sont proportionnellement peu probables. Ceci explique aussi la contribution importante du ^{238}Pu nettement visible pendant la première centaine d'années et après 30 000 ans.

La comparaison entre les deux scénarios fait aussi ressortir ce phénomène. La figure 6.8 donne l'inventaire radiotoxique pour les différents scénarios rapporté à celui du cycle ouvert en spectre thermique.

Nous y constatons bien l'impact du ^{238}Pu produisant le décalage entre le cycle ouvert et le multirecyclage MOX pendant la première centaine d'années ainsi que le pic au voisinage de 30 000 ans et au-delà. De plus, l'inventaire radiotoxique pour le spectre rapide présente des "pics" identiques à ceux observés figure 6.4. Leur origine est toujours liée à la proportion importante de ^{238}Pu issu de la décroissance du ^{242}Cm . Ceci peut conduire à des écarts d'environ un facteur 5 entre le spectre thermique et le spectre rapide. Comme nous l'avons évoqué ci-dessus, ces écarts pourraient être réduits en travaillant à des niveaux de flux plus élevés, mais les gains n'excèderaient pas 20%. Finalement, la proportion moins importante de curium dans le mélange par rapport au spectre thermique conduit à un inventaire radiotoxique plus faible, au plus 30%, entre 10^3 et 10^4 ans.

Disposant des courbes d'inventaire radiotoxique pour les différents scénarios, nous pouvons, comme pour le spectre thermique, déterminer la masse des pertes en vue de remplir un objectif: réduire la nocivité des déchets. Le critère retenu est que l'inventaire radiotoxique doit être égal à celui de l'uranium naturel après 200 ans. Ceci permet d'en déduire les taux d'incinération pour un retraitement identique à celui de La Hague, caractérisé par $y = 10^{-3}$ et $z \ll 1$. Les résultats sont donnés tableau 6.4 dans le cas d'un niveau de flux de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s.

Les taux d'incinération à réaliser sont de l'ordre de 20%, soit 2 fois plus élevés que pour

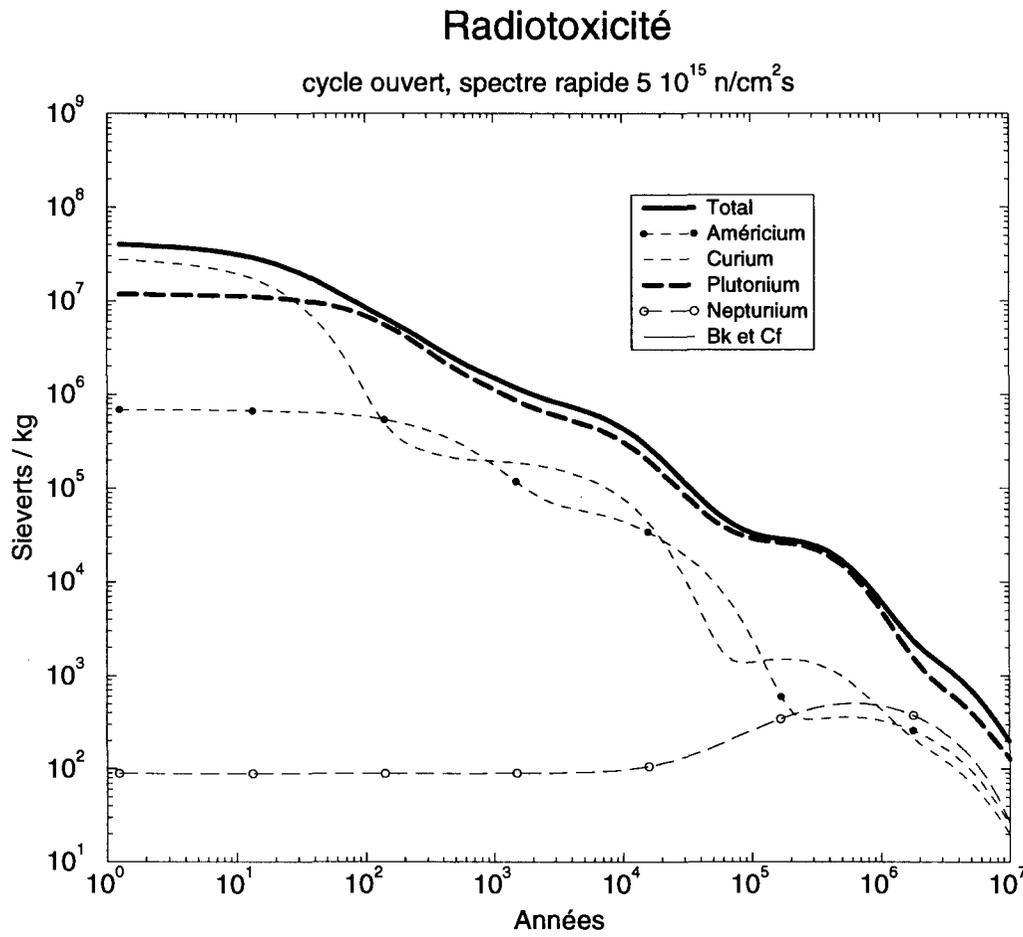


FIG. 6.6: L'inventaire radiotoxique des actinides à l'équilibre dans le cas du scénario de cycle ouvert en spectre rapide sous un flux de $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ est dominé par le plutonium. La composition isotopique en rapide est toujours "centrée" sur l'alimentation à cause de l'importance relative de la fission par rapport à la capture, comme nous avons déjà pu le constater. Notons que le niveau de la radiotoxicité est comparable à celui du spectre thermique.

le spectre thermique. Ceci provient, comme nous l'avons vu, de la contribution importante du ^{238}Pu au voisinage de 200 ans.

Ceci nous permet d'avoir une indication de la teneur en produits de fission dans les réacteurs hybrides. Bien évidemment la limite de 200 ans pour revenir à la même toxicité que l'uranium naturel est arbitraire. La fixer à 300 ans, voire plus, permet de bénéficier de la diminution importante de l'inventaire radiotoxique et donc de diminuer le taux d'incinération si le bilan neutronique n'est pas satisfaisant. Le tableau 6.5 donne les taux d'incinération et la masse des pertes en actinides quand la date de retour à l'uranium naturel est de 500 ans et non plus de 200 ans. Ceci donne une idée de l'impact des baisses d'inventaire radiotoxique constatées figures 6.4 et 6.8.

En spectre rapide, le taux d'incinération est deux fois moindre, alors que l'effet est faible, mais non négligeable, en spectre thermique. Le temps de retour à l'uranium naturel dépendra donc des marges du bilan neutronique, sachant que les taux d'incinération seront toujours

Isotopes	cycle ouvert		multirecyclage MOX	
	tonnes	fraction	tonnes	fraction
²³⁴ U	0,39	0,4%	0,44	1,2%
²³⁵ U	0,09	0,1%	0,01	0,03%
²³⁶ U	0,12	0,1%	0,01	0,03%
²³⁷ Np	2,96	3,1%	2,59	7,1%
²³⁸ Pu	6,23	6,5%	7,02	19,3%
²³⁹ Pu	18,2	19,0%	1,66	4,6%
²⁴⁰ Pu	29,8	31,1%	2,83	7,8%
²⁴¹ Pu	7,77	8,1%	0,47	1,3%
²⁴² Pu	13,0	13,6%	0,30	0,8%
²⁴¹ Am	1,99	2,1%	5,22	14,3%
^{242m} Am	0,11	0,1%	0,31	0,8%
²⁴³ Am	4,90	5,1%	3,95	10,8%
²⁴² Cm	0,31	0,3%	0,82	2,3%
²⁴³ Cm	0,04	0,05%	0,11	0,03%
²⁴⁴ Cm	7,37	7,7%	7,69	21,1%
²⁴⁵ Cm	1,39	1,5%	1,58	4,3%
²⁴⁶ Cm	0,91	1,0%	1,08	3,0%
²⁴⁷ Cm	0,09	0,1%	0,10	0,3%
²⁴⁸ Cm	0,05	0,05%	0,06	0,02%
Total	95,7	99,9%	36,3	99,1%

TAB. 6.3: La composition isotopique à l'équilibre en spectre rapide, à $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$, est "voisine" de celle des déchets. A l'inverse du spectre thermique qui favorise trois isotopes, le spectre rapide, de par la grande homogénéité des sections efficaces, conduit à des compositions très différentes suivant le scénario. A noter, dans le cas du multirecyclage, l'importance non négligeable du ²³⁸Pu, isotope à l'origine de l'uranium, qui est produit par la décroissance radioactive du ²⁴²Cm. Il est plus important à la fois proportionnellement et en masse, que dans le scénario du cycle ouvert, car la présence d' ²⁴¹Am dans les déchets conduit, par capture et décroissance vers le ²⁴²Cm. Cette voie est moins importante quand les déchets sont du plutonium car la voie principale passe par le ²⁴²Pu qui capture puis décroît en ²⁴³Am.

inférieurs à 20% en rapide et 10% en thermique.

6.1.2 Inventaire massique

Le retraitement en ligne du combustible d'un réacteur hybride permet d'envisager une réduction significative de l'inventaire radiotoxique tout en limitant la teneur en produits de fission, donc les conséquences sur les paramètres physiques du cœur. Afin de caractériser différents schémas nous avons besoin, conformément à la structure décrite figure 3.22, de l'inventaire et du bilan neutronique des actinides. Ces derniers nous permettront de déterminer l'ensemble des paramètres des réacteurs ainsi que la concentration d'actinides qui nous donnera une indication de la thermalisation effective et assurera la cohérence de notre démarche (cf. figure 2.15).

La masse d'actinides se stabilise avec la mise à l'équilibre du combustible au fur et à mesure de l'alimentation. La chaîne isotopique se développe et la composition isotopique se stabilise,

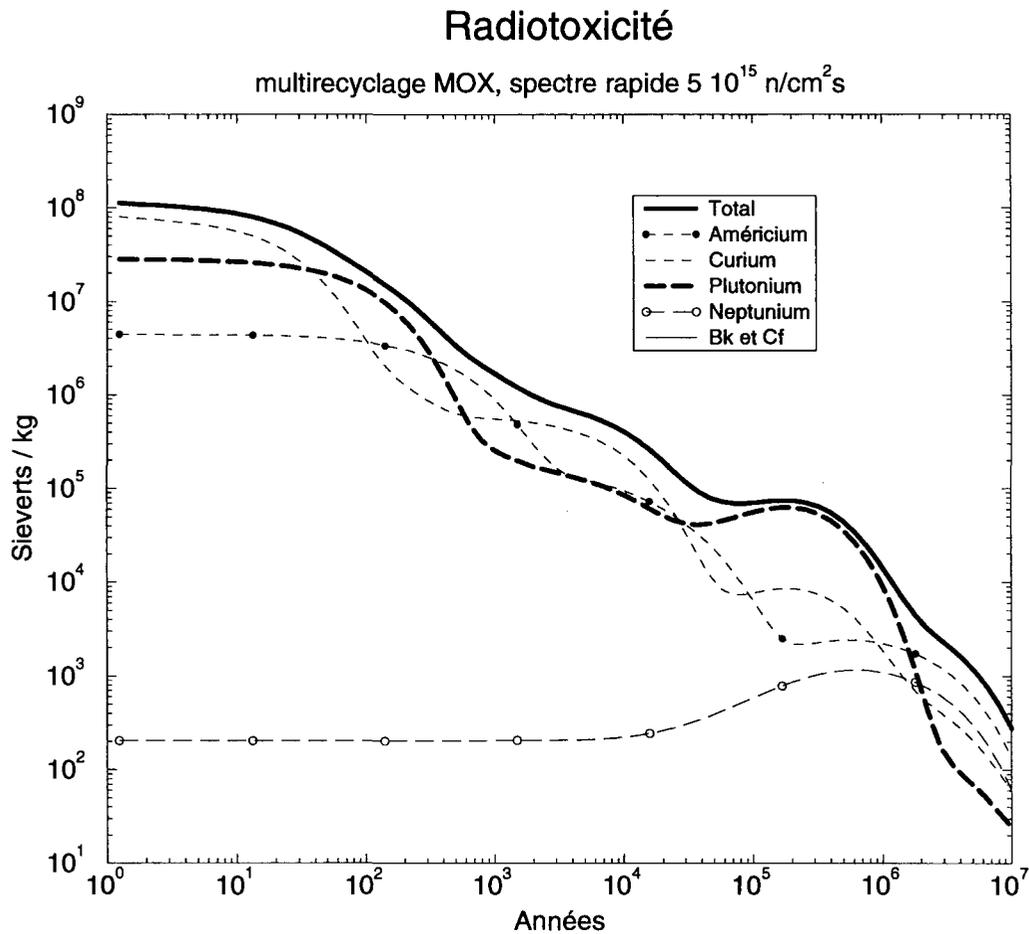


FIG. 6.7: L'incinération du multirecyclage MOX conduit à une composition isotopique "centrée" sur les isotopes de l'alimentation, comme dans le cas du cycle ouvert, mais conduit aussi à la formation d'une importante quantité de plutonium par décroissance du curium. La proportion plus importante de curium conduit à un inventaire radiotoxique plus élevé que pour le cycle ouvert.

comme c'était déjà le cas en combustible liquide "once-through". Les figures 6.9 et 6.10 donnent, en spectres thermique et rapide respectivement, la variation de masse en fonction du flux pour les différents scénarios.

Cet inventaire décroît quand le flux augmente. En effet, la destruction à l'équilibre d'une quantité donnée de déchets passe par des taux de réaction indépendants du flux. Ces derniers s'écrivant $\sigma N \phi_0$ avec N le nombre d'atomes de l'isotope, une hausse du niveau de flux se traduit par un nombre d'atomes plus faible donc une masse moindre. La masse est approximativement inversement proportionnelle au flux.

De plus, la quantité d'actinides est d'autant plus faible que la masse de déchets à détruire est faible.

Le fait que le taux de réaction dépende de la section efficace explique la différence entre les deux spectres de l'ordre d'un facteur 20 : les sections efficaces en spectre rapide sont plus faibles qu'en spectre thermique dans le même rapport. Notons que cette différence diminue lorsque le flux est plus intense : facteur 27 à $10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$ qui n'est plus que 15 à $10^{16} \text{ n/cm}^2\text{s}$.

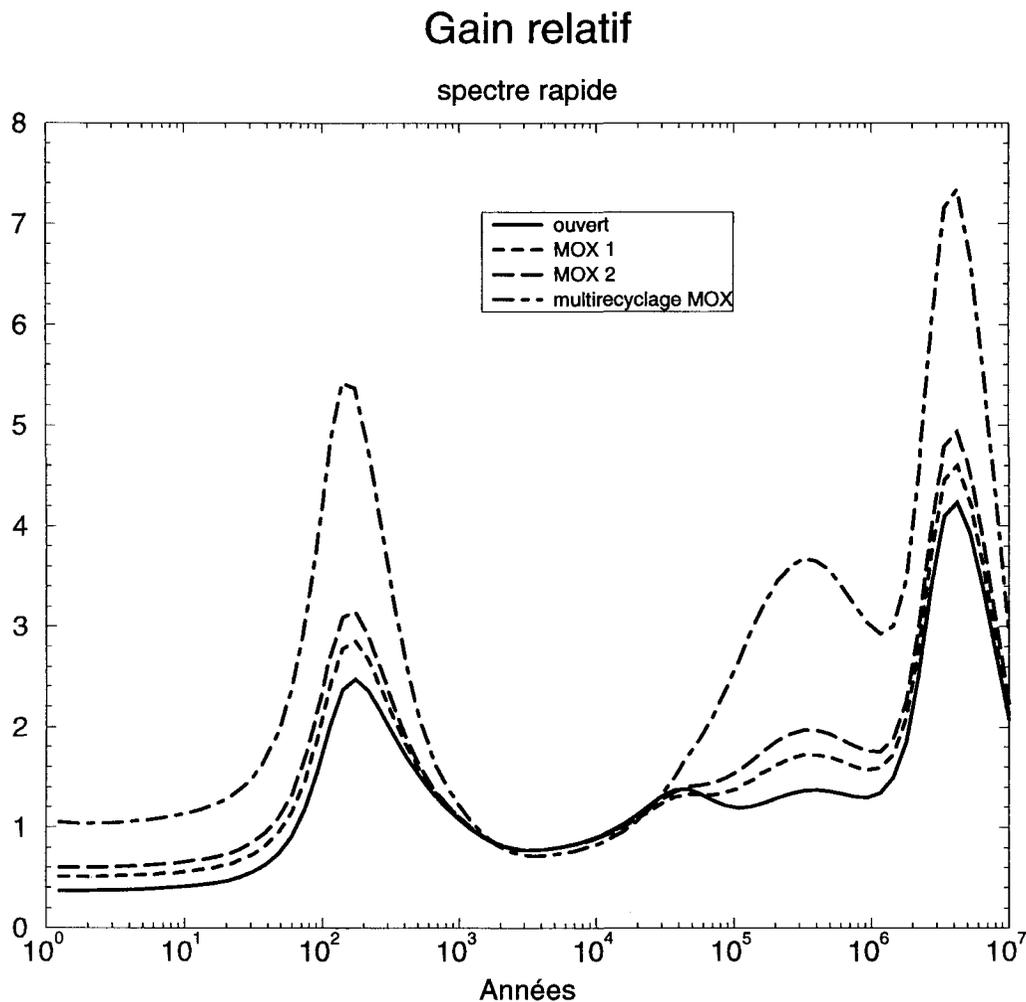


FIG. 6.8: Rapport entre l'inventaire radiotoxique en spectre rapide pour chaque scénario et celui du cycle ouvert en spectre thermique. Le premier pic est dû à la présence de ^{238}Pu , obtenu par décroissance du ^{242}Cm dans le cas du multirecyclage MOX. Les autres pics ne sont pas pertinents car ils se situeront toujours en deça du niveau de l'uranium naturel. En effet, une fois le niveau de radiotoxicité fixé par la masse des pertes de retraitement, la baisse naturelle de l'inventaire radiotoxique, d'un facteur 100 entre 10² et 10⁵ ans, conduira à un niveau inférieur à celui de l'uranium initial.

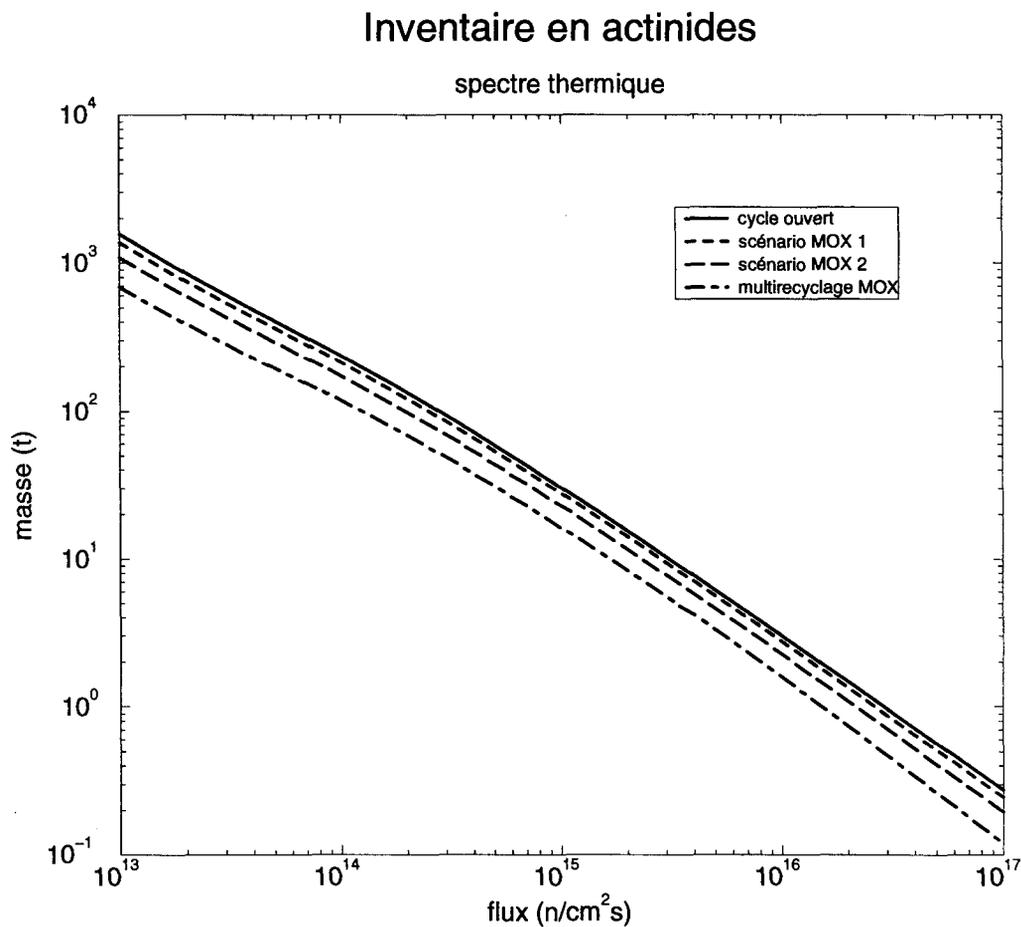


FIG. 6.9: La masse d'actinides à l'équilibre est approximativement inversement proportionnelle au flux, puisque le taux de fission doit demeurer constant. Moins les déchets contiennent de plutonium, plus la masse est faible, malgré la dégradation du caractère fissile. Ce dernier aspect est visible dans le rapport entre l'inventaire et la masse des déchets à détruire annuellement, rapport qui croît avec le nombre de recyclages MOX.

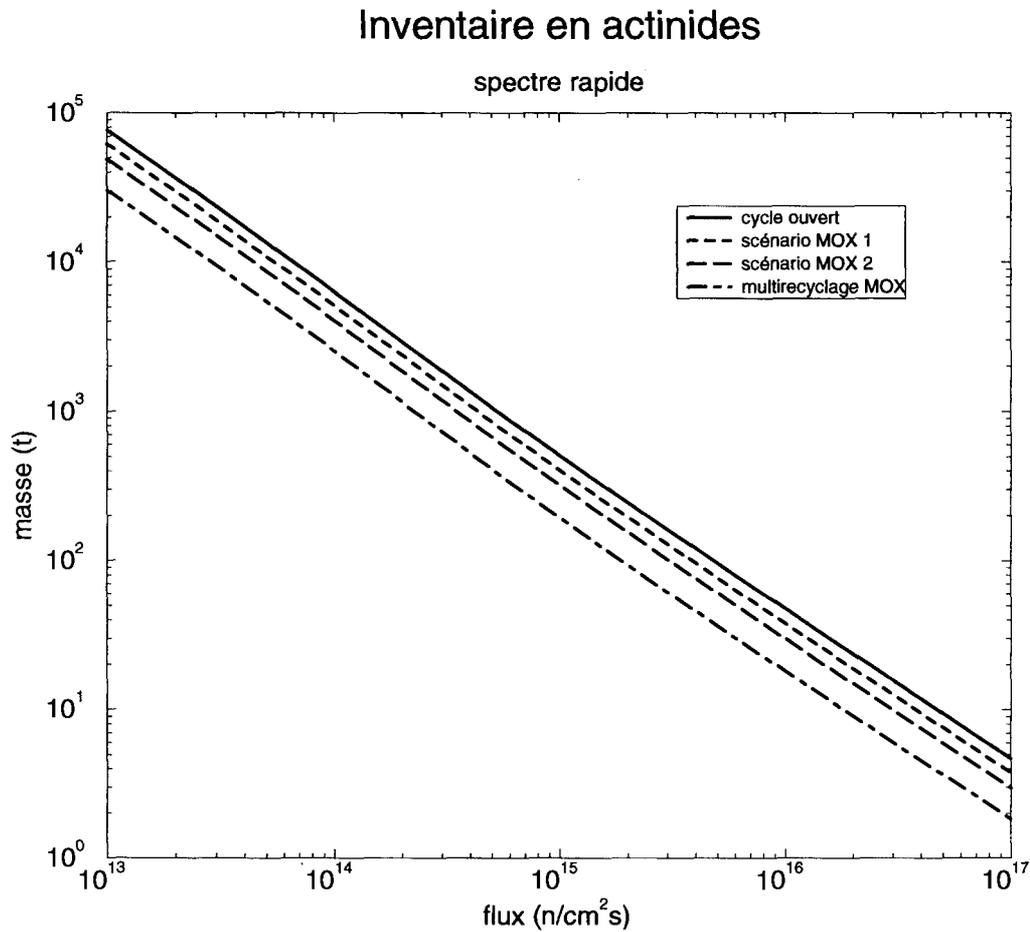


FIG. 6.10: *L'inventaire en cœur a le même comportement en spectre rapide qu'en spectre thermique. La différence entre les deux provient des sections efficaces, entraînant un écart d'un facteur 20 entre les masses à l'équilibre. Notons par ailleurs que le changement de composition isotopique des déchets a un effet moins important.*

Scénario	Masse des pertes (kg)	Taux d'incinération <i>B</i>
cycle ouvert	49	21 %
MOX 1	38	20 %
MOX 2	33	18 %
multi MOX	19	18 %

TAB. 6.4: En fixant le niveau de l'inventaire radiotoxique à 200 ans comme étant égal à celui de l'uranium naturel initial, nous pouvons déterminer les pertes massiques et donc le taux d'incinération, compte tenu d'une efficacité de retraitement. La présence de ^{238}Pu en quantité importante conduit à des taux d'incinération entre 2 et 3 fois plus élevés qu'en spectre thermique.

Scénario	Spectre thermique		Spectre rapide	
	Masse (kg)	<i>B</i>	Masse (kg)	<i>B</i>
ouvert	159	7,6%	105	11%
MOX1	137	6,3%	89	9,5%
MOX2	125	5,5%	81	8,3%
multi MOX	109	3,6%	61	6,2%

TAB. 6.5: En fixant l'époque de retour au niveau de l'uranium naturel à 500 ans, le taux d'incinération est nettement diminué, conséquence des baisses de l'inventaire radiotoxique (cf. figures 6.4 et 6.8).

La raison en est la modification de la composition isotopique en spectre thermique. Lorsque le flux augmente, la teneur des isotopes lourds du curium croît. Leurs sections efficaces étant moins élevées, il faut plus de masse pour conserver le taux de réaction. Ceci ne se produit pas en spectre rapide car les valeurs des sections efficaces sont plus homogènes⁶.

Cette évolution des sections efficaces en fonction des isotopes a aussi une influence sur la variation de l'inventaire en fonction du scénario. Alors que le rapport entre l'inventaire et la masse de déchets est de 2 pour le cycle ouvert en spectre thermique, il passe à 3,6 pour le multirecyclage MOX. Dans le cas du cycle ouvert, le mélange initial très fissile limite la masse de curium produit en favorisant la fission plutôt que la capture. Ce phénomène est aussi visible en spectre rapide mais dans une moindre mesure.

Evoquons une conséquence en spectre thermique de cet aspect : la puissance développée par unité de masse ira en décroissant avec les scénarios. Ou encore, il faudra plus de masse en multirecyclage qu'en cycle ouvert pour produire une puissance donnée. Le dernier cas, le cycle ouvert, présente donc l'avantage d'une concentration plus faible permettant une meilleure thermalisation des neutrons. Nous reviendrons sur les calculs de concentration par la suite afin de cerner ce phénomène.

6. Voir l'analyse sur le combustible en pastille qui met en évidence le ralentissement progressif de l'incinération au fur et à mesure que seuls demeurent les isotopes lourds du curium.

6.1.3 Bilan neutronique

Le bilan neutronique est le second paramètre crucial pour caractériser les conditions de fonctionnement d'un parc de réacteurs hybrides à l'équilibre. Les neutrons proviennent de la fission et de la spallation (donc le faisceau, indirectement). Ils sont capturés par (i) les actinides, (ii) les produits fission issus de la fission, (iii) les produits de fission à vie longue et (iv) les captures parasites par les matériaux de structure, le caloporteur et, en spectre thermique, le modérateur. Nous allons passer en revue l'ensemble de ces points.

6.1.3.1 Les actinides

La fission des actinides produit $\bar{\nu}$ neutrons par fission. Une partie de ces neutrons est capturée par les actinides directement. Sur les $G + \bar{\nu}$ disponibles initialement, il ne reste que $G + D_{Act}$ (cf. figure 3.15). Les figures 6.11 et 6.12 donnent les valeurs de D_{Act} pour chaque scénario.

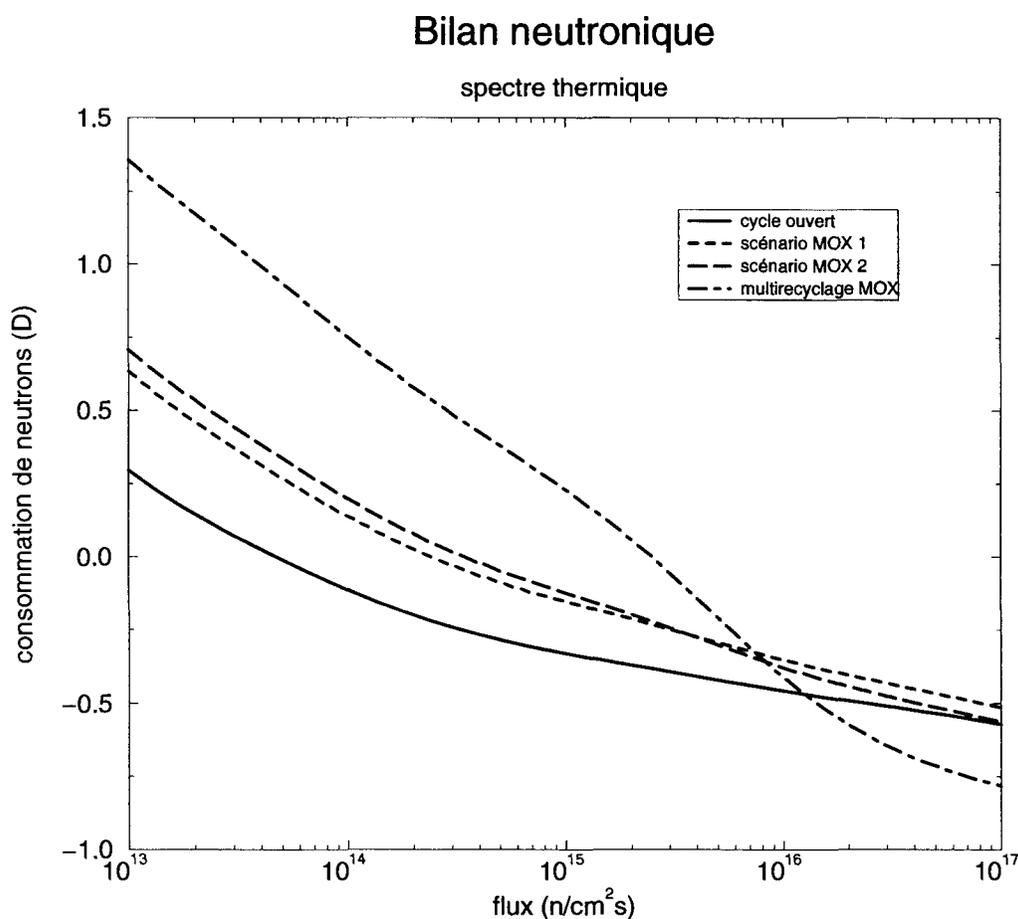


FIG. 6.11: Le bilan neutronique du mélange à l'équilibre s'améliore avec le flux. L'effet du plutonium dans le cas du cycle ouvert est très visible à faible flux mais sature rapidement à l'inverse du scénario de multirecyclage MOX pour lequel l'impact de l' ^{241}Am et de la fission du ^{242g}Am est très net et permet, à très haut flux, un bilan neutronique favorable.

Nous observons une baisse de la consommation de neutrons en fonction du flux qui s'explique par une importance croissante des voies de capture et de fission par rapport aux voies de

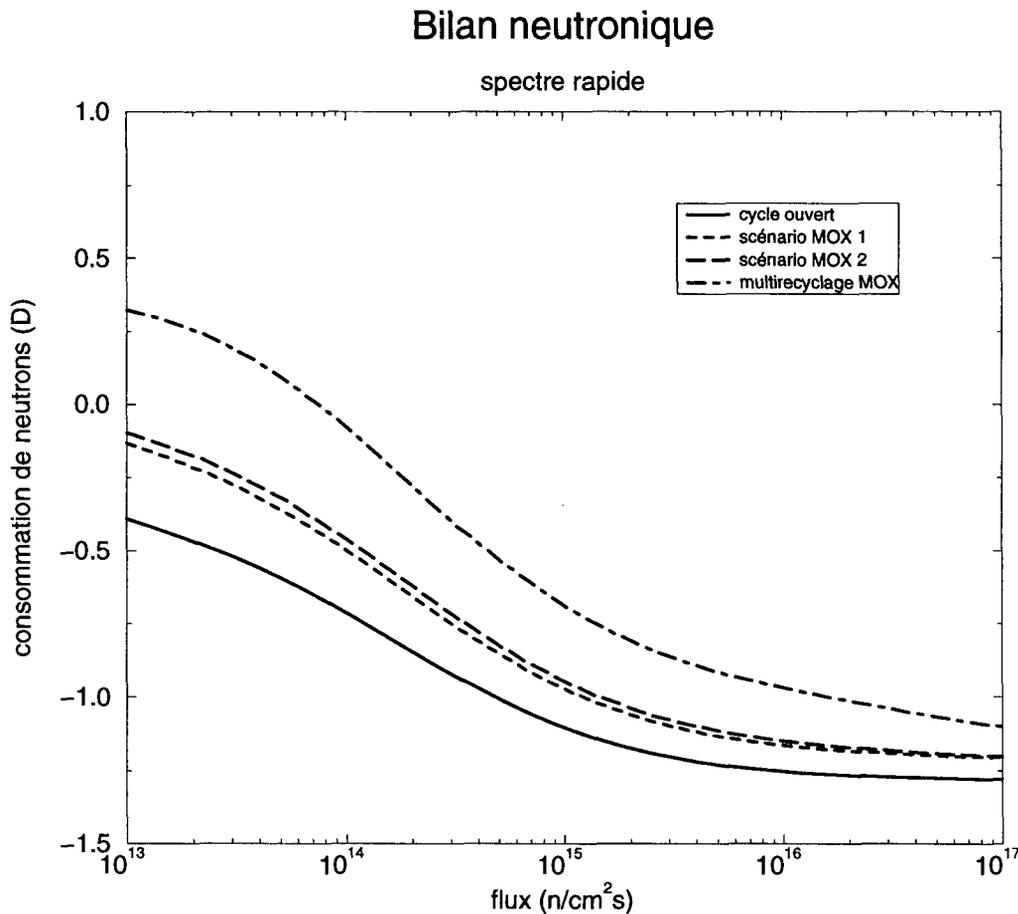


FIG. 6.12: *Le bilan neutronique en spectre rapide suit les mêmes lois que pour le spectre thermique, mais le scénario de multirecyclage MOX ne possède pas de transition.*

décroissance. A ce titre, il est intéressant de noter que les décroissances qui permettent le passage d'un noyau fertile à un noyau fissile sont rares: les désintégrations α ne changent pas le caractère fissile - fertile du noyau, seules les désintégrations β le permettent. Parmi les principales voies de désintégrations des actinides, seules les désintégrations $^{233}\text{Pa} \rightarrow ^{233}\text{U}$, $^{239}\text{Np} \rightarrow ^{239}\text{Pu}$, $^{250}\text{Cm} \rightarrow ^{250}\text{Bk}$, $^{249}\text{Bk} \rightarrow ^{249}\text{Cf}$ et $^{251}\text{Bk} \rightarrow ^{251}\text{Cf}$ permettent le passage d'un noyau fertile à un noyau fissile. Les autres décroissances β transforment un noyau fissile en un noyau fertile, détériorant par là le bilan neutronique. Réduire l'importance des voies de décroissance favorise la fission et permet de "consommer" moins de neutrons par fission. Ceci explique aussi la saturation du bilan neutronique avec le flux. Saturation par ailleurs inévitable puisque la courbe est décroissante et $D_{Act} > -\bar{\nu}$.

Dans le cas du spectre thermique et pour les faibles flux, l'utilisation de combustible MOX dégrade très sensiblement le bilan neutronique, au demeurant très défavorable, et ne permet pas d'envisager un réacteur hybride. L'effet est inversé à haut flux: le scénario de multirecyclage MOX devient le meilleur producteur de neutrons. L' ^{241}Am alors présent dans les déchets en quantités importantes provoque la fission du ^{242g}Am dont la durée de vie est de 16 heures (cf. section 3.1.3.2). La transition commence au voisinage de $2,5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s, s'amplifiant jusqu'à quelques 10^{16} n/cm²s. Le même phénomène s'observe, dans une moindre mesure, pour le scénario MOX2. Nous reviendrons plus loin sur les possibilités de diminuer la valeur du

flux correspondant à cette transition afin de tirer profit de cette amélioration sensible du bilan neutronique.

Cette transition, qui ne concerne que le multirecyclage MOX, n'apparaît pas en spectre rapide pour lequel l'ensemble des bilans neutroniques sont plus homogènes : le cycle ouvert est toujours plus producteur de neutrons. Et tous les scénarios ont des bilans neutroniques favorables au-delà de 10^{14} n/cm²s.

Nous notons deux différences entre les spectres :

1. une transition en spectre rapide, identique pour tous les scénarios, qui n'est pas visible en spectre thermique, car elle se produit à plus faible flux. Celle-ci s'explique aussi par la compétition entre les décroissances et les fissions, qui est à l'avantage des dernières pour des flux élevés ;
2. le spectre rapide fournit au moins 0,7 neutrons par fission supplémentaire. Les bilans neutroniques pour un flux de 10^{15} n/cm²s sont donnés tableau 6.6.

Scénario	Spectre thermique	Spectre rapide
cycle ouvert	-0,33	-1,10
MOX 1	-0,16	-0,98
MOX 2	-0,13	-0,95
multi MOX	0,22	-0,69

TAB. 6.6: Bilan neutronique pour un flux de 10^{15} n/cm²s. Le spectre rapide est nettement plus producteur de neutrons.

Le bilan neutronique, actinides seuls, est extrêmement favorable dans le cas du spectre rapide et semble plus limitée en spectre thermique. Reste à évaluer les autres sources de captures neutroniques afin de savoir (i) si la marge du spectre rapide est nécessaire ou seulement un confort et (ii) quels sont les schémas d'incinération qu'il est tout de même possible de réaliser en spectre thermique.

6.1.3.2 Les PF

L'évaluation des neutrons capturés par les produits de fission suppose de disposer de la masse des PF. A l'inverse des schémas en "once-through" pour lesquelles celle-ci est déterminée par la fluence, en retraitement continu, elle est arbitraire. En se donnant une limite sur la radiotoxicité, nous avons pu déduire un taux d'incinération (cf. tableau 6.2 et 6.4). Nous pouvons alors relier ce burn-up à la consommation de neutrons :

$$D_{PF} = \langle \sigma_{PF} \rangle \phi_0 \frac{m_{PF}}{M_{PF}} \cdot \frac{M_{Act}}{A} \quad (6.3)$$

Cette relation prend en compte le nombre de captures par les produits de fission et le nombre de fissions dans les cœurs (les notations sont celles définies dans le chapitre 3 et A est la masse de déchets à détruire par unité de temps). Pour traiter le cas d'un combustible solide, il faut connaître l'évolution de la puissance afin d'estimer la masse m_{PF} de produits de fission

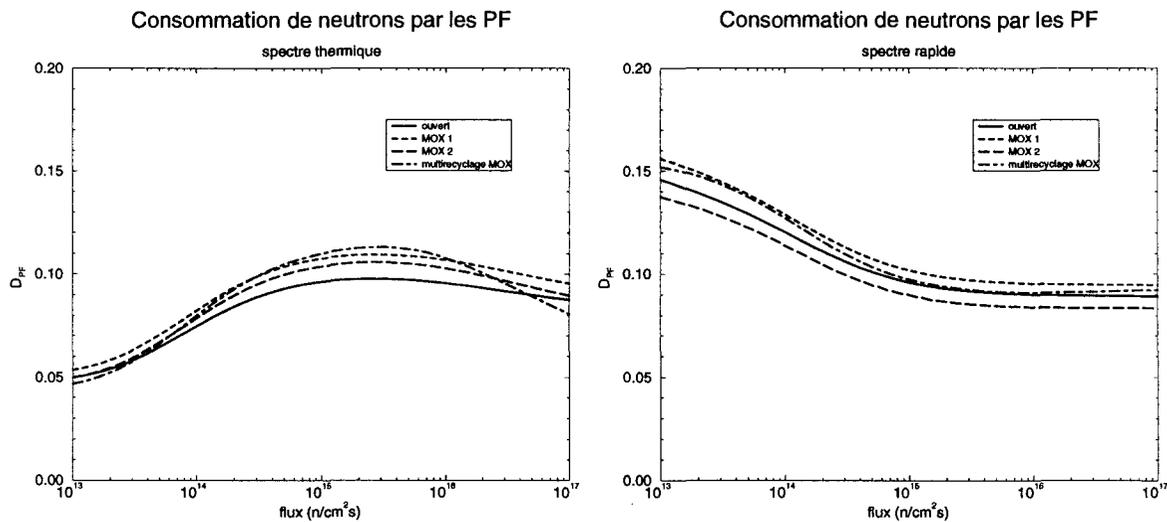


FIG. 6.13: Avec les taux d'incinération obtenus tableaux 6.2 et 6.4, nous pouvons estimer le nombre de neutrons, par fission, capturés par les produits de fission : environ 0,1 neutron par fission.

correspondant à un taux d'incinération donné. Nous nous concentrerons donc sur le cas d'un combustible liquide pour lequel $\frac{m_{PF}}{m_{Act}} = \frac{P'}{A'} = \frac{B}{1-B}$, d'où :

$$D_{PF} = 2 \langle \sigma_{PF} \rangle \cdot \frac{B}{1-B} \cdot \frac{m_{Act} \phi_0}{A} \quad (6.4)$$

Avec les résultats des calculs d'inventaire, une section efficace moyenne pour les produits de fission et une valeur du taux d'incinération, nous pouvons estimer le nombre de neutrons capturés par fission. La forme de l'équation laisse présager une variation proportionnelle au flux. Il n'en est rien puisque la masse d'actinides est inversement proportionnelle au flux. La figure 6.13 donne la variation de D_{PF} avec le flux en prenant les taux d'incinération des tableaux 6.2 et 6.4. Rappelons que le critère retenu pour le calcul du burn-up était que l'inventaire radiotoxique soit égal à celui de l'uranium naturel initial après 200 ans.

L'évolution de la consommation de neutrons est très différente d'un spectre à l'autre et fait ressortir les variations de l'inventaire en actinides. En spectre rapide, D_{PF} est décroissante et tend à haut flux vers une valeur comprise entre 0,08 et 0,1 neutron par fission quelque soit le scénario. En spectre thermique, les variations du produit $m_{Act} \phi_0$. A faible flux, les décroissances du curium permettent de produire du plutonium qui fissionne. Cette voie perd de son importance lorsque le flux augmente, la contrepartie étant une augmentation des isotopes pairs du curium. Il faut noter la baisse significative pour le multirecyclage MOX après 10^{16} $n/cm^2.s$ dont l'origine est identique à la "transition" du bilan neutronique mise en évidence figure 6.11 : la fission de l' ^{242g}Am devient prépondérante. Nous retrouvons tout de même un faisceau de courbes toujours inférieur à 0,12 neutrons par fission.

L'ordre relatif des différents scénarios n'est pas non plus aussi clair que précédemment. Il résulte de la combinaison de l'inventaire et de la radiotoxicité, deux aspects en partie découplés du problème puisque le premier traite des sections efficaces et le second des durées de vie des isotopes.

Les consommations de neutrons par les produits de fission sont donc voisines pour les dif-

férents scénarios. Sur les 3 neutrons disponibles par fission, il faudra en consacrer environ 3% afin de tolérer un niveau suffisant de PF en cœur pour limiter le nombre de retraitements et ainsi avoir des pertes suffisamment faibles pour que l'inventaire radiotoxique soit inférieur au niveau de l'uranium naturel après 200 ans.

6.1.3.3 Les PFVL

La première composante des produits de fission évaluée, il peut être intéressant de regarder les marges nécessaires pour l'incinération des produits de fission à vie longue.

La transmutation des produits de fission à vie longue issus des réacteurs de puissance et des incinérateurs nécessite une consommation supplémentaire de neutrons (cf. formule 3.40). Le nombre de noyaux N_i de l'isotope i à l'équilibre est donné par l'expression :

$$N_i = \frac{1}{\langle \sigma_i^{(c)} \rangle \phi_0} \cdot \frac{m_i \mathcal{N}}{M_i} \quad (6.5)$$

dans laquelle m_i est la masse à détruire annuellement et M_i la masse molaire. La consommation de neutrons peut alors s'écrire :

$$D_{PFVL,i} = D^* \frac{m_i}{A} \frac{M_{Act}}{M_i} \quad (6.6)$$

en ayant exprimé le nombre de fissions comme le nombre d'actinides à détruire. Les valeurs de $D_{PFVL,i}$ sont données dans le tableau 6.7 pour les trois principaux PFVL et pour chacun des quatre scénarios de référence en ne tenant compte que des PFVL produits par les réacteurs de puissance. La destruction des PFVL produits par les incinérateurs, en supposant les kilogrammes de PFVL par TWh identiques à ceux des réacteurs industriels⁷, conduit à une masse supplémentaire à transmuter, évaluée à +18% pour le cycle ouvert, +13% pour le scénario MOX 1, +10% pour MOX 2 et +5.8% pour le multirecyclage MOX.

Isotope	masse (t)	D_{PFVL}			
		cycle ouvert	MOX 1	MOX 2	multirecyclage MOX
⁹⁹ Tc	1.08	0.20	0.28	0.36	0.65
¹²⁹ I	0.24	0.034	0.048	0.061	0.11
¹³⁵ Cs	0.56	0.076	0.11	0.14	0.25
Total	1.88	0.31	0.438	0.561	1.01

TAB. 6.7: Consommation de neutrons pour la transmutation des trois principaux produits de fission à vie longue issus des réacteurs de puissance. La destruction du ¹³⁵Cs est un cas d'école puisqu'elle nécessite une séparation isotopique.

Les consommations de neutrons s'échelonnent entre 0,03 et 0,65 neutrons par fission en fonction de l'isotope et du scénario. La réduction de la masse des déchets à détruire explique la hausse significative des consommations de neutrons avec les scénarios car le nombre de fissions est réduit d'autant. Par ailleurs, la principale composante est due au technétium, \approx 64% des captures, si toute la masse est détruite. Il est en effet toujours possible de n'incinérer qu'une fraction de ces déchets en fonction des possibilités neutroniques ou d'une optimisation

7. Voir page 26 pour des indications sur la distribution des PFVL lors de l'incinération des déchets nucléaires.

du stockage. Nous pourrions refaire la même étude pour les PFVL que pour les actinides afin de connaître la masse à détruire en fonction de l'inventaire radiotoxique résiduel.

Notons finalement que les valeurs données pour le ^{135}Cs le sont uniquement à titre indicatif. Son incinération spécifique suppose une séparation isotopique. Cet isotope ne représente que 10% du césium produit en réacteur [15].

6.1.4 Synthèse

Nous disposons maintenant d'une évaluation du bilan neutronique pour les réactions sur les actinides, les PF et les PFVL. Il reste à caractériser les pertes associées aux fuites et aux matériaux supports (matériaux de structure, caloporteur et éventuellement modérateur dans le cas du spectre thermique). Une étude des réacteurs de puissance a permis de chiffrer cette composante à $D_{struc} + D_{fuites} = 0,3$ neutrons par fission [52, 73, 76]. Nous reviendrons sur cette valeur lorsque nous utiliserons le modèle de cœur sphérique, mais nous pouvons déjà avoir des idées quant aux possibilités neutroniques des différents systèmes : qu'est-il possible de faire dans les meilleures conditions ? Nous allons passer en revue chacun des scénarios et nous reviendrons par la suite sur les autres paramètres tels que la puissance volumique ou la concentration. Rappelons qu'une sous-criticité de 0,95 correspond approximativement à $G = 0,16$ et que $G = 0,33$ conduit à $k_{eff} = 0,9$.

Cycle ouvert Pour chaque scénario nous allons indiquer les flux correspondant aux sous-criticité 0,9, 0,95 et au réacteur critique. Ceci dans deux cas : actinides seuls ou avec les PFVL. Ce dernier cas correspond à la prise en compte des trois isotopes ^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs produits par les réacteurs de puissance.

En spectre thermique, le bilan neutronique du cycle ouvert permet d'envisager l'incinération à la fois des actinides et des produits de fission à vie longue. La destruction de ces derniers passe bien évidemment par des flux plus élevés afin de profiter de l'amélioration du bilan neutronique avec le flux. Nous avons ainsi des valeurs particulières⁸ :

Thermique

ϕ_0	PFVL	k_{eff}	I (A)
$5 \cdot 10^{13}$	non	0,90	1,85
$2 \cdot 10^{14}$	non	0,95	0,90
$2 \cdot 10^{15}$	oui	0,90	1,85
$3 \cdot 10^{15}$	non	1	0
$5 \cdot 10^{16}$	oui	0,95	0,90

La puissance thermique dissipée par cette incinération est de $33,7 \text{ GW}_{th}$.

En spectre rapide, les marges neutroniques sont encore plus importantes et la destruction

8. L'intensité correspond à l'ensemble des incinérateurs et nous avons utilisé $\nu_s = 30$ et $\phi^* = 1$.

des PFVL ne nécessite pas un flux élevé.

Rapide

ϕ_0	PFVL	k_{eff}	I (A)
$2 \cdot 10^{13}$	non	1	0
$1 \cdot 10^{13}$	oui	0,90	1,85
$4 \cdot 10^{13}$	oui	0,95	0,90
$1 \cdot 10^{14}$	oui	1	0

La destruction des actinides seuls à haut flux, $\phi_0 > 2 \cdot 10^{13}$ n/cm²s, suppose que le réacteur n'est pas optimisé car, sinon, il serait sur-critique. Ceci peut se traduire soit (i) par un taux d'incinération plus élevé, soit (ii) par des pertes neutroniques par fuites ou captures parasites supérieures à 0,3 neutrons par fission. Dans le premier cas, un burn-up supérieur conduit soit à une réduction de l'inventaire radiotoxique, dont nous savons déjà qu'elle ne présente que peu d'intérêt en comparaison de l'uranium appauvri et l'uranium de retraitement, soit à un besoin en retraitement moindre, ce qui représente une inefficacité compte tenu des rendements déjà atteints. Dans le second cas, la source neutronique éventuelle ne contribue pas au bilan neutronique de manière essentielle, l'ensemble des neutrons qu'elle produit étant perdu. Elle n'aurait d'intérêt qu'en terme de sûreté pour maintenir un niveau de sous-criticité.

Scénario MOX1 L'incinération en spectre thermique des actinides peut s'effectuer avec des sous-criticités raisonnables ($k_{eff} > 0,9$). Par contre, la prise en compte des produits de fission à vie longue n'est pas possible. Les flux nécessaires sont supérieurs à 10^{17} n/cm²s. Notons que la transmutation du technétium et de l'iode avec une sous-criticité de 0,9 demande un flux de $2 \cdot 10^{16}$ n/cm²s.

Thermique

ϕ_0	PFVL	k_{eff}	I (A)
$4 \cdot 10^{14}$	non	0,90	1,31
$3 \cdot 10^{15}$	non	0,95	0,64
$2 \cdot 10^{16}$	non	1	0

La puissance thermique dissipée est de $23,9 \text{ GW}_{th}$.

En spectre rapide, par contre, tous les schémas sont possibles mais les flux demeurent relativement faibles, sauf au prix d'une inefficacité, comme pour le scénario du cycle ouvert.

Rapide

ϕ_0	PFVL	k_{eff}	I (A)
$1 \cdot 10^{13}$	non	0,90	1,31
$3 \cdot 10^{13}$	non	0,95	0,64
$7 \cdot 10^{13}$	non	1	0
$1 \cdot 10^{14}$	oui	0,90	1,31
$2 \cdot 10^{14}$	oui	0,95	0,64
$5 \cdot 10^{14}$	oui	1	0

La prise en compte des PFVL suppose un flux 10 fois plus important que pour les actinides seuls. Cet écart est plus important que pour le cycle ouvert car l'impact des PFVL croît avec les scénarios en raison de la baisse de puissance des incinérateurs : la masse de déchets à détruire est plus faible.

On remarquera que l'incinérateur n'est pas optimisé pour des flux supérieurs à 10^{15} n/cm²s.

Scénario MOX2 Le spectre thermique est encore limité à la destruction des actinides. La transmutation du technétium et de l'iode à $k_{eff} = 0,9$ demande un flux de l'ordre de $3 \cdot 10^{16}$ n/cm²s.

Thermique

ϕ_0	PFVL	k_{eff}	I (A)
$6 \cdot 10^{14}$	non	0,90	1,03
$3 \cdot 10^{15}$	non	0,95	0,50
$1 \cdot 10^{16}$	non	1	0

La puissance thermique dissipée est de $18,8 \text{ GW}_{th}$.

A l'inverse, le spectre rapide est toujours excédentaire en neutrons, permettant la transmutation des PFVL. Le réacteur critique correspondant a un flux de 10^{15} n/cm²s, très en deça des références techniques habituellement prises pour les réacteurs rapides.

Rapide

ϕ_0	PFVL	k_{eff}	I (A)
$1 \cdot 10^{13}$	non	0,90	1,03
$4 \cdot 10^{13}$	non	0,95	0,50
$8 \cdot 10^{13}$	non	1	0
$2 \cdot 10^{14}$	oui	0,90	1,03
$4 \cdot 10^{14}$	oui	0,95	0,50
$1 \cdot 10^{15}$	oui	1	0

Multirecyclage MOX Ce scénario est le seul à avoir des limites à la fois en spectre thermique et en spectre rapide. Ce n'est pas une nouveauté en thermique puisque même des scénarios plus producteurs de neutrons ne pouvaient détruire les PFVL. Par contre, le flux rapide nécessaire pour un k_{eff} de 0,9 est $4 \cdot 10^{16}$ n/cm²s.

Thermique

ϕ_0	PFVL	k_{eff}	I (A)
$3 \cdot 10^{15}$	non	0,90	0,58
$6 \cdot 10^{15}$	non	0,95	0,28
$1 \cdot 10^{16}$	non	1	0

L'incinération de tous les PFVL n'est donc pas possible. La destruction du technétium et de l'iode peut se réaliser en spectre rapide avec une sous-criticité de 0,90 et un flux de $2 \cdot 10^{15}$ n/cm²s. Une sous-criticité de 0,95 demande un flux supérieur à $2 \cdot 10^{16}$ n/cm²s.

Rapide

ϕ_0	PFVL	k_{eff}	I (A)
$1 \cdot 10^{14}$	non	0,90	0,58
$2 \cdot 10^{14}$	non	0,95	0,28
$3 \cdot 10^{14}$	non	1	0
$4 \cdot 10^{16}$	oui	0,90	0,58

La puissance thermique dissipée est de $10,5 \text{ GW}_{th}$.

Ceci nous donne un aperçu des possibilités d'incinération dans les deux spectres en fonction du scénario des réacteurs de puissance, si les hybrides vérifient la condition $D_{struc} + D_{fuites} = 0,3$. Bien que ce ne soit pas nécessairement le cas pour les incinérateurs, nous avons dégagé un certain nombre de pistes intéressantes qu'il conviendra de valider ou d'infirmer en fonction des caractéristiques obtenues.

Plusieurs cas de figure semblent prometteurs en spectre thermique :

- cycle ouvert + PFVL sous un flux de $2 \cdot 10^{15}$ n/cm²s au moins ;
- MOX1 avec $3 \cdot 10^{15}$ n/cm²s ;
- MOX2 avec $3 \cdot 10^{15}$ n/cm²s ;
- multirecyclage MOX sous un flux de $3 \cdot 10^{15}$ n/cm²s.

Le premier est le seul permettant la transmutation des produits de fission à vie longue. Remarquons que les contraintes sur l'intensité et le nombre d'unités ne peuvent être satisfaites dans ce cas : la sous-criticité est trop importante compte-tenu de la puissance et l'intensité serait trop élevée par unité si on se limite à 10 incinérateurs. Augmenter le flux n'est pas non plus acceptable (à l'inverse du spectre rapide). Avec les limites que nous nous sommes données, le spectre thermique ne permet la transmutation des PFVL pour aucun scénario.

En spectre rapide par contre, tous les schémas sont envisageables, sauf la transmutation de tous les PFVL en multirecyclage MOX, comme nous l'avons déjà signalé. Mais ces schémas correspondent à des niveaux de flux faibles : $\phi_0 < 10^{15}$ n/cm²s. D'où deux solutions. Soit travailler à ces flux, mais il nous faut alors regarder les conséquences sur tous les autres paramètres du réacteur hybride (concentration d'actinides, taille de cœur ...), soit avoir des flux plus élevés au prix d'une "inefficacité" neutronique au sens où une fraction non négligeable de ceux-ci seront perdus afin d'assurer le bilan global⁹. Un seul schéma optimisé ressort de cette étude. Il s'agit de l'incinération des déchets du multirecyclage MOX avec la transmutation de l'iode et du technétium sous un flux de $2 \cdot 10^{15}$ n/cm²s.

Disposant d'un certain nombre de schémas d'incinération et avant de poursuivre plus avant leur caractérisation, il nous faut revenir sur la pertinence de l'approche à l'équilibre en étudiant la mise à l'équilibre.

6.2 La dynamique

L'étude des conditions d'équilibre représente certes un intérêt afin de déterminer si l'objectif peut être atteint, mais il serait incomplet sans une analyse de la vitesse de convergence. Faut-il 100 ans voire plus pour atteindre le régime décrit ? Et dans ce cas, la solution présente-t-elle un schéma viable ?

Remarquons tout d'abord que l'équilibre, bien qu'unique puisque entièrement déterminé par les déchets chargés en continu en cœur, peut être atteint plus ou moins rapidement suivant les conditions initiales, à savoir le chargement en début de vie de l'incinérateur. Ces conditions sont multiples et le propos n'est pas d'en faire une étude exhaustive, par ailleurs impossible, mais de regarder l'influence d'un paramètre particulier : la masse du chargement initial. La composition isotopique de celui-ci sera prise identique à celles de déchets à détruire. Ainsi la vitesse de

9. Il est probable que l'on sait trouver des moyens pour les utiliser à d'autres fins comme la surgénération dans des couvertures indépendantes du cœur, mais les complications techniques supplémentaires s'avèreront peut être rédhibitoires.

convergence dépendra du scénario, du spectre, du flux et du rapport entre le chargement initial et le chargement annuel.

Mais de quels paramètres doit-on assurer la convergence? Nous en avons retenu trois :

1. la **puissance**, représentative du nombre de fissions et donc de l'efficacité de l'incinération des actinides. Plus vite la puissance convergera, plus vite le réacteur pourra détruire la production annuelle de déchets. Ce paramètre intervient aussi dans le dimensionnement des échangeurs ce qui impose des contraintes quant à sa plage de variation lors de la convergence. Typiquement, la puissance ne peut excéder celle de l'équilibre ;
2. le **bilan neutronique**, il traduit la convergence de la composition isotopique ainsi que la possibilité du cœur de maintenir la réaction nucléaire. Ici encore, les fluctuations de D sont limitées. Alors qu'un bilan transitoirement très excédentaire en neutrons peut être maîtrisé par des poisons neutroniques, une consommation excessive de neutrons suppose des chutes de réactivité (qui auront des conséquences sur les distributions spatiales de diverses grandeurs comme la puissance volumique) et une réserve de puissance au niveau de l'accélérateur afin de combler le déficit en neutrons. Il demeure quelques moyens pour compenser ces pertes transitoires de neutrons : ne mettre les PFVL qu'une fois la convergence atteinte ou réduire la teneur des PF, toujours dans l'optique de dégager des marges ;
3. la **masse**, reliée à la concentration d'actinides dans le cœur. Les variations de celle-ci n'ont pas des conséquences aussi directement accessibles que les deux paramètres ci-dessus. Citons simplement deux problèmes. Le premier, trivial, est la limite de dissolution des actinides dans un sel. Le second : lorsque la concentration diminue (à volume de cœur constant), la proportion de captures parasites va augmenter. Nous n'aurons éventuellement plus 0,3 neutrons par fission, mais plus, d'où des conséquences sur le bilan neutronique, entraînant les mêmes mécanismes qu'une consommation momentanément trop importante de neutrons. Par ailleurs, ceci peut avoir un effet bénéfique en spectre thermique puisque une concentration moins importante implique une meilleure thermalisation.

Nous allons donc regarder la convergence de ces paramètres en fonction de chaque spectre pour deux scénarios : cycle ouvert et multirecyclage MOX.

6.2.1 Le spectre thermique

6.2.1.1 Cycle ouvert

Considérons un réacteur vierge sans actinides. Le chargement progressif du cœur amène la modification de la composition isotopique du mélange, de la puissance, ... En nous plaçant à flux constant, celui-ci étant supposé maintenu par l'accélérateur et la réactivité du milieu, nous pouvons étudier la convergence des trois paramètres cités ci-dessus. La figure 6.14 donne les variations de ces paramètres en fonction du temps et pour différents flux.

Les premières constatations évidentes sont bien sûr une puissance à l'équilibre identique pour tous les flux, car elle correspond à la fission complète des déchets, une masse variant comme l'inverse du flux et un bilan neutronique d'équilibre s'améliorant avec le flux. Par ailleurs, nous reconnaissons les transitions si caractéristiques du spectre thermique, à la fois sur le bilan neutronique et sur la puissance. Ce pic, pour D et les ruptures de pente de la puissance traduisent l'impact croissant du curium au fur et à mesure de son accumulation, avant que

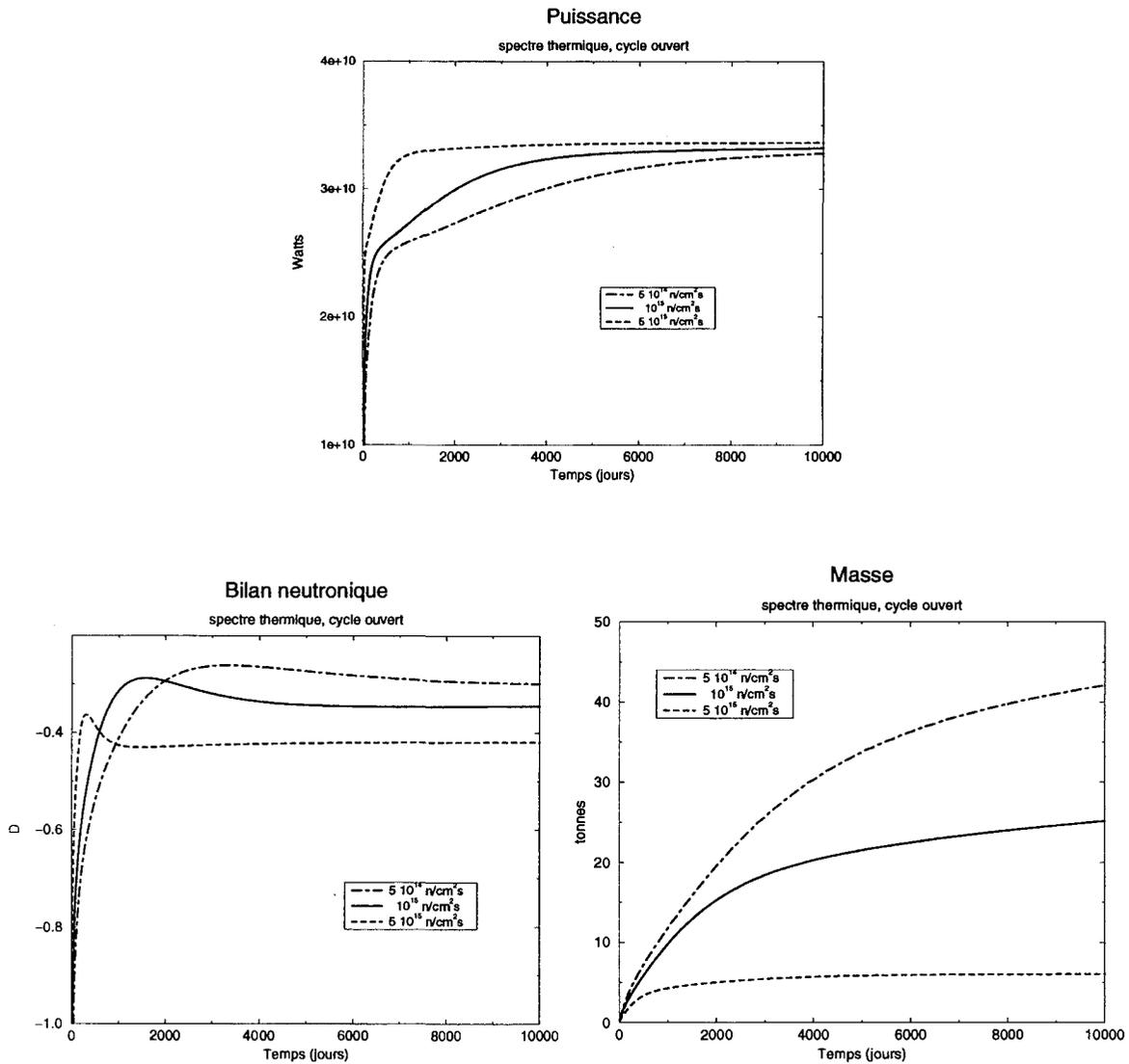


FIG. 6.14: Dynamique de convergence en spectre thermique pour les déchets du cycle ouvert. La puissance et le bilan neutronique atteignent en quelques années leurs valeurs asymptotiques, d'autant plus rapidement que le flux est élevé. Les particularismes du spectre thermique avec l'importance du ^{244}Cm sont visibles. Seule la masse converge en quelques dizaines d'années.

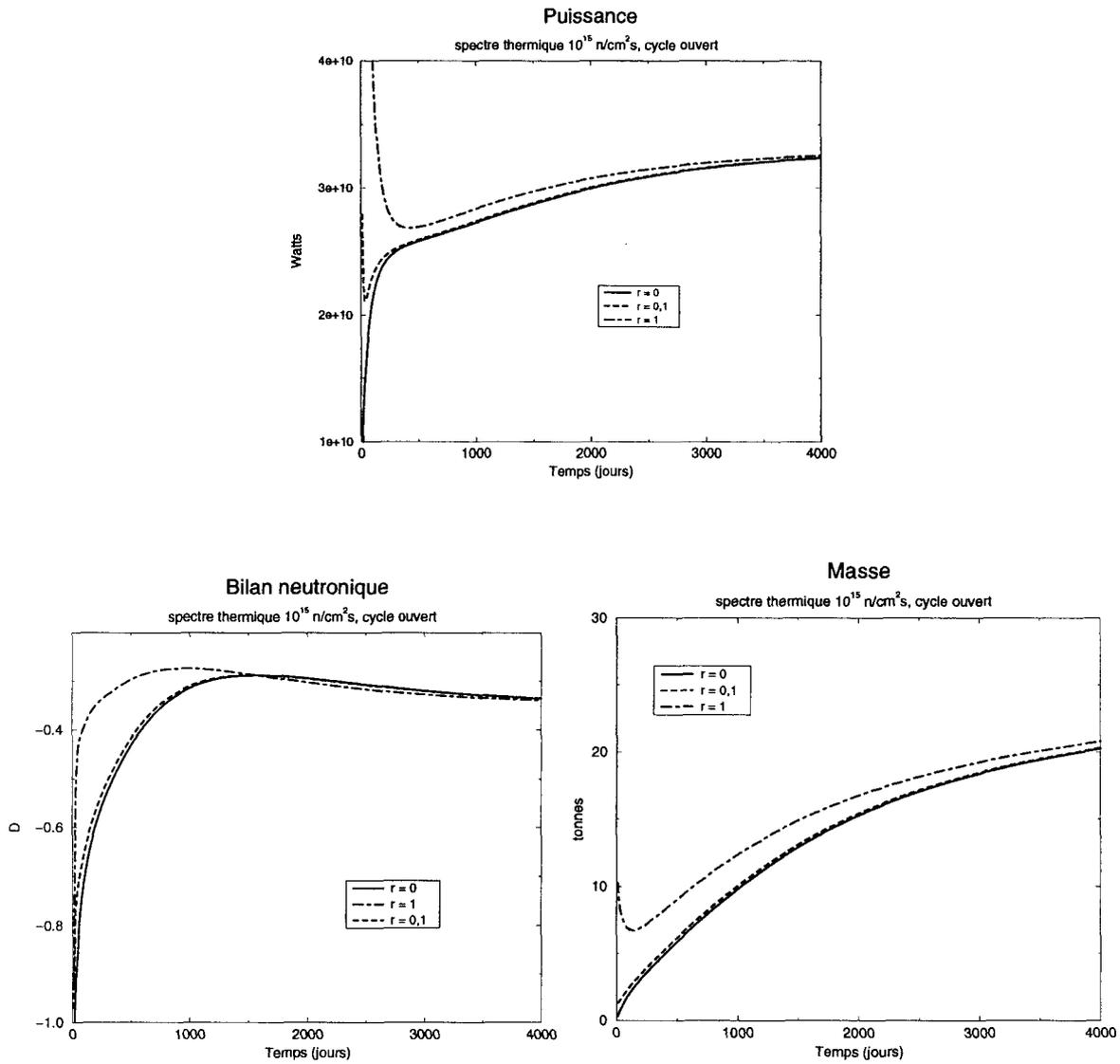


FIG. 6.15: Augmenter la masse initiale d'actinides en cœur permet d'améliorer la convergence, mais cette augmentation est limitée à de très faibles valeurs par la puissance en début d'irradiation et l'effet est alors relativement faible. La baisse de puissance associée laisse présager d'une convergence encore meilleure pour un chargement fonction du temps.

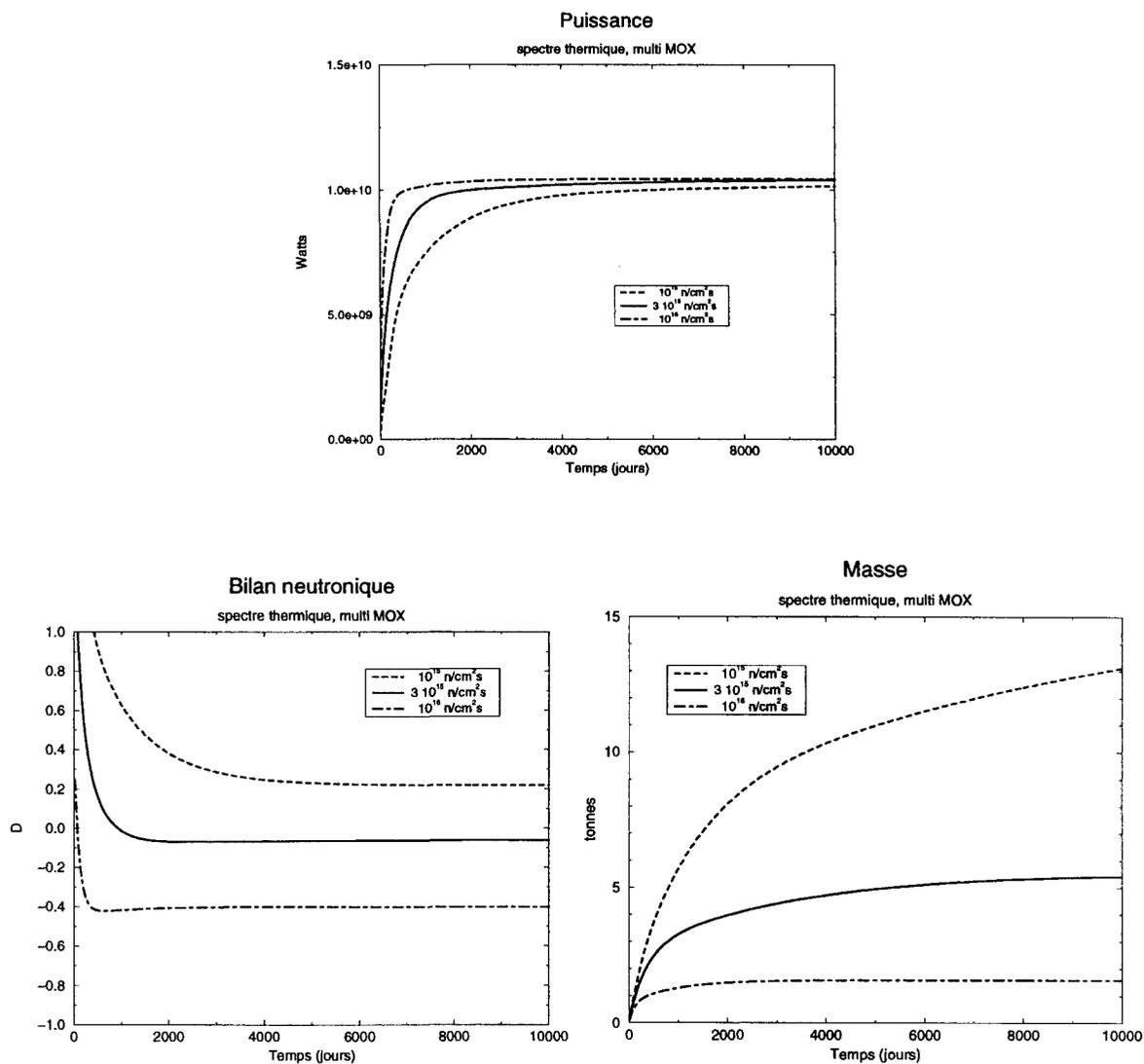


FIG. 6.16: La dynamique de convergence des déchets du multirecyclage en spectre thermique montre le même comportement qu'avec le cycle ouvert. Ici encore, le chargement initial n'a qu'un effet limité sauf à le considérer fonction du temps. Par ailleurs, la baisse du bilan neutronique, $\Delta D = 1,6$, impose la présence d'un isotope fissile pour démarrer les réactions nucléaires.

neutrons par fission et ne peut donc en aucun cas être compensée par les moyens évoqués ci-dessus. La seule possibilité est d'incorporer un isotope fissile aux déchets lors des premiers chargements, comme du plutonium militaire.

Par ailleurs, l'influence du chargement initial se fait dans les mêmes conditions que le cycle ouvert : la limite de puissance en début d'irradiation impose $r < 0,35$ et l'impact sur le bilan neutronique et la masse est faible. La variation de puissance diminue au début avant de suivre l'évolution "normale" sans chargement initial, comme pour le cycle ouvert.

6.2.2 Le spectre rapide

Nous avons vu que la convergence était relativement rapide en spectre thermique, le transitoire étant d'autant plus court que le flux est élevé et qu'il ne fallait pas de chargement initial. Qu'en est-il en spectre rapide ?

6.2.2.1 Le cycle ouvert

Les résultats pour le cycle ouvert en spectre rapide sont donnés figure 6.17. On constate que tous les paramètres augmentent continuellement avec le temps d'irradiation, ce qui diffère du spectre thermique en ce qui concerne la consommation de neutrons. L'explication provient toujours de la plus grande homogénéité des sections efficaces en spectre rapide. Nous remarquons aussi que la vitesse de convergence augmente avec le flux, mais que celle-ci est assez lente pour des flux inférieurs à $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s. Pour ce dernier, il faut plus de 30 ans avant d'atteindre l'équilibre en puissance et en masse.

Or, les schémas d'incinération à l'équilibre donnaient pour un réacteur optimisé à l'équilibre, des flux nettement plus faibles pour lesquels les temps de convergence sont tels que le transitoire a plus d'importance que l'équilibre. Se présentent alors les deux solutions habituelles : (i) construire un réacteur non optimisé dont le bilan neutronique, d'un point de vue usage des neutrons, est très mauvais et (ii) modifier le chargement initial pour améliorer la convergence.

Modifier le rapport entre le chargement initial et le chargement annuel conduit aux mêmes constatations qu'en spectre thermique (cf. figure 6.18). Commencer en début de vie des réacteurs avec 5 fois le chargement annuel ($r = 5$), soit 66 tonnes d'actinides, permet de maintenir la puissance à 15% de sa valeur d'équilibre pendant l'ensemble du transitoire et le bilan neutronique converge en quelques années. Seule la masse met toujours plus de 30 ans pour atteindre sa valeur d'équilibre (la valeur initial est de 30% inférieure à la masse d'équilibre). Les conséquences se traduisent alors sur la concentration du combustible. Les transitoires observés sont voisins pour les deux spectres, si ce n'est la diminution de la masse en spectre thermique qui n'a pas lieu ici.

Finalement, comme pour le spectre thermique, la solution d'un chargement fonction du temps pourrait permettre de raccourcir encore le temps de convergence, essentiellement celui de la masse. En effet, le chargement annuel n'est pas suffisant pour éviter la baisse de puissance pendant les cinq premières années.

6.2.2.2 Le multirecyclage MOX

Pour l'incinération des déchets issus du multirecyclage MOX, dont les résultats sont donnés figure 6.19, nous observons, outre que les temps de convergence dépendent du flux, que le

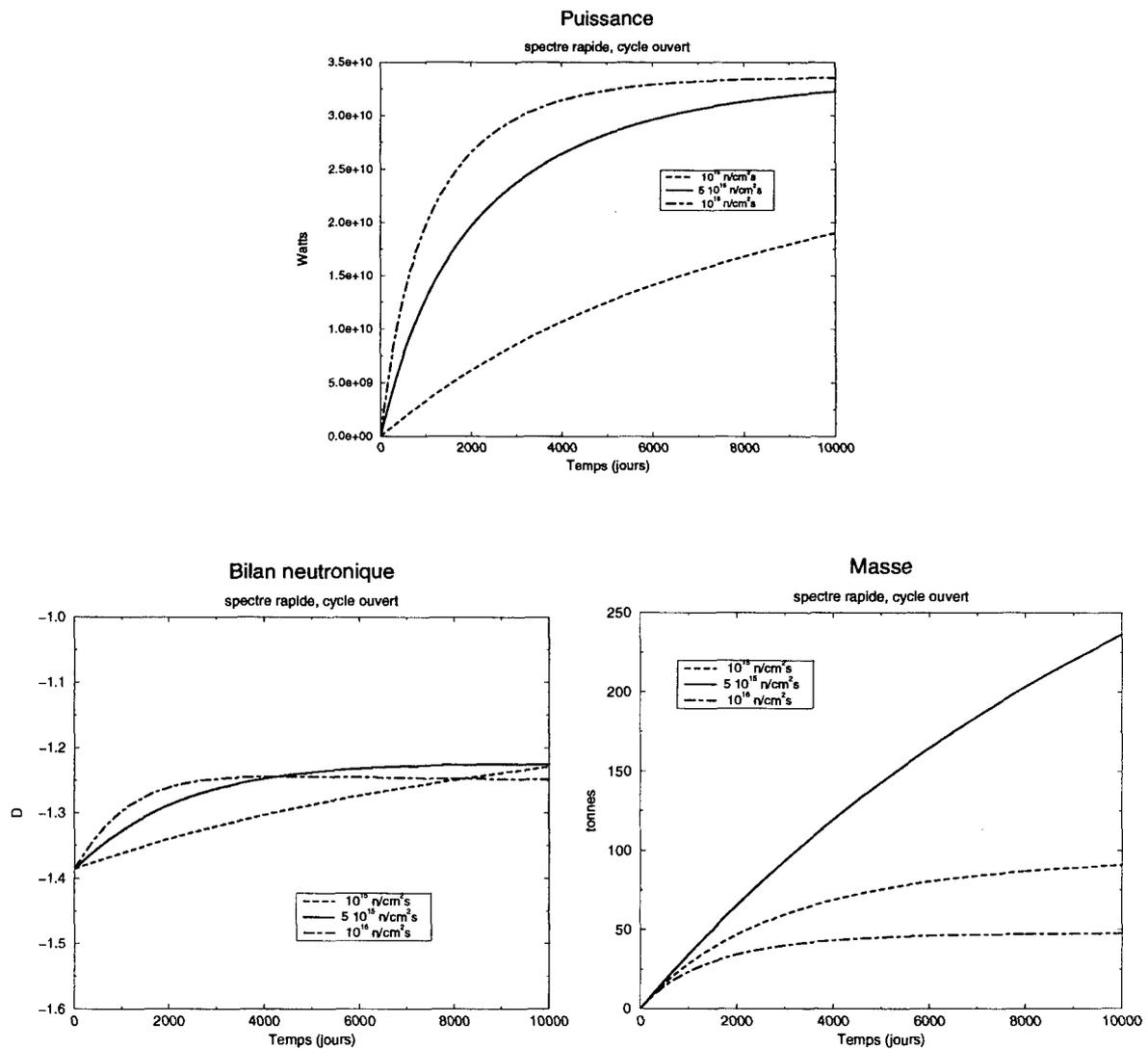


FIG. 6.17: La convergence en spectre rapide est plus lente et des délais raisonnables supposent un flux élevé au prix d'un réacteur qui ne soit pas optimisé comme un réacteur industriel.

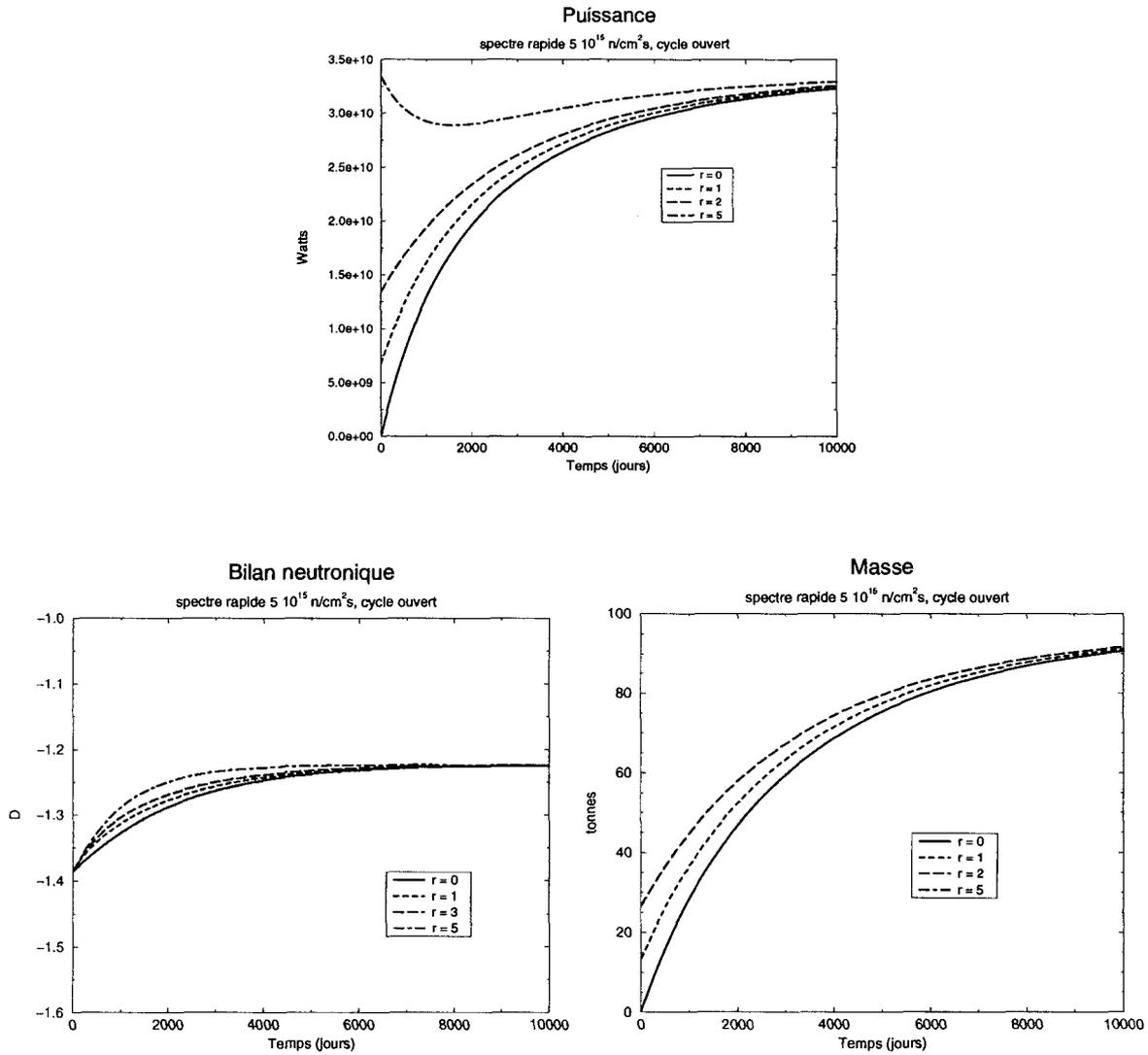


FIG. 6.18: A l'inverse du spectre thermique, le chargement initial a ici une importance déterminante puisqu'il permet d'améliorer la convergence de l'ensemble des paramètres. Il constitue près de 70% de la masse à l'équilibre pour un flux de $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2$.

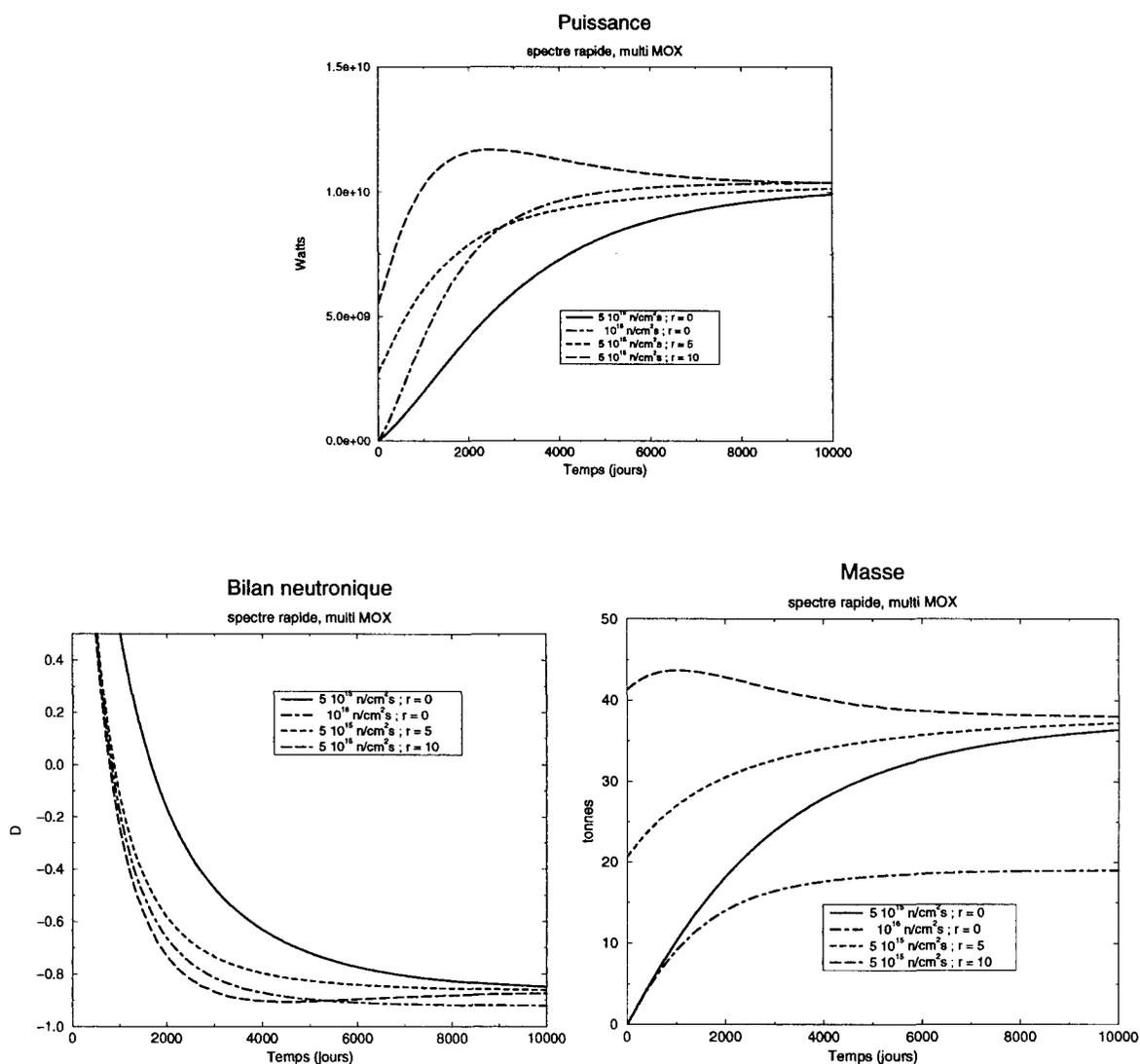


FIG. 6.19: Le multirecyclage MOX en spectre rapide présente les mêmes inconvénients qu'en spectre thermique vis-à-vis du bilan neutronique, sans bénéficier des avantages d'un chargement initial important mis en évidence avec le cycle ouvert.

système met plus de 30 ans pour atteindre l'équilibre à $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s, soit dans les mêmes délais que le cycle ouvert.

La solution préconisée pour les cas précédents présente une particularité dans ce cas précis : si le chargement initial est trop important, la puissance et la masse augmentent au dessus des valeurs asymptotiques avant de diminuer et le bilan neutronique devient momentanément plus favorable qu'à l'équilibre. La présence d'une grande quantité de déchets fertiles explique ces transitoires : la production d'isotopes fissiles et leur fission demandent un délai à cause des sections efficaces faibles du spectre rapide. Ceci limite le chargement initial à $r = 5$.

Ce procédé améliore la convergence mais les gains ne sont pas aussi importants qu'avec le cycle ouvert et un chargement fonction du temps, possible avec un sel fondu, est nécessaire si l'on souhaite atteindre l'équilibre en une dizaine d'années tout au plus.

Remarquons aussi que la dégradation du bilan neutronique est très importante : $\Delta D \approx 3,5$. L'ajout de plutonium fissile pendant les premières années est donc une nécessité, ce qui va modifier la distribution temporelle de puissance et donc limiter le chargement initial, retardant à son tour la convergence.

L'incinération du multirecyclage MOX en spectre rapide semble conduire à des problèmes spécifiques qui ne permettent pas d'envisager une convergence dans des délais raisonnables. La seule solution serait de partir d'un combustible ayant une composition isotopique proche de l'équilibre, mais ceci suppose des séparations isotopiques pour des dizaines de tonnes d'actinides, donc difficilement envisageables.

L'analyse des rythmes de convergence fait ressortir plusieurs points :

- les temps de mise à l'équilibre peuvent, moyennant une stratégie de chargement adéquate, être réduits à moins d'une dizaine d'années en spectre thermique et en rapide. Le premier, à cause de ses sections efficaces plus élevées, convergera légèrement plus rapidement. Seul le multirecyclage MOX en spectre rapide sort de ce cadre ;
- la convergence en masse est l'élément le plus délicat et, bien qu'il ne se répercute que sur la concentration des actinides, son impact est, à ce stade, difficilement quantifiable ;
- plus le flux augmente, plus la convergence est rapide. Ce critère permet donc de faire un choix sur les flux en spectre rapide et les flux élevés seront préférés au prix d'un réacteur moins optimisés neutroniquement ;
- les stratégies de chargement sont spécifiques pour les deux spectres. Alors que le spectre thermique s'accommode d'un chargement initial minimal ($r = 0,1$) n'ayant d'impact que sur la puissance, le spectre rapide nécessite au début de l'irradiation la présence d'une fraction importante de sa masse d'équilibre ($r = 5$, soit $\approx 70\%$ de l'inventaire final¹⁰), ce qui se traduit par des améliorations de convergence de l'ensemble des paramètres.

Nous sommes maintenant en mesure de mieux apprécier les limites de l'étude à l'équilibre, qui semble pertinente pour la plupart des scénarios. Il nous faut donc poursuivre sur la caractérisation complète des réacteurs hybrides.

10. Les valeurs de r ne sont pas directement comparables car les flux diffèrent d'un facteur 5 entre les deux spectres.

6.3 Images de cœurs

L'étude du bilan neutronique, en supposant les pertes dues aux fuites et aux matériaux de structure identiques à celles des réacteurs de puissance, a fait ressortir des schémas d'incinérateurs à haut flux en thermique et à bas flux en rapide. Il convient maintenant de calculer plus précisément les cœurs en utilisant le modèle sphérique développé section 3.4. Ceci doit nous permettre d'apprécier les concentrations d'actinides et donc de déterminer les conditions d'application des hypothèses de spectre neutronique.

Le modèle sphérique à un groupe repose sur la résolution analytique de l'équation de diffusion dans un cœur à trois zones : une cible de spallation, un massif sous-critique contenant les actinides et un réflecteur. Les paramètres indépendants sont le flux ϕ_0 , le taux d'incinération, la quantité de produits de fission à vie longue, l'intensité et le nombre d'unités. La seule variable libre, le rayon, est déterminée par une équation implicite imposant que le flux moyen calculé soit égal au flux de départ ϕ_0 . Nous accédons ainsi à la concentration et à la distribution spatiale de la puissance. Il reste quelques paramètres ajustables comme le rayon de la cible de spallation et l'albédo du réflecteur sur lesquels nous reviendrons brièvement.

Rappelons rapidement la démarche logique qui nous a permis de quantifier l'incinération des déchets. Dans un modèle de retraitement en continu, la composition isotopique des actinides atteint un équilibre caractérisé par un inventaire radiotoxique, un inventaire massique et un bilan neutronique. Imposer une limite à la radiotoxicité des déchets du retraitement fixe une masse maximale des pertes, donnant à son tour la teneur minimale en produits de fission dans le cœur pour une efficacité chimique donnée. En effet, plus le taux d'incinération est faible, plus le nombre de retraitements est grand, plus les pertes sont élevées. Cet arbitrage sur l'inventaire radiotoxique conditionne donc l'un des cinq paramètres du modèle : le burn-up.

Le bilan neutronique doit alors être réévalué pour tenir compte de ces produits de fission issus des actinides. La marge neutronique restante se répartit entre les PFVL et les pertes par fuites et par captures parasites. Une hypothèse sur ces dernières permet de déduire le flux minimal de fonctionnement du réacteur puisque le bilan neutronique s'améliore avec le flux.

Nous pouvons donc reprendre l'étude des schémas d'incinération pour les différents scénarios afin de préciser les caractéristiques des réacteurs.

6.3.1 Spectre thermique

Le spectre neutronique de référence a été calculé sur la base d'un massif de graphite contenant du ^{239}Pu pour maintenir la sous-criticité à 0,95. Le mélange d'actinides et de produits de fission calculé à l'équilibre est donc dilué dans la deuxième couche du modèle sphérique. Nous avons préféré à ce stade nous contenter d'une étude avec du graphite plutôt qu'un mélange graphite - sel fondu car : (i) la proportion relative de graphite et de sel dépend des conditions de thermalisation donc de la concentration d'actinides, dont nous ne disposons pas encore et (ii) la nature du sel reste encore à déterminer.

Cette approximation va nous permettre de tracer les grandes lignes (quel spectre pour quels déchets) et les caractéristiques principales des incinérateurs. Il conviendra alors de préciser la configuration exacte au voisinage de ces solutions potentielles.

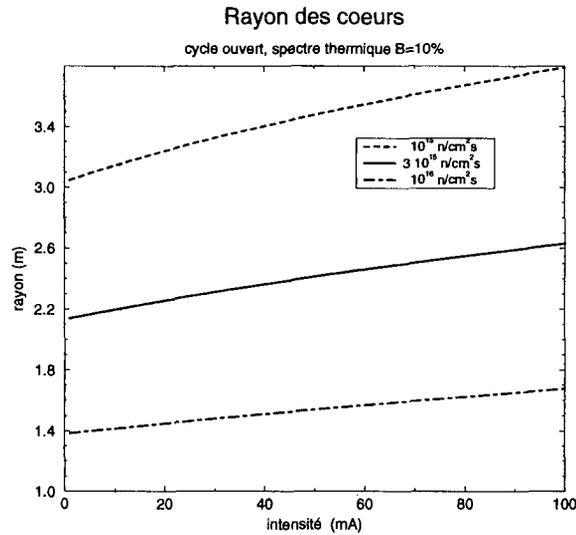


FIG. 6.20: Le flux et l'intensité ont des effets contraires sur la taille des coeurs. Quand le flux augmente le rayon diminue, alors qu'il augmente pour une intensité plus élevée. Il s'agit ici des incinérateurs à spectre thermique adaptés à la transmutation des déchets du cycle ouvert, avec un taux d'incinération de 10%.

6.3.1.1 Le cycle ouvert

Notre analyse succincte du bilan neutronique a mis en évidence une solution intéressante pour l'incinération des déchets du cycle ouvert. Il s'agit d'un parc d'incinérateurs ayant un flux de $2 \cdot 10^{15}$ n/cm²s avec une sous-criticité de 0,9 et des accélérateurs avec une intensité totale de 1,85 A. Ce parc détruit l'ensemble des actinides et les produits de fission à vie longue. Les pertes sont à hauteur de 120 kg par an, permettant de rejoindre le niveau de l'uranium naturel après 200 ans de stockage.

Malheureusement, les contraintes technologiques que nous imposons (cf. section 2.3.3), dans ce cas le nombre d'unités ($n < 10$) et l'intensité de l'accélérateur de chaque réacteur ($I < 100$ mA), ne permettent pas de retenir cette solution. Il faudrait rechercher un flux plus élevé pour améliorer le bilan neutronique. Nous avons montré qu'il faudrait des flux supérieurs à $5 \cdot 10^{16}$ n/cm²s, nettement supérieurs aux possibilités techniques actuellement disponibles. Il faut tout de même étudier l'incinération des actinides seuls.

Les contraintes Nous allons passer en revue les principales contraintes pour examiner les limites qu'elles imposent sur les paramètres de base de la démarche: le flux, l'intensité et le nombre d'unités¹¹. Remarquons avant tout que la contrainte sur la puissance totale d'un incinérateur ($\mathcal{P}_{th} < 4,5 \text{ GW}_{th}$) nous conduit à envisager 8, 9 ou 10 unités uniquement.

Examinons tout d'abord un parc d'incinérateurs de 10 réacteurs. Nous prenons comme cas de référence une cible de spallation de 20 cm de rayon et un réflecteur avec un albédo de 0,95. Les contraintes sur les dpa et sur le facteur de forme sont levées compte-tenu du combustible liquide.

La première contrainte est le rayon du cœur. Sa variation en fonction de l'intensité et du flux

11. Le taux d'incinération et la quantité de PFVL à détruire sont déjà déterminés.

est illustrée figure 6.20. Nous remarquons, comme nous l'avons déjà indiqué (cf. section 3.4.4), que le rayon augmente avec l'intensité. Ceci se conçoit assez facilement en explicitant la moyenne du flux sur le cœur : si le flux est plus élevé proche de la cible de spallation, en raison de la plus forte intensité, il est nécessaire d'inclure des zones à plus faibles flux, donc d'étendre le cœur, afin de maintenir un flux moyen constant (cf. expression 3.74).

Le même raisonnement permet de comprendre pourquoi travailler à un flux plus élevé conduit à des rayons plus faibles. Pour une intensité de 40 mA par unité, on passe progressivement de 3,40 m à 2,36 m puis 1,51 m lorsque le flux moyen est pris égal à $\phi_0 = 10^{15}$, $3 \cdot 10^{15}$ et 10^{16} n/cm²s respectivement. En imposant une taille maximale de 3 mètres aux cœurs, nous en déduisons une relation entre le flux et l'intensité. Nous y reviendrons plus en détail, mais notons que les flux neutroniques nécessaires pour vérifier la condition $R < 3$ mètres sont supérieurs à 10^{15} n/cm²s.

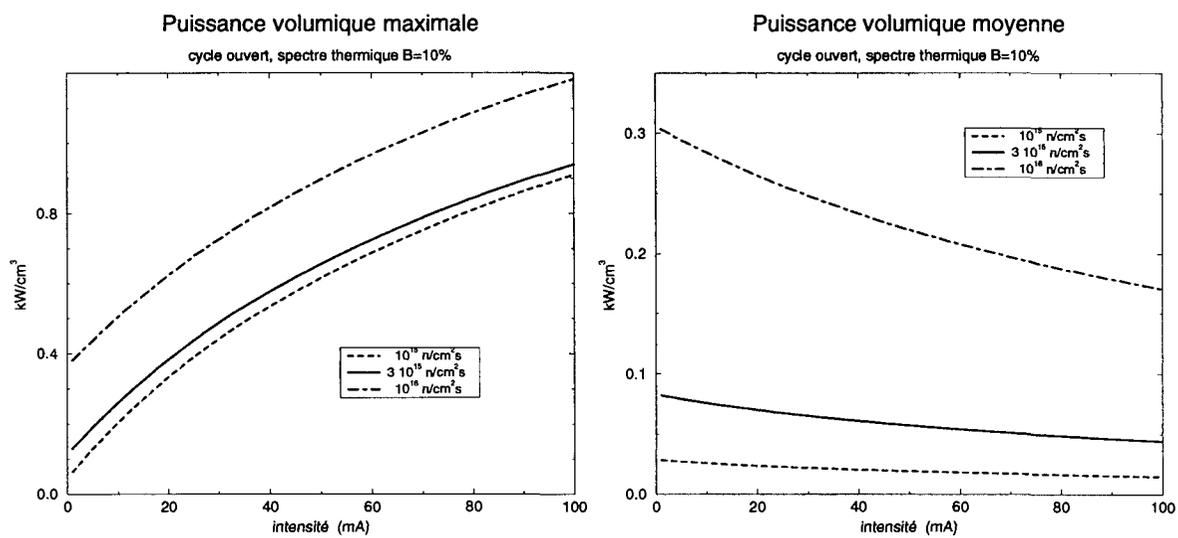


FIG. 6.21: Alors que la puissance volumique moyenne décroît quand l'intensité augmente, n'imposant par là pas de contrainte forte sur le dimensionnement sauf à très haut flux, la puissance volumique maximale augmente avec l'intensité et le flux. Plus l'intensité est élevée, plus le flux doit être faible pour maintenir la puissance volumique en deçà d'une limite donnée.

La deuxième contrainte concerne la distribution de puissance : la puissance volumique maximale ($p_{max} < 800$ W/cm³) et la puissance volumique moyenne ($p_{moy} < 500$ W/cm³). Les variations de ces deux paramètres en fonction de l'intensité et du flux sont indiquées figure 6.21. La puissance volumique maximale est proportionnelle au produit de la concentration des actinides et du flux à la frontière cible de spallation - cœur sous-critique¹². Quand l'intensité augmente, la concentration diminue comme nous l'avons vu (le rayon augmente), mais le flux ponctuel augmente. On constate que dans la gamme d'intensités qui nous intéresse, la résultante de ce produit est une fonction croissante¹³. Par ailleurs, une augmentation du flux moyen conduit

12. La puissance volumique est en fait le produit de la section efficace moyenne de fission, de la concentration, du flux et de l'énergie libérée par fission. Parmi ces paramètres, seulement deux varient de manière importante : la concentration et le flux, d'où l'abus de langage pour se concentrer sur les phénomènes essentiels.

13. Si l'intensité augmente encore, la puissance volumique maximale finit par diminuer. En effet, la diminution de concentration, qui varie en $1/R^3$, l'emporte sur la hausse du flux, proportionnelle à l'intensité.

à une hausse de la puissance volumique. Pour chaque flux nous disposons donc d'une intensité maximale correspondant à cette contrainte. Notons que cette contrainte nous amène à une relation décroissante entre l'intensité maximale et le flux maximal, qui doit se combiner avec la relation croissante obtenue grâce à la contrainte sur le rayon pour délimiter un domaine de possibilités.

La puissance moyenne décroît quand l'intensité augmente ou quand le flux moyen diminue. En effet, la première variation provient du fait que la puissance moyenne est le produit de la concentration par le flux moyen et une intensité plus élevée entraîne une baisse de la concentration, alors que le flux moyen est, dans notre démarche, constant. Pour la deuxième, il faut tenir compte de la variation de la concentration en fonction du flux. Nous y reviendrons. Notons que ces courbes permettent de répondre en partie à l'alternative évoquée dans le modèle des flux de matières sur l'influence d'une augmentation du flux (cf. section 3.3.2.3) : volume constant ou concentration constante ? Enfin, les valeurs obtenues pour la puissance volumique moyenne sont loin des contraintes technologiques que nous nous imposons. D'où des facteurs de forme, p_{max}/p_{moy} , très importants et croissants avec l'intensité, ce qui est directement relié à l'augmentation concomitante de la sous-criticité.

La troisième contrainte concerne la sous-criticité de l'incinérateur : $k_{eff} \leq 0,98$. Nous imposons que la marge de sécurité soit suffisante pour pallier tous les problèmes de neutrons retardés, manque de contre-réactions ... La marge correspondante n'est pas encore entièrement caractérisée, mais la valeur de 0,98 doit permettre d'obtenir des ordres de grandeur significatifs. En raison de la relation entre la puissance de chaque incinérateur, l'intensité et la sous-criticité (cf. expression 3.44), ceci conduit à une limite inférieure pour l'intensité de l'accélérateur. Cette limite se calcule avec le modèle sphérique afin de tenir compte de l'importance ϕ^* de la source (cf. formule 3.44).

L'ensemble de ces contraintes conduit à un domaine autorisé dans l'espace (ϕ_0, I) représenté figure 6.22. La taille des cœurs nous donne une limite inférieure pour le flux et la sous-criticité une limite inférieure pour l'intensité. La puissance volumique maximale ferme le domaine. Cette région du plan permet de caractériser le parc d'incinérateurs moyennant des arbitrages pour choisir entre toutes les solutions du domaine¹⁴. Par ailleurs, un choix différent du niveau de chaque contrainte modifiera la région du plan autorisée :

- une diminution du rayon maximal décale la courbe de contrainte vers la droite ;
- une augmentation de la sous-criticité déplace la courbe "contrainte k_{eff} " vers le haut ;
- une baisse de la puissance volumique maximale provoquera l'abaissement de la courbe "contrainte p_{max} " ;

Plus les contraintes sont sévères, plus le domaine autorisé se réduira. Notons que la contrainte sur la puissance volumique moyenne n'apparaît pas ici car les puissances sont toujours bien inférieures à la limite. Si cela n'était plus le cas, cette contrainte conduirait à une relation croissante entre l'intensité et le flux, comme la contrainte sur le rayon (cf. figure 6.21), mais la demi-plan que cela autorisera sera à gauche de la courbe et non à droite comme c'est le cas pour le rayon.

Cette analyse des contraintes montre quels parcs d'incinérateurs il est possible d'envisager compte-tenu des hypothèses de spectre. Il nous faudra bien évidemment revenir sur la cohérence

14. Un de ces arbitrages est bien évidemment la cohérence du schéma de calcul, nous y reviendrons.

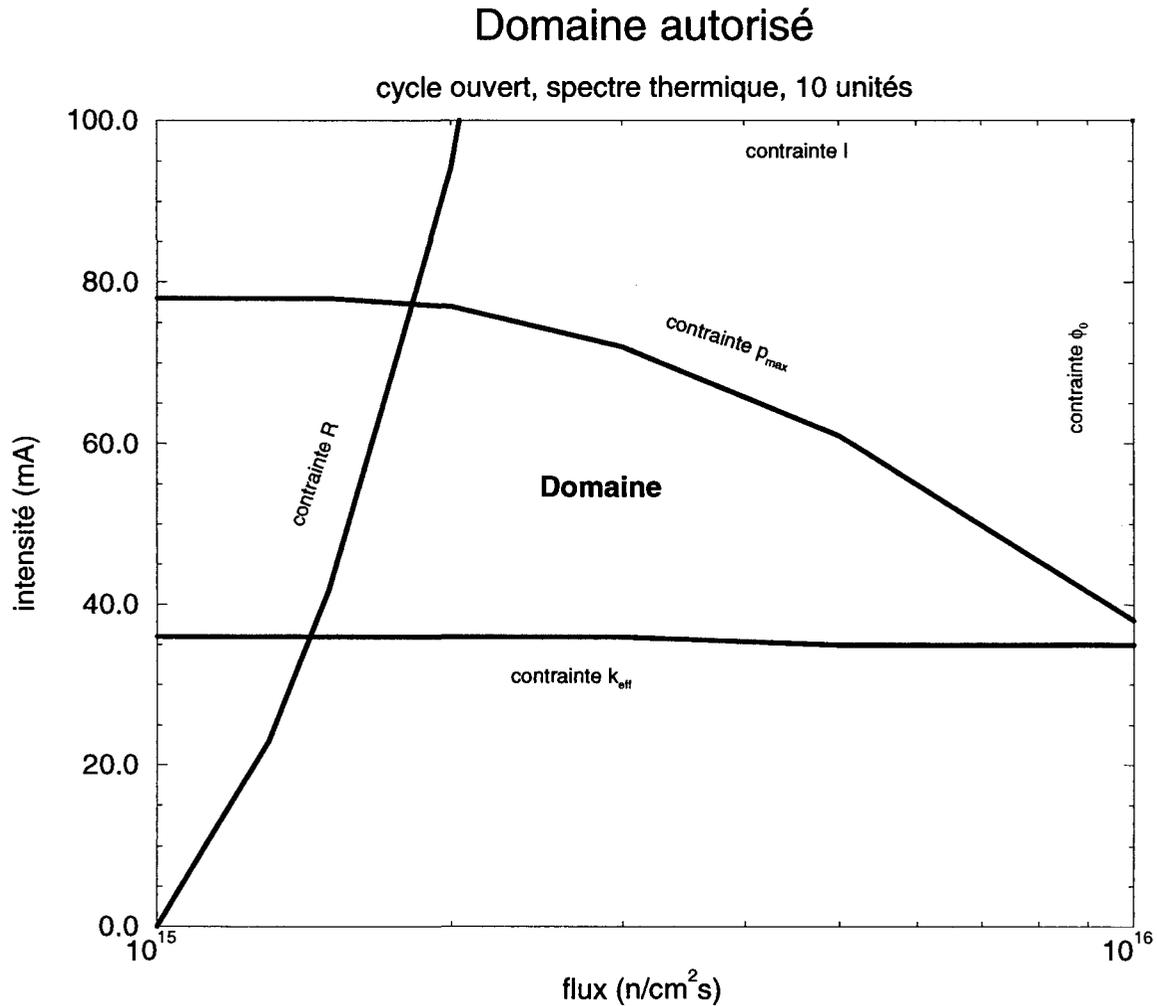


FIG. 6.22: Les huit contraintes principales permettent de délimiter un domaine du plan (ϕ_0, I) . Trois de ces contraintes n'apparaissent pas, la puissance par unité, le nombre maximal d'unités et la puissance moyenne, car soit elles sont incorporées dans la représentation - les deux premières -, soit elles n'ont aucune conséquence - la dernière. Ce domaine permet de déterminer le parc d'incinérateur, compte-tenu d'arbitrages stratégiques, qu'il convient de construire pour détruire les déchets du cycle ouvert avec un retour de l'inventaire radiotoxique au niveau de l'uranium naturel après 200 ans de stockage.

globale de notre schéma de calcul pour valider nos hypothèses. Le point essentiel réside dans le réalisme du spectre. Pour poursuivre, nous avons besoin de la concentration d'actinides dans le cœur afin d'évaluer les conditions exactes de thermalisation des neutrons.

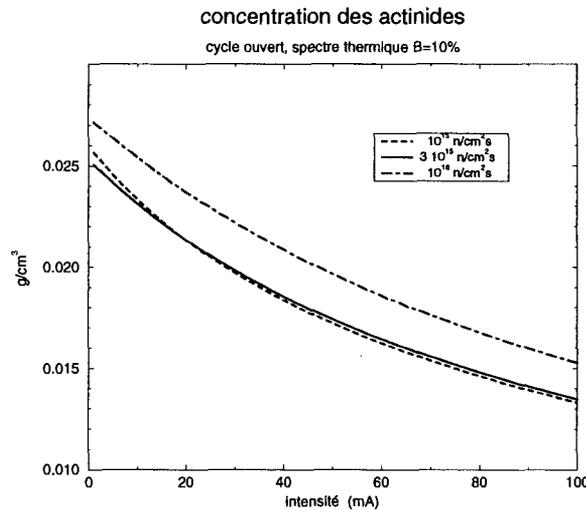


FIG. 6.23: La concentration des actinides dans le cœur décroît lorsque l'intensité ou le flux augmente. Les concentrations varient avec l'intensité entre 0,01 et 0,03 g/cm³ et d'au plus 15% avec le flux. Plus elle sera faible, meilleures seront les conditions de thermalisation. On privilégiera donc les solutions à haute intensité et faible flux du domaine autorisé.

La variation de la concentration des actinides en fonction du flux et de l'intensité est illustrée figure 6.23. Plus l'intensité est élevée plus la concentration diminue, conséquence de l'augmentation du rayon du cœur. Et la concentration augmente avec le flux. Dans ce cas, il s'agit d'un compromis entre la diminution de l'inventaire en actinides et la diminution du rayon afin de moyenner sur des volumes à haut flux. Les écarts entre les flux restent faibles : entre 5 et 15% d'écart pour les différents flux suivant l'intensité.

Nous n'exploiterons pas ces résultats ici car, d'une part, l'analyse sera générique à tous les scénarios et, d'autre part, les conclusions que nous pourrions en tirer nous entraîneraient trop loin de notre propos pour l'instant. Nous y reviendrons. Indiquons simplement que plus la concentration est faible, plus les conditions de thermalisation seront meilleures. Il est donc naturel de privilégier à ce stade les solutions à faible flux et haute intensité du domaine autorisé (intersection "contrainte p_{max} " – "contrainte R" sur la figure 6.22).

Influence de la taille de la source et de l'albédo Nous avons mis en évidence l'influence des différentes contraintes dans un cas de référence : 10 unités, cible de spallation de 20 cm de rayon et un albédo de 0,95. Etudions l'impact de ces deux derniers paramètres.

Construire une cible de spallation plus volumineuse permet de relâcher certaines contraintes de puissance. En effet, puisque les zones à très haut flux proches de la cible de spallation ne sont plus intégrées dans la moyenne, le rayon du cœur diminue afin de conserver un flux moyen constant. La puissance volumique maximale est plus faible et ce d'autant plus que la sous-criticité est importante : plus l'intensité est élevée, plus le flux est "piqué" au centre. La puissance volumique moyenne décroît aussi. Le coefficient de multiplication reste à peu près semblable, puisqu'il est presque entièrement déterminé par la sous-criticité, elle-même

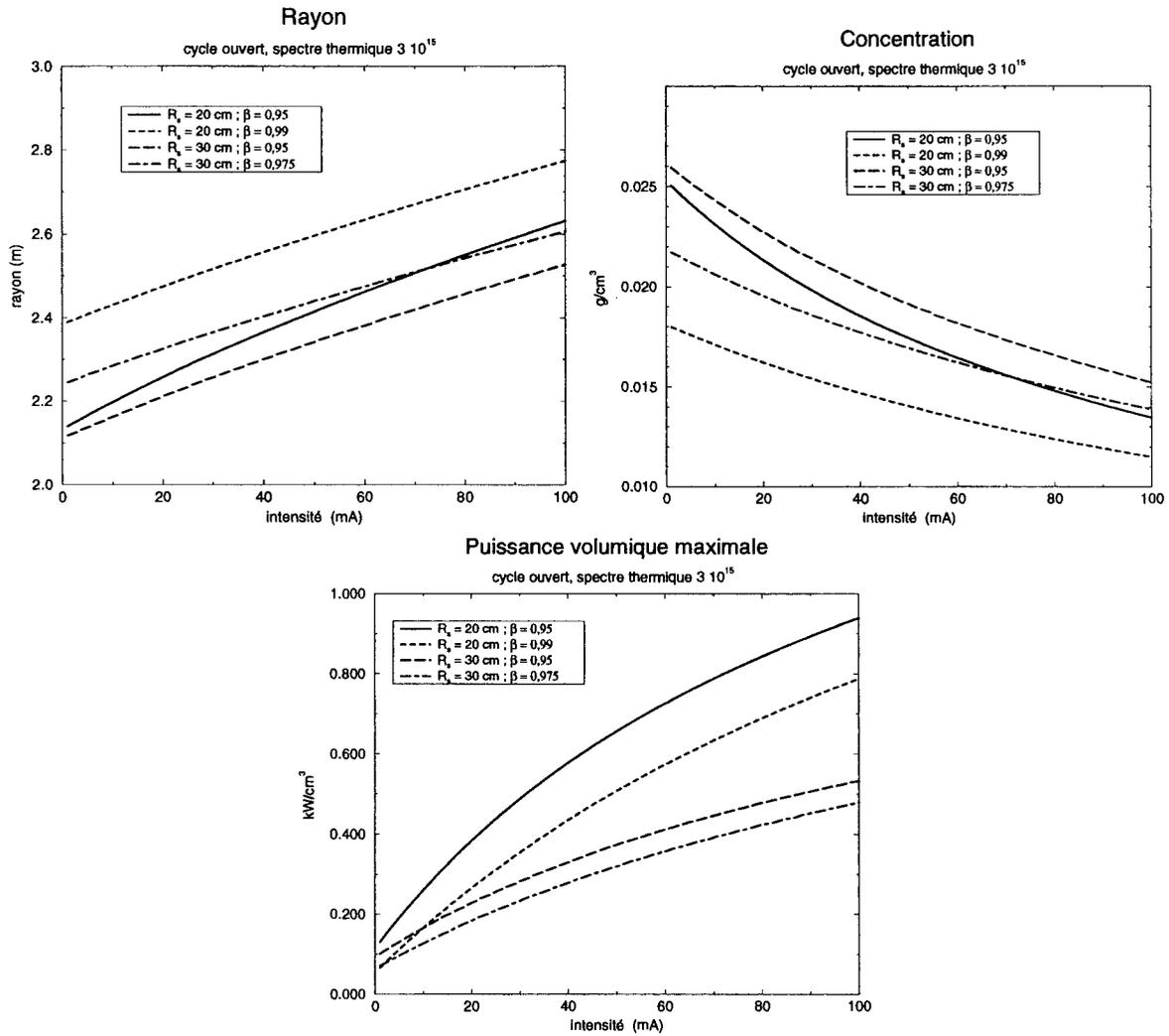


FIG. 6.24: Une cible de spallation plus étendue limite l'augmentation du rayon et de la puissance volumique maximale avec l'intensité, mais concentre davantage les actinides. A l'inverse, un meilleur réflecteur dilue les actinides en augmentant le rayon et abaisse aussi la puissance volumique. Pour retrouver les mêmes conditions de concentration tout en abaissant les paramètres de puissance, il faut à la fois étendre la source et améliorer le réflecteur. La solution $R_s = 30\text{ cm}$ et $\beta = 0,975$ a la même concentration que la solution de référence, pour 70 mA, tout en diminuant la puissance volumique maximale d'un facteur 2.

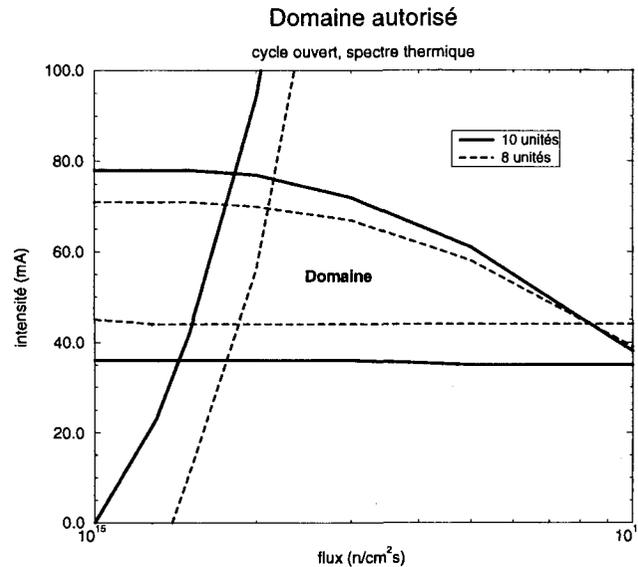


FIG. 6.25: Plus le nombre d'unités est limité, plus les contraintes sont importantes. La sous-criticité impose des intensités plus élevées, le rayon nécessite des flux plus importants et la puissance volumique maximale est dépassée si l'intensité et le flux ne sont pas diminués.

conditionnée par l'intensité. Enfin, seule la concentration varie dans le mauvais sens, puisqu'elle augmente quand la cible de spallation est étendue.

L'influence de la qualité du réflecteur est toute autre. Nous observons, pour un albédo supérieur à 0,95, cas de référence, une augmentation de la taille du cœur : toujours pour maintenir un flux moyen constant. La concentration diminue donc, entraînant une baisse de la puissance volumique moyenne et de la puissance volumique maximale.

Afin de tirer profit des baisses de puissance auxquelles ces paramètres conduisent sans dégrader le spectre (donc sans augmentation de concentration), il est possible d'augmenter simultanément la cible de spallation et l'albédo du réflecteur. Les variations que nous venons de mettre en évidence sont illustrées figure 6.24. Compte-tenu des valeurs industrielles de l'albédo [27], nous conserverons les valeurs de référence pour la suite de l'étude, mais ces remarques dégagent une piste possible pour l'amélioration des réacteurs hybrides à spectre thermique.

Cas d'un parc à 8 unités Nous avons étudié les différentes configurations en fonction de tous les paramètres, sauf le nombre d'unités. L'incinération des déchets du cycle ouvert, compte-tenu des contraintes de puissance totale et du nombre d'incinérateurs, peut se concevoir avec 8, 9 ou 10 unités. Examinons le passage de 10 à 8 réacteurs (cf. figure 6.25).

Première constatation : l'intensité minimale, due à la contrainte sur la sous-criticité, est plus élevée pour 8 unités. C'est la conséquence de la puissance plus importante de chaque installation (cf. formule 3.44). Les cœurs sont aussi plus grands à flux et intensité égaux. La courbe de la contrainte se déplace donc vers la droite : il faut soit augmenter le flux, soit diminuer l'intensité pour retrouver un cœur plus petit (cf. figure 6.20). La puissance volumique maximale est aussi plus importante dans les mêmes conditions, ce qui impose de diminuer soit le flux, soit l'intensité, d'où le décalage observé.

Notons que les concentrations obtenues sont voisines dans les deux cas, 10 ou 8 unités. On privilégiera toujours le coin supérieur gauche du domaine autorisé afin de diluer le plus possible

les actinides.

6.3.1.2 Le scénario MOX1

L'étude du cycle ouvert nous a permis de dégager une région de l'espace à 5 dimensions susceptible de remplir l'objectif d'incinération. De la même manière, nous pouvons examiner le scénario MOX1. La solution élaborée lors de notre description succincte du bilan neutronique correspond à un taux d'incinération de 8,8% et ne permettait pas la transmutation des PFVL. La contrainte sur la puissance de chaque unité nous amène à regarder les configurations ayant entre 5 et 10 incinérateurs.

L'analyse d'une configuration avec 10 unités indique que la transmutation des déchets issus du scénario MOX1 avec des réacteurs hybrides n'est pas acquise compte-tenu des contraintes imposées (cf. figure 6.26). En effet, la sous-criticité imposée nécessite des intensités supérieures à 26 mA, pour lesquelles la puissance volumique maximale est bien trop importante: il n'y a aucun domaine compatible pour toutes les contraintes. Notons que la contrainte sur le rayon est superflue ici.

Pour bien comprendre le mécanisme, revenons sur la relation entre le flux et l'intensité obtenue grâce à la contrainte sur la puissance volumique maximale. Dans le cas du cycle ouvert, nous avons mis en évidence une relation décroissante entre ces deux paramètres. Mais aucun argument physique ne permet de laisser penser que la relation est nécessairement de ce type. Premièrement, une augmentation d'intensité peut conduire soit à une hausse de la puissance volumique, soit à une baisse. La puissance maximale résulte du produit du flux $\phi(R_s)$, à l'interface cible de spallation – massif sous-critique, par la concentration. Le premier terme est proportionnel à l'intensité et le second à $1/R^3$, le rayon augmentant avec l'intensité. L'étude détaillée de ce produit montre que l'évolution en fonction de l'intensité de la puissance volumique maximale peut être croissante à faible intensité, mais est toujours décroissante à forte intensité. La valeur exacte de cette transition dépend de tous les autres paramètres. La courbe de la contrainte, représentée figures 6.22 et 6.26, possède donc une "image miroir" à très forte intensité.

Deuxièmement, l'influence du flux sur cette puissance volumique n'est pas monotone. Dans le cas du cycle ouvert, nous avons mis en évidence une relation croissante (cf. figure 6.21). Pour le scénario MOX1, la relation est d'abord décroissante puis croissante. Les explications sont à rechercher dans le bilan neutronique et l'inventaire à l'équilibre, mais aussi dans le niveau d'approximation de la démarche: les sections efficaces sont uniques et ne dépendent pas de la concentration (c'est l'objet de la cohérence que de vérifier la pertinence des solutions mises en évidence). Ceci conduit à une courbe en "cloche" (cf. figure 6.26). Pour 10 unités, son maximum est au voisinage de $3 \cdot 10^{15}$ n/cm²s et 21 mA, incompatible avec la contrainte de sous-criticité.

Troisièmement, nous avons constaté avec le cycle ouvert que la réduction du nombre d'unités rendait la contrainte de puissance volumique encore plus contraignante. Nous pouvons donc examiner les configurations à plus de 10 unités pour essayer de faire apparaître des solutions potentielles. La figure 6.26 donne l'évolution des différentes contraintes pour 10, 11, 12 et 13 unités. La première solution voit le jour pour une configuration à 12 unités: un flux de $3 \cdot 10^{15}$ n/cm²s et une intensité de 22 mA. La concentration en actinides est de 0,06 g/cm³. Plus le nombre d'unités est important, plus le nombre de solutions augmente: la contrainte de puissance volumique est plus souple (elle se décale vers le haut) et la contrainte de sous-criticité est allégée (la courbe se déplace vers le bas).

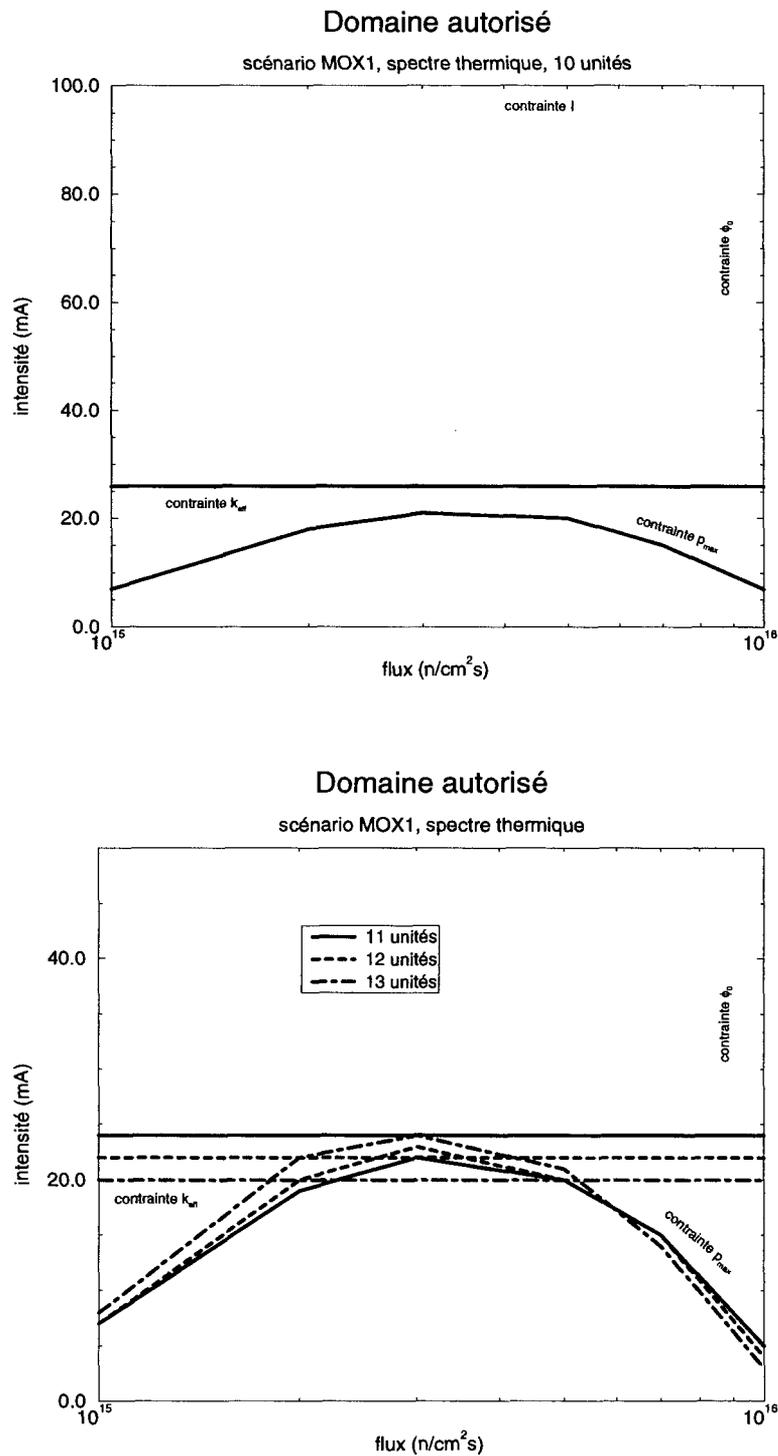


FIG. 6.26: L'incinération des déchets du scénario MOX1 n'est pas possible en spectre thermique avec seulement 10 unités : les contraintes de puissance volumique et de sous-criticité sont incompatibles. C'est uniquement au prix d'un nombre plus important de réacteurs qu'une solution devient envisageable, le minimum étant à 12 unités.

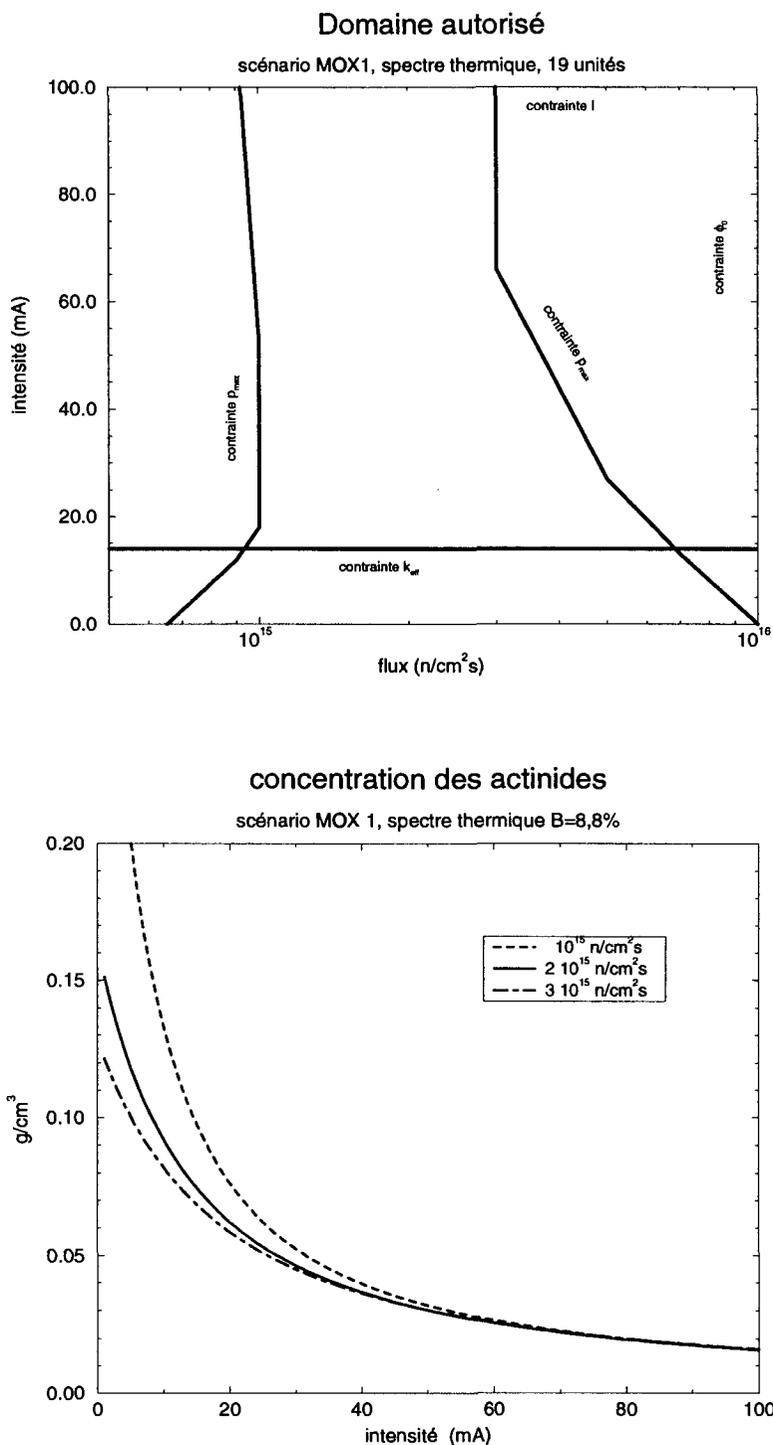


FIG. 6.27: En augmentant encore davantage le nombre de réacteurs, la contrainte de puissance volumique subit une transition : la courbe initiale se scinde en deux branches. C'est le résultat du rapprochement des deux contraintes miroirs. Il n'y a plus de limite supérieure à l'intensité du fait de la puissance volumique, car la dilution l'emporte sur la hausse du flux. Tout un domaine est alors envisageable, mais les concentrations d'actinides sont relativement élevées, sauf à très haute intensité.

Nous pouvons pousser encore un peu plus loin l'étude de cet impact du nombre d'unités. En effet, nous avons remarqué deux points importants : (i) augmenter le nombre d'unités translate la courbe de contrainte de puissance et (ii) cette courbe a une contrainte "miroir" à haute intensité. Il s'avère que cette deuxième courbe se déplace en sens inverse de la première. Ces courbes se rejoignent pour une configuration à 19 unités (cf. figure 6.27). La courbe de contrainte de la puissance s'est dissociée en deux branches. A faible intensité, nous reconnaissons les débuts de la courbe en cloche et, à haute intensité, nous rejoignons la contrainte "miroir". Ceci ouvre un domaine important, principalement au voisinage de 210^{15} n/cm²s et pour des intensités supérieures à 14 mA. Si on augmente encore le nombre d'unités, ce domaine autorisé s'agrandit : la contrainte de sous-criticité continue de diminuer et les deux branches de la contrainte de puissance se séparent encore plus. Notons que la transition observée s'opère effectivement pour 19 unités, car une configuration avec 18 réacteurs conduit aux mêmes courbes que celles obtenues pour 12 ou 13 incinérateurs (cf. figure 6.26).

Parmi les solutions potentielles de ce domaine, certaines ne seront pas pertinentes car les concentrations en actinides ne permettront pas de thermaliser les neutrons suffisamment. Cette analyse, que nous reportons (comme pour le cycle ouvert), nécessite la connaissance de la concentration. La figure 6.27 illustre ce paramètre pour différents flux. Nous y retrouvons la diminution de la concentration lorsque l'intensité augmente. Notons que les ordres de grandeur sont sensiblement supérieurs à ceux du cycle ouvert : les actinides sont 2 à 3 fois plus concentrés, sauf à très haute intensité. La condition d'auto-suffisance énergétique est toujours vérifiée pour 100 mA, la sous-criticité étant de 0,87. Il n'y a donc pas de contrainte supplémentaire.

Par ailleurs, la concentration diminue lorsque le flux augmente. Les solutions haute intensité et haut flux seront donc privilégiées pour assurer la meilleure thermalisation possible.

6.3.1.3 Le scénario MOX2

La puissance à dissiper lors de l'incinération des déchets du scénario MOX2 est de 18,8 GW_{th}. Les configurations auront de 5 à 10 unités. L'étude d'un parc avec 10 réacteurs indique plusieurs possibilités (cf. figure 6.28) pour des intensités comprises entre 20 et 25 mA, avec des flux de $3 \cdot 10^{15}$ à $7 \cdot 10^{15}$ n/cm²s. Seules les contraintes de puissance et de sous-criticité sont contraignantes. Ces résultats sont en tout point similaires à ceux du scénario MOX1, si ce n'est l'existence des solutions pour un nombre limité d'unités. On remarquera aussi que la courbe de la contrainte de puissance est décalée vers les flux élevés.

En diminuant progressivement le nombre d'incinérateurs, il apparaît une unique solution supplémentaire : 9 unités, avec un flux de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s et un accélérateur de 23 mA. Les paramètres essentiels de cette solution sont :

Paramètre	Solution
rayon	1,33 m
concentration	0,05 g/cm ³
puissance totale	2,1 GW _{th}
p_{max}	791 W/cm ³
p_{moy}	214 W/cm ³
k_{eff}	0,98
intensité	23 mA

Il est aussi possible d'étudier le mécanisme de transition mis en évidence avec le scénario MOX1. Le basculement s'opère pour une configuration avec 15 unités (cf. figure 6.28). La

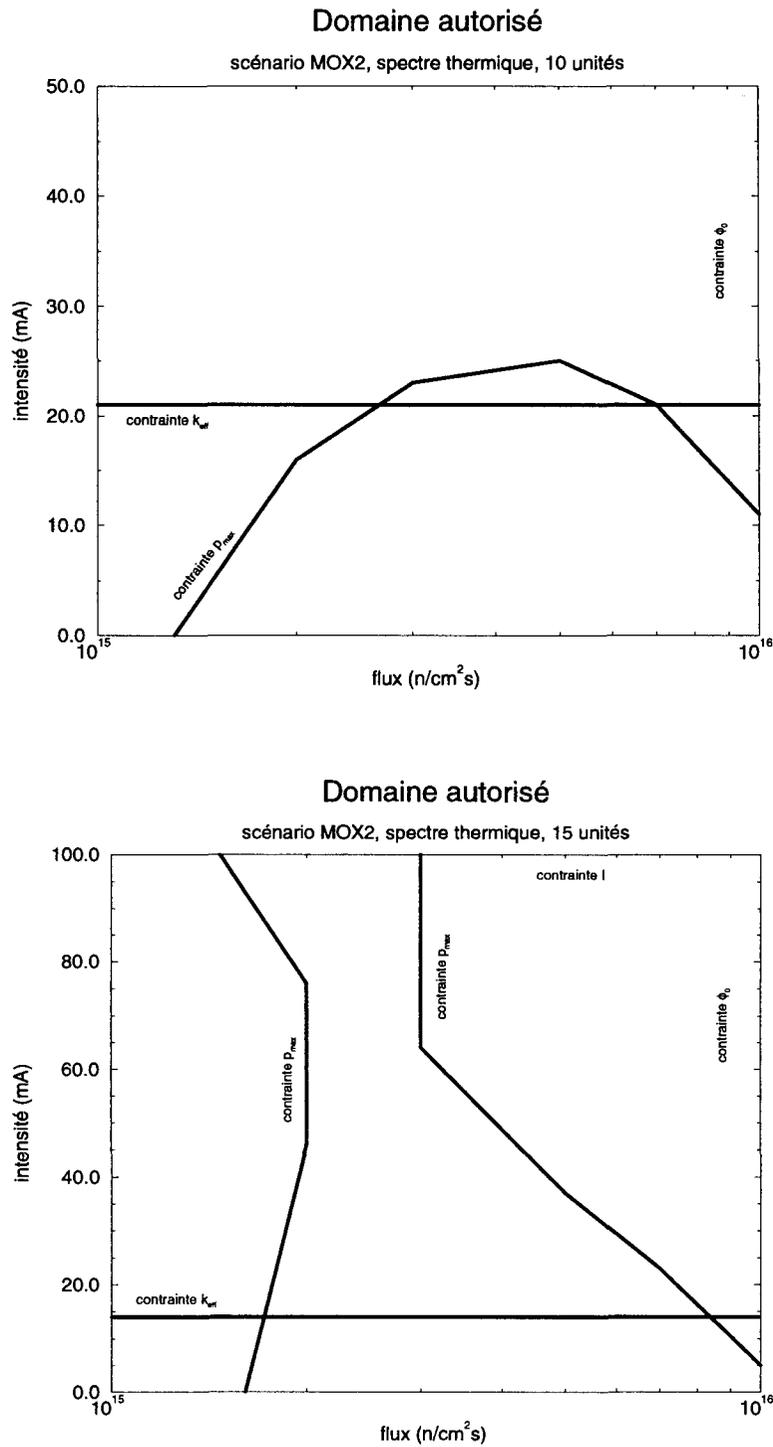


FIG. 6.28: L'incinération en spectre thermique des déchets du scénario MOX2 est similaire au cas du scénario MOX1, si ce n'est l'existence de solutions potentielles pour un nombre d'unités inférieur ou égal à 10. La transition s'opère aussi plus rapidement : pour 15 réacteurs. L'étude des concentrations privilégie les solutions à intensité élevée avec un flux voisin de $3 \cdot 10^{15}$ n/cm²s.

contrainte de puissance volumique délimite un couloir entre $2 \cdot 10^{15}$ et $3 \cdot 10^{15}$ n/cm²s, qui s'agrandit lorsque le nombre d'incinérateurs augmente.

Les concentrations d'actinides obtenues pour ces différentes solutions sont voisines de celles trouvées dans le cas du scénario MOX1, toujours sensiblement supérieures à celle du cycle ouvert. Une étude plus précise de la concentration indique que les solutions à privilégier sont à intensité élevée et pour des flux voisins de $3 \cdot 10^{15}$ n/cm²s.

6.3.1.4 Le scénario multirecyclage MOX

Ce scénario présente des caractéristiques particulières quant au comportement du bilan neutronique (cf. figure 6.11) : l'importante quantité d'américium dans les déchets introduit une "transition". Plus le flux est élevé, plus la voie de fission de l'^{242g}Am est probable. Mais ceci nécessite des flux de plusieurs 10^{15} n/cm²s, le bilan neutronique étant relativement médiocre sinon. On peut donc s'attendre à voir apparaître des solutions pour ces flux.

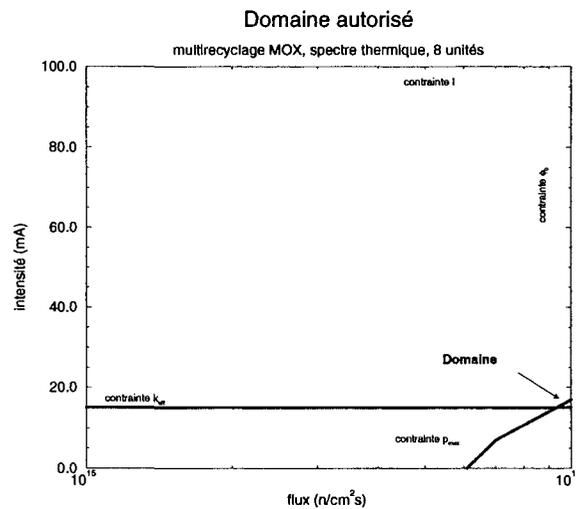


FIG. 6.29: L'incinération des déchets issus du multirecyclage MOX en spectre thermique nécessite des flux élevés, typiquement 10^{16} n/cm²s. Ces solutions existent en raison de la transition du bilan neutronique déjà évoquée. Mais les concentrations sont telles que la cohérence de la démarche ne semble pas acquise. Par ailleurs, augmenter le nombre d'incinérateurs ne va pas dans le bon sens, la concentration des actinides étant plus importante.

L'analyse des différentes configurations, entre 3 et 10 unités en vertu des contraintes imposées, fait ressortir plusieurs solutions à très haut flux (cf. figure 6.29). Nous constatons que le sens de variation de la contrainte de puissance volumique en fonction du nombre d'unités n'est pas le même que dans le cas du cycle ouvert : plus le nombre d'unités augmente, plus la puissance est contraignante. Pour un flux de 10^{16} n/cm²s, elle passe progressivement de 20 à 14 mA pour des parcs de 5 et 10 réacteurs respectivement. Ceci conduit à la disparition des solutions à faible intensité. Dans le produit de la concentration par le flux, ce dernier l'emporte parce que les actinides ne voient pas leur concentration diminuer suffisamment. Ces solutions, illustrées par la figure 6.29, n'existent que pour des flux voisins de 10^{16} n/cm²s. L'intensité est de 17 mA et la sous-criticité de 0,98. Les concentrations sont très élevées : $\approx 0,06$ g/cm³ ;

le rayon du cœur est de 91 cm, pour une puissance totale de 1,3 GW_{th}, soit une puissance volumique moyenne de 422 W/cm³.

Quand le nombre de réacteurs passe de 8 à 10, malgré le décalage vers le bas de la contrainte de puissance, il existe encore des solutions (qui ne disparaissent en fait que pour des parcs de 12 unités ou plus) car la contrainte de sous-criticité subit aussi ce décalage.

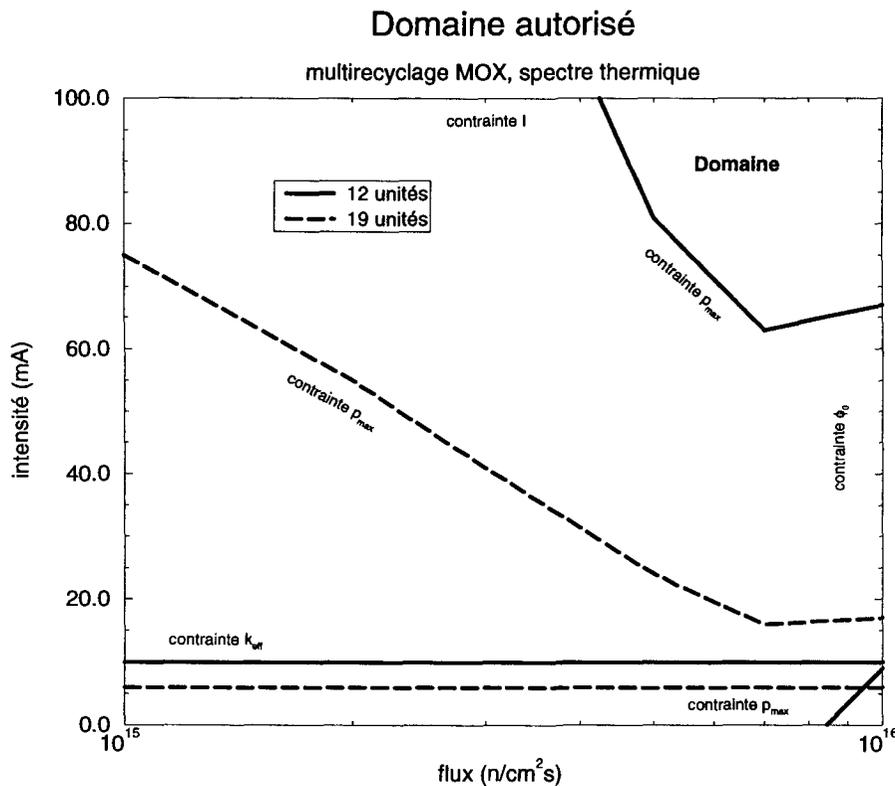


FIG. 6.30: Les solutions à faible intensité ont disparu au profit des intensités élevées. Plus le nombre d'unités est important, plus le domaine autorisé est vaste. Les niveaux de sous-criticité sont importants mais respectent encore la condition d'auto-suffisance énergétique.

Il semble intéressant de considérer des parcs plus importants pour étudier le comportement général, sachant qu'il n'y aura probablement pas de transition puisque la variation de la contrainte de puissance n'est pas adéquate. La figure 6.30 nous montre que c'est effectivement le cas. Elle illustre les cas de 12 et 19 réacteurs. La contrainte "miroir" descend progressivement avec le nombre croissant d'incinérateurs, les solutions à haut flux étant toujours plus nombreuses à cause du bilan neutronique nettement plus favorable. Pour des intensités comparables, les solutions à haut flux seront privilégiées car les concentrations d'actinides sont plus faibles. Ainsi, pour un flux de $7 \cdot 10^{15}$ n/cm²s avec un parc composé de 19 unités, nous avons les

concentrations suivantes :

intensité (mA)	concentration (g/cm ³)
16	0,09
20	0,075
30	0,05
50	0,03
70	0,02
100	0,014

La sous-criticité s'accroît au fur et à mesure que l'intensité augmente. Pour 100 mA, nous trouvons $k_{eff} = 0,76$, à la limite de l'auto-suffisance énergétique. Notons que malgré ce faible coefficient de multiplication, le facteur de forme (p_{max}/p_{moy}), est seulement de 8, à comparer au facteur 30 pour le cycle ouvert.

6.3.2 Spectre rapide

Après avoir décrit le panorama des solutions en spectre thermique, examinons le cas du spectre rapide. Les contraintes sont indentiques, mais on peut s'attendre à un comportement radicalement différent dans ce cas, essentiellement en raison du nombre de neutrons disponibles par fission. Nous verrons que ce n'est pas nécessairement un avantage. De plus, le souci de généralité nous conduit à envisager la dilution des actinides dans le massif de plomb constituant la deuxième couche du modèle sphérique. Les solutions potentielles pourront alors être affinées afin de tenir compte du sel retenu et des hétérogénéités spatiales.

6.3.2.1 Le cycle ouvert

Comme pour le spectre thermique, nous allons examiner les grandes tendances de ce scénario particulier. Les solutions élaborées lors de l'étude du bilan neutronique ont mis l'accent sur les très faibles flux qui permettent d'assurer l'équilibre neutronique avec un réacteur optimisé. Ceci donne la possibilité de transmuter une grande fraction des produits de fission à vie longue. Etudions tout d'abord le cas sans PFVL.

Compte-tenu de la puissance totale à dissiper et la limite sur la puissance de chaque réacteur, les configurations auront entre 8 et 10 unités. Dans cette région, il n'existe que peu de solutions et toutes ont un flux supérieur à $6 \cdot 10^{15}$ n/cm²s (cf. figure 6.31). En effet, le spectre rapide, qui n'est pas limité par la puissance volumique comme le spectre thermique, conduit à des cœurs très volumineux. Le bilan neutronique est si bon que la distribution radiale de flux est très plate et il faut atteindre des rayons très élevés pour que le flux aux bords puisse compenser cette multiplication de neutrons et la source externe de neutrons, imposée par la contrainte de sous-criticité. A titre d'illustration, nous pouvons indiquer le nombre de réacteurs nécessaires pour plusieurs flux, toutes les contraintes étant satisfaites :

flux (n/cm ² s)	nb. réacteurs
10^{15}	48
$2 \cdot 10^{15}$	26
$3 \cdot 10^{15}$	18
$5 \cdot 10^{15}$	11
$7 \cdot 10^{15}$	8
10^{16}	8

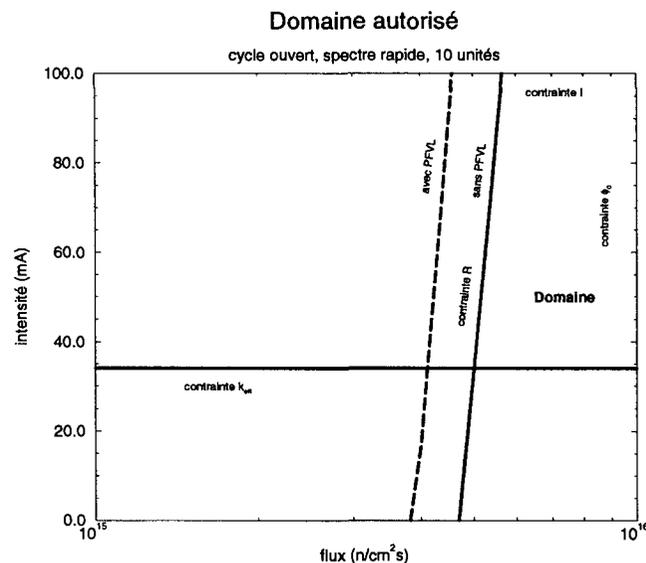


FIG. 6.31: L'incinération des actinides déchets du cycle ouvert en spectre rapide avec au plus 10 unités conduit à un domaine restreint aux flux élevés. L'excellent bilan neutronique de ce spectre impose en effet des rayons de cœurs inacceptables sauf pour $\phi_0 > 5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s. La transmutation des PFVL permet d'agrandir le domaine en y incluant des zones à plus faible flux.

Plus le flux est faible, plus le rayon des cœurs est important. Il faut donc multiplier le nombre d'incinérateurs pour revenir à un rayon d'au plus 3 mètres. Dans le cas d'un flux de 10^{16} n/cm²s, si on relâche la contrainte de puissance par unité, les premières solutions apparaissent pour 6 incinérateurs. Augmenter le nombre d'unités permet de décaler la courbe de contrainte sur le rayon vers la gauche. Un réacteur supplémentaire ouvre tout un domaine jusque là inaccessible.

Ceci traduit la nécessité d'avoir, en spectre rapide, des fuites et des pertes importantes de neutrons, qui peuvent être utilisés à d'autres fins. Ainsi, la solution à $7 \cdot 10^{15}$ n/cm²s avec une intensité de 37 mA par unité a un rayon de 2,9 m et 40% des neutrons sont perdus soit par fuites, soit par captures dans le caloporteur. On peut traduire ces chiffres en comptant le nombre de neutrons perdus par tel ou tel processus en fonction du nombre de neutrons injectés dans le système. Il s'avère que pour 1 neutron source, 7,9 fuient et 14 sont capturés inutilement. Ces chiffres très élevés montrent que la source ne joue aucun rôle dans ce système. En spectre thermique, la solution privilégiée pour le cycle ouvert, $2 \cdot 10^{15}$ n/cm²s, a 1,2 neutrons qui fuient par neutron source pour 37 mA et seulement 0,6 neutron qui fuit à 70 mA.

L'excédent de neutrons a donc des répercussions sur le nombre d'unités et cet avantage peut être "défavorable" pris en l'état. Il existe tout de même quelques solutions pour diminuer la taille des cœurs comme nous l'avons vu en spectre thermique. Nous pouvons tout d'abord jouer sur la qualité du réflecteur : plus celui-ci sera "mauvais" ($\beta \searrow$), plus le rayon sera petit et la concentration élevée. Notons qu'une concentration élevée est favorable au spectre rapide et est à rechercher puisqu'elle permet de durcir le spectre neutronique. La puissance volumique est plus importante mais encore loin d'être limitante. Ce type de solution au problème de la taille des cœurs n'en est pas vraiment une car elle consiste à augmenter encore davantage les fuites. La deuxième possibilité consiste à augmenter la zone de spallation. La puissance volumique diminue car le flux à l'interface cible de spallation – massif sous-critique baisse, mais le rayon ne varie que très peu et la concentration est presque inchangée car la distribution de puissance

est très plate. Nous conserverons donc les valeurs d'albédo et de rayon de spallation données en introduction : $\beta = 0,9$ et $R_s = 20$ cm.

La seule solution intéressante et viable est probablement d'utiliser les neutrons en vue de captures spécifiques, par exemple pour augmenter le taux d'incinération, pour transmuter les PFVL ou pour faire de la surgénération. Nous avons déjà discuté du premier cas de figure : un taux d'incinération plus élevé ne permet pas de faire des gains en terme de radiotoxicité car le niveau de l'uranium naturel est déjà atteint. L'extraction chimique devient alors plus facile (facteur d'extraction moins élevé), mais cela nous prive d'une compétence technique. Cette alternative est donc à rejeter. La troisième possibilité, la surgénération, peut s'envisager mais l'incinérateur a alors deux fonctions opposées : détruire les déchets et produire du combustible. L'optimisation risque d'être difficile et deux réacteurs spécialisés semblent mieux répondre à ce type de problématique. Ainsi seule la seconde alternative semble réaliste.

L'introduction des PFVL conduit à des captures supplémentaires. Le flux chute plus rapidement en fonction du rayon. Pour maintenir un flux moyen constant, il faut donc réduire la dimension des cœurs, ce qui a deux avantages : (i) retrouver des cœurs de taille plus raisonnable et (ii) augmenter la concentration des actinides. L'inconvénient majeur qu'est la hausse de la puissance volumique maximale n'en est pas une puisque la limite de 800 W/cm^3 est encore très au-delà des valeurs observées. Nous pouvons examiner l'impact de ces PFVL et plus particulièrement du technétium et de l'iode.

Les PFVL produisent un décalage de la contrainte sur le rayon (cf. figure 6.31) et une augmentation du nombre d'unités, comme pour l'incinération sans PFVL, conduit au même phénomène. Le nombre d'unités minimal pour obtenir une solution pour différents flux descend alors à respectivement 38, 21 et 14 réacteurs pour des flux 10^{15} , $2 \cdot 10^{15}$ et $3 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$.

Enfin, pour concentrer au plus les actinides afin de durcir le spectre neutronique, les solutions à haut flux et faible intensité sont privilégiées. En effet, comme en spectre thermique, plus l'accélérateur est intense, plus le rayon est grand donc la concentration faible. Quant à la seconde variation, on observe que la concentration et le flux varient dans le même sens. L'ordre de grandeur des concentrations, en considérant 10 unités, est de $0,1 \text{ g/cm}^3$ pour un flux de $3 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$ et de $0,14 \text{ g/cm}^3$ pour un flux de $10^{16} \text{ n/cm}^2\text{s}$. De la même manière, on mettra l'accent sur les solutions à 10 unités plutôt qu'à 8. D'une part, cela permet de concentrer les actinides (+10%) et, d'autre part, l'intensité de l'accélérateur est réduite (de 42 mA à 34 mA).

6.3.2.2 Les scénarios MOX1 et MOX2

Les résultats pour ces deux scénarios sont en tout point semblables à ceux du cycle ouvert (cf. figure 6.32). Seules les contraintes de sous-criticité et de taille des cœurs imposent une limite au domaine autorisé (mises à part les contraintes d'intensité et de flux). La première se décale progressivement vers le bas au fur et à mesure que le nombre de réacteurs croît, la seconde se déplace vers la gauche. La concentration des actinides est aussi plus importante, avec $0,3 \text{ g/cm}^3$ pour le scénario MOX1 et $0,4 \text{ g/cm}^3$ pour le scénario MOX2. C'est la conséquence, comme nous l'avons déjà remarqué (cf. section 6.1.2), de la baisse de puissance par unité de masse de déchets et du moins bon bilan neutronique, qui reste toujours très excédentaire.

Les solutions privilégiées, à la fois pour des raisons de dimension et de concentration, sont toujours à faible intensité et haut flux. Notons enfin que la puissance volumique est plus importante ici que pour le cycle ouvert. Les maxima, 680 W/cm^3 pour le scénario MOX1 et 780 W/cm^3 pour le scénario MOX2, sont atteints pour un flux de $10^{16} \text{ n/cm}^2\text{s}$ et une intensité de 100 mA.

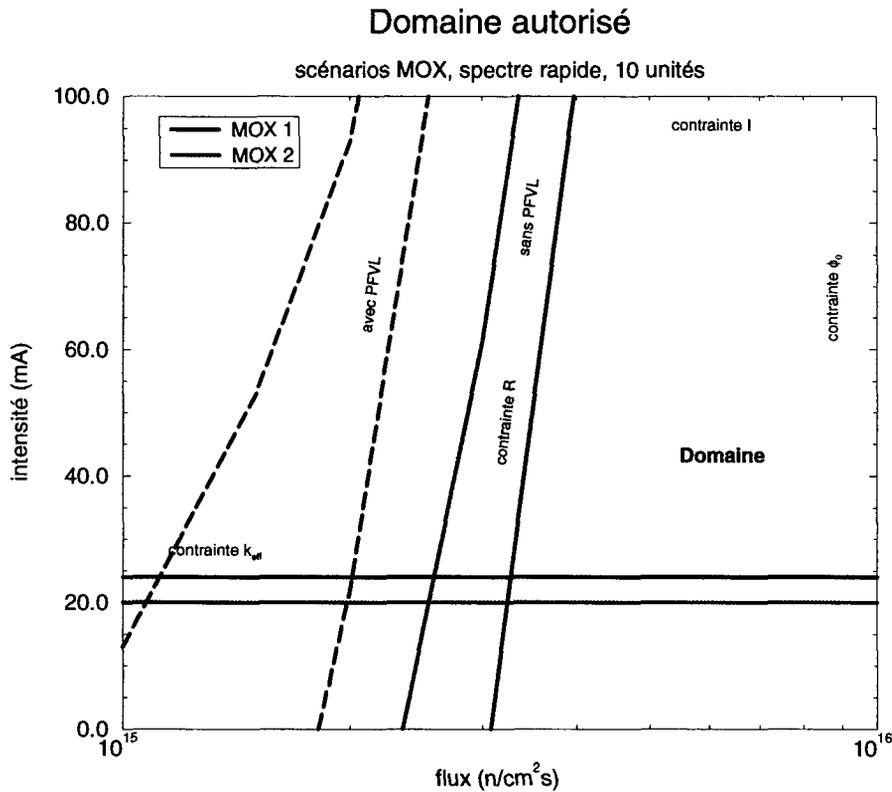


FIG. 6.32: Comme pour le cycle ouvert, le rayon des cœurs est le facteur limitant, en raison de l'excellent bilan neutronique. Les évolutions du domaine autorisé en fonction du nombre d'unités ou de la transmutation des PFVL sont identiques à celles mises en évidence avec le cycle ouvert.

6.3.2.3 Le multirecyclage MOX

L'incinération des déchets du multirecyclage MOX présente les mêmes caractéristiques que les autres scénarios. La figure 6.33 illustre les résultats pour plusieurs configurations : 3, 5 et 10 réacteurs. On y voit clairement le décalage progressif des deux contraintes principales : le rayon et la sous-criticité. Ces schémas ne prennent pas en compte une éventuelle transmutation des PFVL car nous avons déjà vu que ce scénario ne le permet pas.

Ici encore, les solutions privilégiées sont à haut flux et faible intensité. Pour un flux de 10¹⁶ n/cm²s, les différentes valeurs de concentration et d'intensité minimales sont :

nb. réacteurs	intensité (mA)	concentration (g/cm ³)
3	39	0,18
5	23	0,23
10	11	0,36

Il est intéressant de noter que la variation de puissance volumique en fonction de l'intensité (croissante puis décroissante) mise en évidence avec le spectre thermique, se produit ici aussi avec la configuration à 10 unités, quoique dans une moindre mesure. En effet, pour un flux de 10¹⁶ n/cm²s, la puissance volumique maximale est voisine de 360 W/cm³ à 11 mA et passe par un maximum de 500 W/cm³ à 136 mA, avant de décroître progressivement.

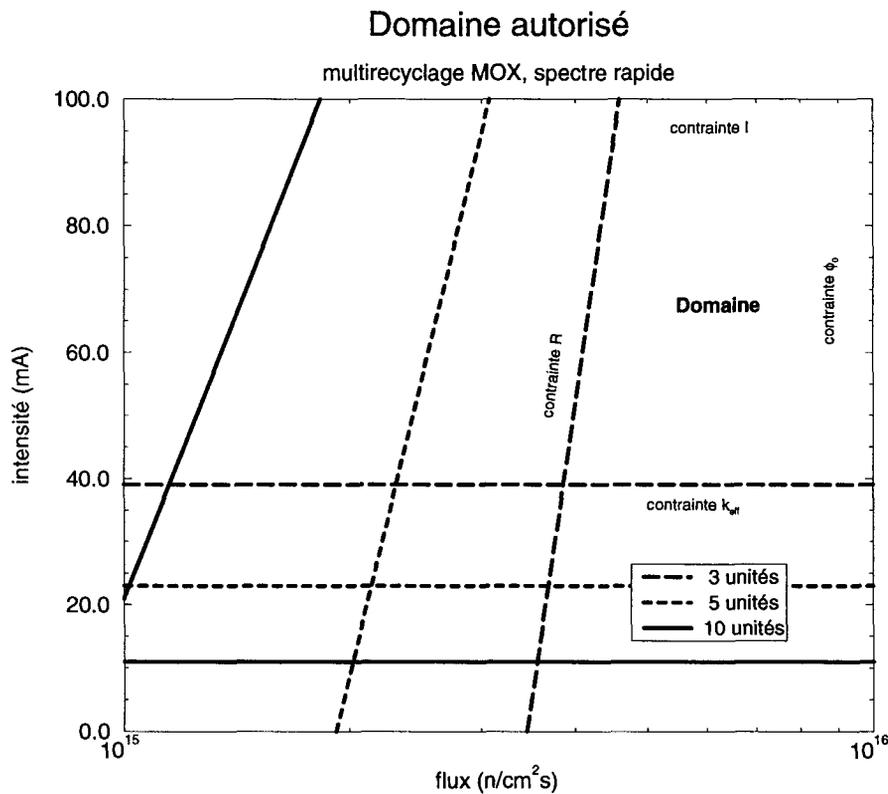


FIG. 6.33: Des configurations d'incinération des déchets du multirecyclage MOX, sans PFVL, existent pour des parcs allant de 3 à 10 réacteurs. Le décalage des courbes de contraintes apparaît clairement. Les solutions privilégiées sont à faible intensité et haut flux.

6.3.3 Quelques solutions

Cette étude met en évidence plusieurs solutions, à la fois en spectre thermique et en spectre rapide. Il est bon de revenir sur chacune de ces solutions potentielles pour en faire une étude plus détaillée.

6.3.3.1 Spectre thermique

L'incinération avec des neutrons très thermalisés, compte-tenu de l'ensemble des contraintes imposées, ne semble réalisable que pour les scénarios cycle ouvert, MOX2 ou multirecyclage MOX. La solution la plus attrayante en cycle ouvert est $\phi_0 = 2 \cdot 10^{15}$ n/cm²s et $I = 70$ mA pour 10 unités, ce qui nous place dans le coin supérieur gauche du domaine autorisé (cf. figure 6.22). Les différents paramètres de ces incinérateurs sont indiqués tableau 6.8.

Le flux est relativement piqué au centre (i.e. un facteur de forme de 22) mais la puissance volumique maximale demeure inférieure à 800 W/cm³. Ceci peut avoir un impact important aux niveaux technique et économique à cause du surdimensionnement nécessaire et de la relative inefficacité d'une grande partie du cœur. Nous constatons aussi que la masse d'actinides par incinérateur est réduite, 1,54 tonnes, à comparer aux 82 tonnes d'oxyde dans les REP 900 MW_e [27].

La répartition des neutrons suivant les différentes réactions est donné tableau 6.9. Les actinides sont responsables de la majorité des disparitions de neutrons et 0,4 neutron par fission est

Grandeur	cycle ouvert	scénario MOX2	multirecyclage MOX
ϕ_0 (n/cm ² s)	2 10 ¹⁵	5 10 ¹⁵	10 ¹⁶
I (mA)	70	23	16
nombre d'unités	10	9	8
Puissance totale (GW _{th})	3,3	2,1	1,3
k_{eff}	0,961	0,980	0,979
k_{∞}	0,983	1,02	1,05
rayon (m)	2,88	1,33	0,90
masse d'actinides (kg)	1 540	510	200
(g/cm ³)	0,015	0,052	0,065
masse de PF (kg)	170	45	15
(g/cm ³)	1,7 10 ⁻³	4,7 10 ⁻³	4,8 10 ⁻³
$\phi(R_s)$ (n/cm ² s)	4,5 10 ¹⁶	1,9 10 ¹⁶	1,8 10 ¹⁶
p_{max} (W/cm ³)	758	791	795
p_{moy} (W/cm ³)	33,6	214	430
facteur de forme	22	3,1	1,1

TAB. 6.8: Les caractéristiques des incinérateurs potentiels en spectre thermique sont différentes suivant l'objectif d'incinération : le cycle ouvert, le scénario MOX2 ou le multirecyclage. Dans le premier cas, les cœurs sont beaucoup plus imposants et la distribution de puissance est moins homogène. Par contre, le mélange est intrinsèquement sous-critique et les actinides sont très dilués. Mais le facteur de forme de 22 laisse présager de difficultés techniques pour sa réalisation.

perdu à travers les captures parasites et les fuites. Cette valeur est à comparer aux 0,3 initialement retenus : afin de satisfaire les différentes contraintes, il n'est pas possible de construire un incinérateur optimisé comme les réacteurs critiques. Il faut consentir à plus de pertes dans les matériaux de structure.

La configuration à 9 unités pour l'incinération des déchets du scénario MOX2 s'établit pour un flux de 5 10¹⁵ n/cm²s et une intensité de 23 mA par incinérateur. Dans le cas du scénario de multirecyclage MOX, la solution privilégiée correspond à $\phi_0 = 10^{16}$ n/cm²s et $I = 16$ mA pour 8 unités. Les caractéristiques de ces incinérateurs sont données tableaux 6.8 et 6.9. L'inventaire en actinides est toujours très faible, mais on remarquera une concentration plus élevée que pour le cycle ouvert, une distribution spatiale de puissance plus homogène (facteur de forme 3,1 et 1,1 au lieu de 22), d'où une puissance volumique moyenne 13 fois plus élevée. De même, le mélange est intrinsèquement plus réactif puisque le k_{∞} est supérieur à 1.

Notons que la répartition des neutrons est très sensiblement différente d'une solution à l'autre. Dans le cas du cycle ouvert, les fuites sont très inférieures aux captures parasites, principalement en raison du rayon du cœur (2,88 m) et de la faible concentration. A l'inverse, le scénario de multirecyclage MOX conduit à plus de fuites que de captures parasites : le rayon est de 0,9 m. Mais globalement, le terme $D_{struc} + D_{fuites}$ est presque constant : 0,4 pour le cycle ouvert et 0,38 pour le multirecyclage MOX. Seul le scénario MOX2 est inférieur à 0,3 neutron par fission.

Réaction	cycle ouvert		scénario MOX2		multirecyclage MOX	
	répartition	D	répartition	D	répartition	D
Actinides	84,6%	-0,37	88,8%	-0,30	86%	-0,41
PF	3,02%	0,098	3,2%	0,11	3,1%	0,11
support	10,2%	0,33	4,2%	0,14	4,3%	0,15
fuites	2,18%	0,07	3,8%	0,13	6,6%	0,23

TAB. 6.9: Les neutrons sont consommés principalement par les actinides. Viennent ensuite les pertes parasites dans le matériau support et les fuites, puis les captures par les produits de fission. Notons que l'estimation de 0,3 neutrons par fission pour les réactions parasites utilisée dans l'analyse globale donne le bon ordre de grandeur mais indique bien que l'optimisation est différente pour un réacteur industriel et un incinérateur.

6.3.3.2 Spectre rapide

Le bilan neutronique pour ce spectre est plus favorable et permet, comme nous l'avons vu, d'envisager l'incinération des déchets de tous les scénarios. Les principales contraintes sont la sous-criticité et le rayon des installations : le bilan neutronique est tellement favorable qu'il faut gaspiller des neutrons.

Les caractéristiques des cœurs sont données tableau 6.10 pour les scénarios cycle ouvert, MOX1 et multirecyclage MOX. Nous avons privilégié les solutions à plus forte concentration afin de durcir le spectre neutronique en vue de la cohérence du schéma général. Il s'agit donc de configurations à 10 unités avec un flux de 10^{16} n/cm²s et une intensité minimale. Les sous-criticités sont donc identiques.

Le rayon du cœur décroît progressivement car le mélange d'actinides est de moins en moins réactif et les actinides sont de plus en plus concentrés. De même, les paramètres de puissance augmentent avec le nombre de recyclage au sein des réacteurs de puissance.

Notons aussi que les cœurs disposent d'une marge importante de réactivité : $k_{\infty} \approx 1,2$. L'absence de PFVL est très significative pour le scénario de multirecyclage MOX. La répartition des neutrons est indiquée tableau 6.11. La proportion de neutrons consommés par les actinides est nettement plus faible qu'en spectre thermique. La fraction des neutrons perdus est aussi deux fois plus élevée et dépasse les 25%. Les captures par les matériaux de structure et les pertes dues aux fuites totalisent entre 0,8 et 1 neutron par fission, soit bien plus que les 0,3 constaté pour les réacteurs industriels. La source externe de neutrons n'a donc un intérêt qu'en terme de sous-criticité, les neutrons supplémentaires étant "gaspillés".

De même qu'en spectre thermique, nous constatons que les cœurs optimisés ne sont pas comparables suivant l'objectif poursuivi : la production d'énergie pour les réacteurs industriels ou la transmutation des déchets pour les incinérateurs.

6.3.4 Cohérence de la démarche

Nous avons réussi à éclaircir le panorama des solutions pour n'en faire ressortir qu'un nombre réduit. Ces solutions sont caractérisées par un rayon, une intensité, une sous-criticité, un flux, un taux d'incinération et une distribution radiale de puissance. Nous avons aussi pu calculer la concentration des actinides dans le matériau support. Cette dernière grandeur va nous permettre de recalculer le spectre neutronique pour vérifier que les sections efficaces dans cette

Grandeur	cycle ouvert	scénario MOX1	multirecyclage MOX
ϕ_0 (n/cm ² s)	10 ¹⁶	10 ¹⁶	10 ¹⁶
I (mA)	35	25	12
nombre d'unités	10	10	10
Puissance totale (GW _{th})	3,3	2,4	1,0
k_{eff}	0,979	0,979	0,979
k_{∞}	1,20	1,19	1,26
rayon (m)	2,0	1,52	1,07
masse d'actinides (tonnes)	4,75	3,79	1,81
(g/cm ³)	0,14	0,26	0,36
masse de PF (tonnes)	1,26	0,95	0,40
(g/cm ³)	0,038	0,065	0,079
masse de PFVL (tonnes)	1,36	1,35	0
(g/cm ³)	0,041	0,092	0
$\phi(R_s)$ (n/cm ² s)	3,2 10 ¹⁶	2,5 10 ¹⁶	1,8 10 ¹⁶
p_{max} (W/cm ³)	292	406	366
p_{moy} (W/cm ³)	100	160	207
facteur de forme	2,7	2,0	1,1

TAB. 6.10: Les solutions potentielles en spectre rapide sont à flux élevé et intensité faible afin de concentrer au plus les actinides. Les distributions de puissance sont homogènes. Le mélange actinides et produits de fission dispose d'une importante réserve de réactivité. L'inventaire en actinides ne dépasse pas les 5 tonnes, nettement inférieur aux 82 tonnes des réacteurs industriels.

configuration sont proches de nos hypothèses (cf figure 2.16 et 2.17).

6.3.4.1 Concentration en actinides pour le spectre thermique

Les solutions d'incinération en spectre thermique conduisent à des concentrations en actinides comprises entre 0,01 et 0,1 g/cm³. Pour vérifier le spectre, il faudrait examiner chaque solution, tenir compte de la composition isotopique et simuler un cœur. Cette approche est très spécifique et ne permet pas de comprendre les mécanismes de base, puisqu'elle met l'accent sur des solutions particulières. Nous avons opté pour une approche plus globale.

Lors de l'étude de la réduction de l'inventaire radiotoxique, nous avons constaté que la composition isotopique en spectre thermique est focalisée sur quelques isotopes (cf. tableau 6.1), principalement le ²⁴⁴Cm et le ²⁴⁶Cm. Nous allons étudier l'effet de la concentration des actinides d'une manière globale en remplaçant le mélange par un isotope représentatif: le ²⁴⁴Cm. Et nous allons procéder comme pour l'élaboration du spectre thermique de référence (cf. section 2.3.2.1) en "remplissant" un massif de graphite avec la concentration adéquate de ²⁴⁴Cm et une quantité variable de ²³⁹Pu afin de maintenir la réactivité du système à $k_{eff} = 0,95$ (toujours pour avoir la partie rapide du spectre neutronique sur une zone importante du cœur).

Un calcul Monte-Carlo permet alors d'accéder au spectre neutronique pour différentes concentrations de ²⁴⁴Cm. Les résultats sont illustrés figure 6.34 dans laquelle chaque spectre est normalisé: $\int d\phi = 1$. Nous y distinguons deux phénomènes:

1. le spectre se durcit avec l'augmentation de la concentration. Le pic thermique diminue et

Réaction	cycle ouvert		scénario MOX1		multirecyclage MOX	
	répartition	D	répartition	D	répartition	D
Actinides	57%	-1,24	60,5%	-1,16	68,6%	-0,97
PF	3%	0,092	3,1%	0,097	2,8%	0,091
PFVL	8%	0,24	10,7%	0,33	0%	0
support	13,5%	0,41	8,4%	0,26	6,8%	0,22
fuites	18,5%	0,56	17,3%	0,53	21,8%	0,71

TAB. 6.11: La répartition des neutrons en spectre rapide est très différente du spectre thermique. Les actinides consomment une proportion plus faible de neutrons. Malgré les captures par les PFVL, 25% des neutrons sont perdus soit par des captures parasites, soit par les fuites. L'optimisation des incinérateurs mène ici encore à des configurations très différentes des réacteurs industriels.

Influence de la concentration en actinides

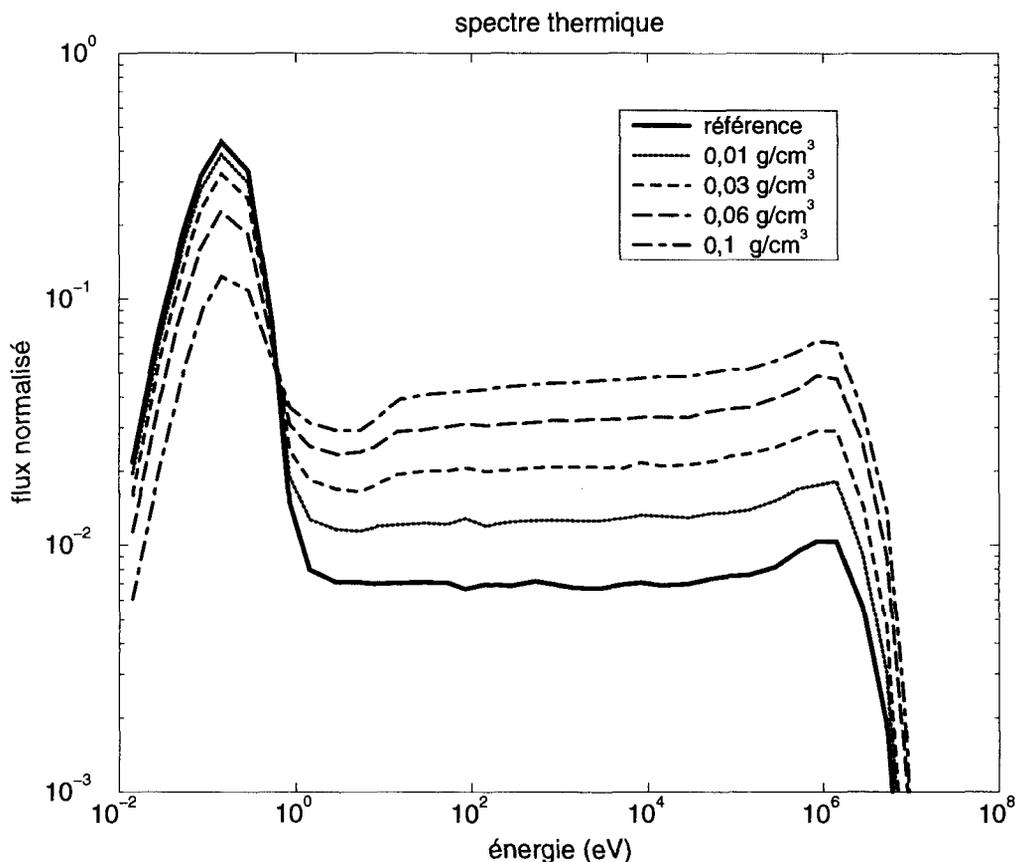


FIG. 6.34: Evolution du spectre en fonction de la concentration en ^{244}Cm . Cet isotope sert à modéliser l'impact du mélange d'actinides dans le cœur pour évaluer la cohérence de la démarche. Plus sa concentration est importante, plus le spectre se durcit avec une part grandissante des neutrons épithermiques. La dépression du flux à 5 eV est due à une résonance de capture du ^{244}Cm .

- les parties épithermique et rapide du spectre prennent de plus en plus d'importance ;
- pour des concentrations supérieures à $0,03 \text{ g/cm}^3$, une dépression du flux apparaît pour des énergies inférieures à 10 eV, en raison de la résonance de capture du ^{244}Cm à 8 eV (cf. figure 6.35).

La modification du spectre doit nécessairement conduire à une variation des sections efficaces moyennes. L'idée intuitive est que les sections efficaces vont diminuer : le spectre de référence très thermalisé profite de la variation en $1/v$ des sections efficaces à faible énergie et le durcissement du spectre doit voir cet effet diminuer puisque la proportion de neutrons thermiques est moindre en présence de ^{244}Cm . Ce raisonnement, qui n'en reste pas moins juste, est incomplet. Il suffit pour s'en rendre compte de calculer les sections efficaces moyennes pour les spectres représentés figure 6.34. Les résultats pour les principaux isotopes du mélange, soit parce qu'ils constituent la masse du système (ex : ^{244}Cm), soit parce qu'ils sont responsables de la majeure partie des fissions (ex : ^{239}Pu), sont indiqués tableau 6.12.

Isotope	processus	concentrations (g/cm^3)				
		réf.	0,01	0,03	0,06	0,1
^{239}Pu	(n,f)	802	719	610	441	257
^{241}Pu	(n,f)	700	627	530	385	225
^{245}Cm	(n,f)	660	591	497	363	211
^{240}Pu	(n, γ)	221	235	251	263	267
^{242}Pu	(n, γ)	16	20	24	30	34
^{243}Am	(n, γ)	51	56	61	67	70
^{244}Cm	(n, γ)	10,2	12,6	15,2	18,9	22,2
^{246}Cm	(n, γ)	1,22	1,6	2,1	2,77	3,36

TAB. 6.12: Sections efficaces moyennes des principaux isotopes pour différentes concentrations. Alors que les noyaux fissiles voient leurs sections efficaces diminuer tout en conservant un rapport fission sur capture constant, les noyaux fertiles sont de plus en plus capturants.

On constate deux tendances distinctes :

- les sections efficaces moyennes des isotopes fissiles décroissent avec la concentration, à la fois pour la fission et la capture¹⁵ ;
- les sections efficaces moyennes des isotopes fertiles augmentent avec la concentration. Ce résultat est valable pour les deux principaux processus : capture et fission.

La première constatation se comprend aisément à partir du raisonnement intuitif évoqué ci-dessus. Notons à cette occasion que les rapports $\sigma_{\text{fission}}/\sigma_{\text{capture}}$ sont pratiquement inchangés : la diminution des sections efficaces moyennes se fait dans les mêmes proportions pour la fission et la capture. Ce n'est que pour des concentrations très élevées ($0,1 \text{ g/cm}^3$) qu'un effet supérieur à 1% est observé et seulement pour certains isotopes.

La seconde demande de regarder de plus près les sections efficaces. La figure 6.35 donne les sections efficaces de capture du ^{244}Cm et du ^{246}Cm et la section efficace de fission du ^{239}Pu . On reconnaît la variation en $1/v$ à faible énergie, les résonances pour des énergies comprises entre 1 eV et 100 keV et la partie "rapide" au-delà. Les résonances sont bien plus importantes pour

15. Seule la section efficace moyenne de fission est indiquée puisqu'il s'agit d'isotopes fissiles. La fission est leur mode "d'action" privilégié. De la même manière, nous n'indiquons que la capture pour les isotopes fertiles.

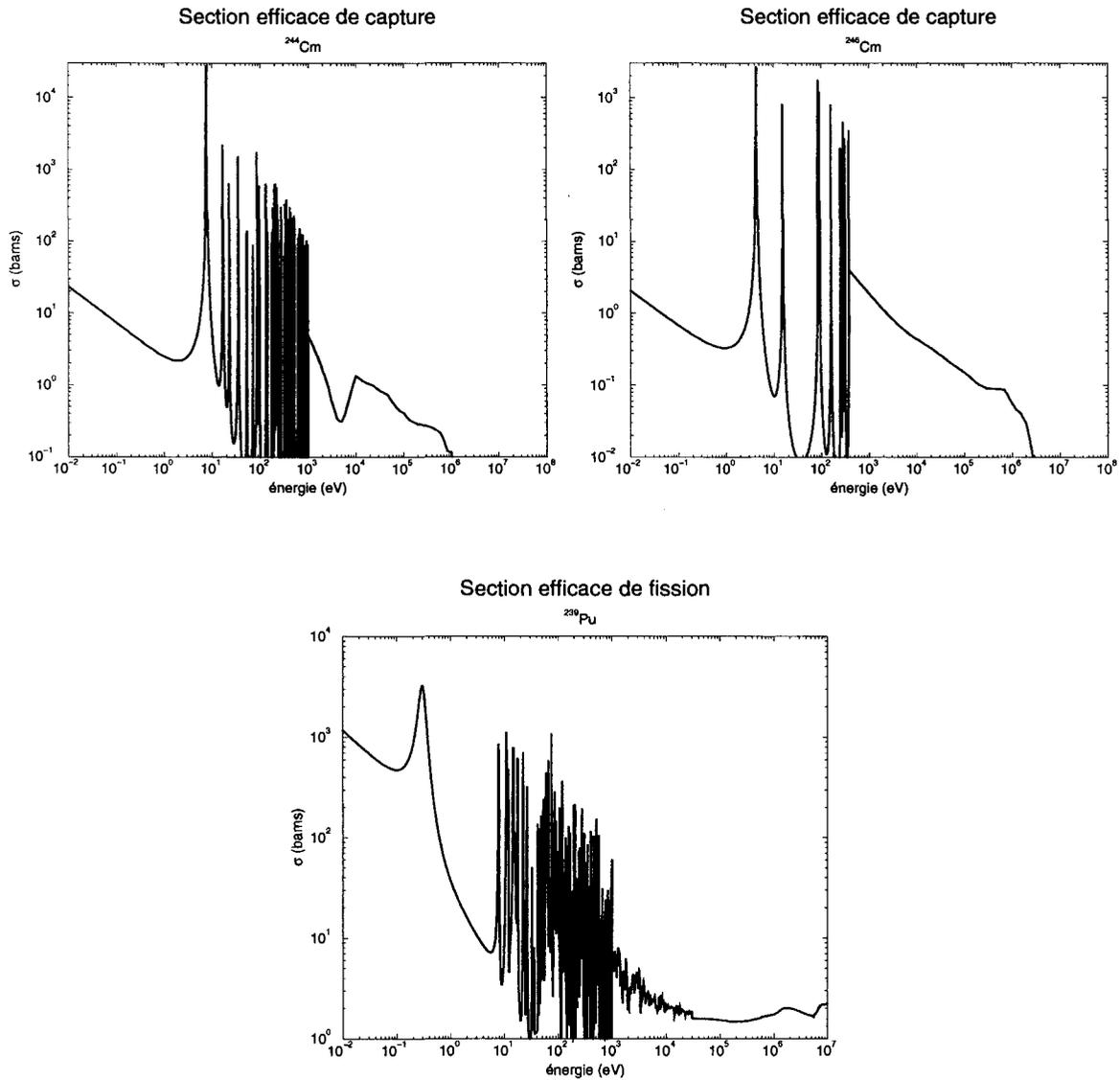


FIG. 6.35: Les différentes sections efficaces, de capture ou de fission suivant l'isotope, illustrent les différences de comportement des sections efficaces moyennes quand la proportion de neutrons épithermiques s'accroît. L'intégrale de résonance pour les noyaux fertiles est bien supérieure à la valeur en spectre thermique pur. La situation est inversée pour les noyaux fissiles.

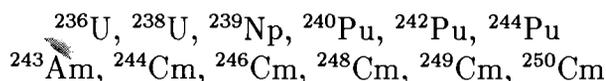
les deux noyaux fertiles que pour le noyau fissile. Dans un cas, la partie thermique domine, dans l'autre, ce sont les résonances. Une appréciation plus quantitative est donnée tableau 6.13 avec la valeur des sections efficaces à 1/40 eV et l'intégrale de résonance.

Isotope	processus	sections efficaces (barns)	
		1/40 eV	Intégrale de résonance
²³⁹ Pu	(n,f)	747,6	289,5
²⁴⁰ Pu	(n,γ)	288,9	8448
²⁴¹ Pu	(n,f)	1013	570,8
²⁴² Pu	(n,γ)	18,52	1116
²⁴³ Am	(n,γ)	76,02	1811
²⁴⁴ Cm	(n,γ)	14,44	633,3
²⁴⁵ Cm	(n,f)	2132	748,5
²⁴⁶ Cm	(n,γ)	1,298	103,5

TAB. 6.13: Comme le laissent présager les courbes de sections efficaces (cf. figure 6.35), les isotopes fertiles ont des intégrales de résonances bien supérieures à la section efficace à 1/40 eV. Ceci explique les comportements diamétralement opposés des noyaux fertiles et fissiles.

Les comportements des isotopes fissiles et fertiles sont inversés. Alors que le durcissement conduit à une baisse de la section efficace moyenne pour un noyau fissile, la part grandissante des neutrons épithermiques entraîne une contribution croissante des résonances, expliquant la hausse des sections efficaces moyennes. Plus spécifiquement, après l'étude détaillée de tous les isotopes qui interviennent dans les calculs d'incinération, certains isotopes fertiles ne suivent pas le même comportement. La liste des isotopes qui voient leurs sections efficaces moyennes augmenter est¹⁶ :

Liste A



Notons par ailleurs que les rapports fission sur capture n'ont pas de tendance précise pour les isotopes fertiles et les variations peuvent être importantes. La comparaison entre le spectre de référence et celui obtenu pour une concentration de 0,1 g/cm³ donne une variation de -33% pour le ²⁴⁴Cm, +35% pour le ²⁴⁶Cm et +130% pour le ²⁴²Pu. Ces écarts importants sont à relativiser puisque la fission demeure très improbable : $\sigma_{\text{fission}}/\sigma_{\text{capture}} \ll 1$.

Ces éléments expliquent les variations de sections efficaces indiquées tableau 6.12. En particulier, les isotopes fissiles et plus généralement tout les isotopes qui ne sont pas dans la liste A ci-dessus, ont des sections efficaces qui décroissent suivant la relation :

concentration (g/cm ³)	0,01	0,03	0,06	0,1
σ	-10%	-24%	-45%	-68%

L'unicité de cette baisse tient aux raisons de la baisse de section efficace : la proportion de neutrons thermiques diminue et la quantité de neutrons épithermiques n'est pas encore suffisante pour compenser la faible valeur de l'intégrale de résonance.

16. L'examen des sections efficaces indique que le ²⁴⁹Cm n'est pas un isotope fissile en spectre thermique, avec 1,15 barns pour la fission et 1,95 barns pour la capture.

Les variations pour les isotopes de la liste A sont plus diversifiées, car les rapports entre l'intégrale de résonance et la valeur de référence varient d'un isotope à un autre, mais sont toujours à la hausse. D'une manière générale, plus ce rapport est élevé, plus l'augmentation de la section efficace moyenne est importante (ex : +31% pour le ^{246}Cm à 0,1 g/cm³).

Ce qui importe pour la cohérence de la démarche, c'est l'impact de ces modifications de sections efficaces sur les différents paramètres des actinides : composition isotopique à l'équilibre (pour l'inventaire radiotoxique et le taux d'incinération qui en découle), bilan neutronique, inventaire, dynamique de convergence. Plusieurs remarques s'imposent. La baisse des sections efficaces des isotopes fissiles n'aura qu'un impact faible sur l'ensemble des branches de l'arborescence, si ce n'est pour l' ^{242g}Am . En effet, les durées de vie sont telles que les processus dominants seront toujours la fission et la capture. Ce ne sera pas le cas pour l' ^{242g}Am dont la demi-vie est de 16 heures. Le flux de transition observé dans le cas du multirecyclage (cf. figure 6.11) sera donc décalé vers des flux plus élevés. Les rapports fission sur capture sont inchangés pour les isotopes fissiles donc les bilans neutroniques seront voisins (sauf dans le cas du multirecyclage, toujours pour les mêmes raisons).

A contrario, les sections efficaces des isotopes qui constituent l'essentiel de la masse augmentent. La première conséquence est la diminution de l'inventaire à l'équilibre. En effet, à l'équilibre le taux de réaction $\sigma N\phi$ doit être maintenu constant, une hausse de la section efficace σ conduisant à une baisse du nombre de noyaux. La hausse concomitante de la masse des isotopes fissiles, très faible au départ (cf. tableau 6.1), ne sera pas suffisante pour influencer l'inventaire global. La deuxième conséquence est la hausse corrélative de la section efficace moyenne des actinides pris dans leur ensemble. Une autre vision consiste à expliciter le taux d'absorption. Comme le bilan neutronique est voisin malgré la baisse des sections efficaces moyennes isotope par isotope et que la masse est aussi plus faible, la seule manière de maintenir le niveau de puissance adéquat pour incinérer les déchets en régime stationnaire est d'avoir une section efficace rapportée à un actinide moyen qui soit plus élevée.

Ces deux effets cumulés, la baisse de l'inventaire et la hausse de la section efficace à bilan neutronique constant, vont dans le sens d'une dilution des actinides. Il n'y aurait donc pas de "surenchère" vers les concentrations élevées comme aurait pu le laisser entendre un raisonnement simpliste évoquant la dégradation du spectre thermique comme cause d'un moins bon bilan neutronique et la nécessité de concentrer davantage les actinides pour maintenir un flux moyen donné. C'est sans compter sur l'importance croissante des neutrons épithermiques.

Ces arguments physiques sont confirmés par les calculs. Reprenons l'étude des deux solutions envisagées ci-dessus pour l'incinération des déchets du cycle ouvert et ceux issus du multirecyclage MOX.

Avec la même configuration, $\phi_0 = 2 \cdot 10^{15}$ n/cm²s, 70 mA et 10 unités, l'évolution des caractéristiques des cœurs brûleurs des déchets du cycle ouvert va dans le sens décrit ci-dessus. Nous avons repris l'ensemble de la démarche à partir d'un nouveau jeu de sections efficaces, obtenu avec une concentration de 0,01 g/cm³ de ^{244}Cm , et en imposant les mêmes contraintes, dont le temps nécessaire pour que l'inventaire radiotoxique rejoigne le niveau de l'uranium naturel. Les principales conclusions sont :

- le taux d'incinération reste inchangé car l'inventaire radiotoxique est toujours dû aux isotopes pairs du curium ;
- la masse d'actinides à l'équilibre passe de 1,54 à 1,24 tonnes, soit une diminution de 20%, correspondant à la hausse de la section efficace moyenne des isotopes pairs du curium ;

- le bilan neutronique des actinides est inchangé ;
- la consommation de neutrons par fission induite par les PF diminue (cf. expression 6.4), le mélange est donc plus réactif, entraînant une augmentation du rayon des cœurs (2,88 m à 2,94 m) ;
- l'effet sur la masse et le rayon conduit à une dilution des actinides à hauteur de $0,012 \text{ g/cm}^3$, soit 20% de moins que la première estimation.

Ceci montre que les neutrons épithermiques permettent d'assurer la convergence du système puisque la concentration après correction est plus faible que celle de départ (cf. figure 6.36). Il existe donc une solution pour l'incinération des déchets du cycle ouvert en spectre thermique, avec une concentration en actinides comprise entre $0,01$ et $0,015 \text{ g/cm}^3$.

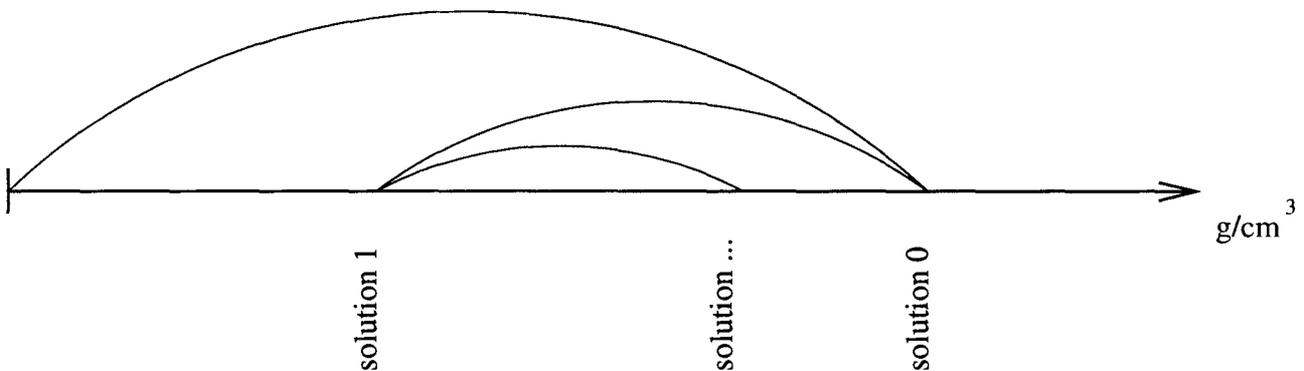


FIG. 6.36: *En partant d'un spectre calculé à concentration nulle, nous obtenons une solution potentielle. La concentration calculée permet de déterminer un nouveau jeu de sections efficaces moyennes qui conduit à son tour à une concentration plus faible. Poursuivre la procédure conduira donc à une solution satisfaisant le critère de cohérence de la démarche.*

Les caractéristiques de puissance sont aussi favorables. La puissance volumique maximale diminue de 6% jusqu'à 716 W/cm^3 , la puissance volumique moyenne à 32 W/cm^3 , mais le facteur de forme reste tout aussi important (22).

Le scénario MOX2 suit la même évolution. Avec une concentration pour la solution 0 de $0,052 \text{ g/cm}^3$ et en prenant comme jeu de sections efficaces moyennes celui calculé pour $0,06 \text{ g/cm}^3$ de ^{244}Cm , la solution 1 s'établit à $0,024 \text{ g/cm}^3$. La convergence de la concentration est assurée. De plus, les paramètres physiques du cœur, puissance, sous-criticité ... varient aussi dans le bon sens. Une solution existe donc pour l'incinération des déchets issus de deux recyclages.

La solution potentielle pour l'incinération des déchets du multirecyclage, initialement avec une concentration de $0,65 \text{ g/cm}^3$, présente la même tendance. La concentration, avec le jeu de sections efficaces moyennes obtenu avec $0,06 \text{ g/cm}^3$ de ^{244}Cm , s'établit à $0,43 \text{ g/cm}^3$. La convergence est donc assurée. Mais, à regarder de plus près les paramètres physiques du cœur, nous constatons que la puissance volumique maximale est supérieure à 800 W/cm^3 , que ce soit pour une solution à 8 ou à 10 unités. Il n'en demeure pas moins que le mécanisme mis en évidence ici s'applique à toutes les concentrations et permet d'envisager des solutions en spectre thermique si la contrainte sur le nombre d'incinérateurs est en partie levée.

Avant de conclure l'étude du spectre thermique, il nous faut revenir sur trois points. Le premier concerne l'évaluation de la section efficace moyenne des produits de fission. Comme nous

l'avons déjà remarqué lors de l'étude sans recyclage, cette section efficace moyenne dépend du temps de présence des PF dans le cœur. Plus ce temps est long, plus la section efficace diminue. Ainsi, pour l'étude du combustible liquide avec retraitements, ce paramètre va dépendre en particulier du flux neutronique : plus le flux est élevé, plus court sera le temps de séjour en cœur. La prise en compte de cette évolution est assez directe compte-tenu de la démarche proposée, mais nous avons préféré la laisser de côté pour l'instant afin de nous concentrer sur les grandes tendances.

Le deuxième point concerne la réalisation pratique d'un cœur à combustible liquide. Nous avons en effet supposé une dilution des actinides dans tout le massif sous-critique. Si, comme c'est le cas pour la proposition de C. Bowman, le sel est regroupé en plusieurs canaux, les effets de concentration sur le spectre neutronique sont à regarder de près.

Finalement, il nous faut revenir sur l'effet de la température du cœur. Nous avons déjà évoqué la possibilité de fonctionner à plus faible température, rendue possible par l'absence de contrainte sur la production d'énergie hormis l'auto-suffisance énergétique, afin de bénéficier de la variation en $1/v$ des sections efficaces. Ce phénomène peut s'ajouter aux neutrons épithermiques, ce qui permettrait de tirer parti (i) des sections efficaces de fission importantes des isotopes fissiles à faible énergie et (ii) des sections efficaces élevées des noyaux fertiles (liste A) dans la zone des résonances.

6.3.4.2 Concentration et spectre rapide

Le problème de la cohérence de la démarche en spectre rapide ne se pose pas de la même manière qu'en spectre thermique. Pour ce dernier, il faut s'assurer que les conditions de thermalisation sont adéquates, donc que la concentration des actinides n'est pas trop élevée. Dans le cas du spectre rapide, le but est de durcir le spectre, de limiter la thermalisation des neutrons, donc de concentrer les actinides. Pour palier à ce problème, nous avons la possibilité de regrouper les actinides dans des canaux, comme pour un combustible solide ou dans la proposition de C. Bowman.

Revenons tout de même sur l'effet de la concentration sur le spectre neutronique. Comme pour le spectre thermique, nous avons choisi un isotope représentatif pour simuler l'ensemble de la composition isotopique, le ^{240}Pu , plutôt que d'étudier des cas particuliers. Du ^{239}Pu est alors dilué dans le cœur afin de maintenir la sous-criticité au niveau souhaité, $k_{eff} = 0,95$. La figure 6.37 illustre les variations de spectre en fonction de la concentration de ^{240}Pu , de 0 à $0,5 \text{ g/cm}^3$.

La composante épithermique du spectre neutronique disparaît progressivement, les neutrons étant capturés par les actinides avant d'être ralentis suffisamment par le plomb. Le spectre se rapproche de celui de référence. Les écarts tiennent à la disposition spatiale des actinides. Les calculs effectués ici reposent sur une dilution des actinides dans tout le massif sous-critique, alors que la référence provient de l'Energy Amplifier dans lequel le combustible est solide, donc regroupé en barreaux. Ceci donne tout de même une idée de l'évolution du spectre avec la concentration.

Mais les paramètres importants sont les sections efficaces. Une étude détaillée montre que la majorité des sections efficaces diminuent lorsque la concentration augmente. Ceci s'explique par la baisse de la section efficace avec l'énergie au-delà de la zone des résonances. La figure 6.35 illustre le cas du ^{239}Pu . Mais, comme pour le spectre thermique, il existe des exceptions : la section efficace moyenne de certains isotopes augmente avec la concentration. La liste exhaustive

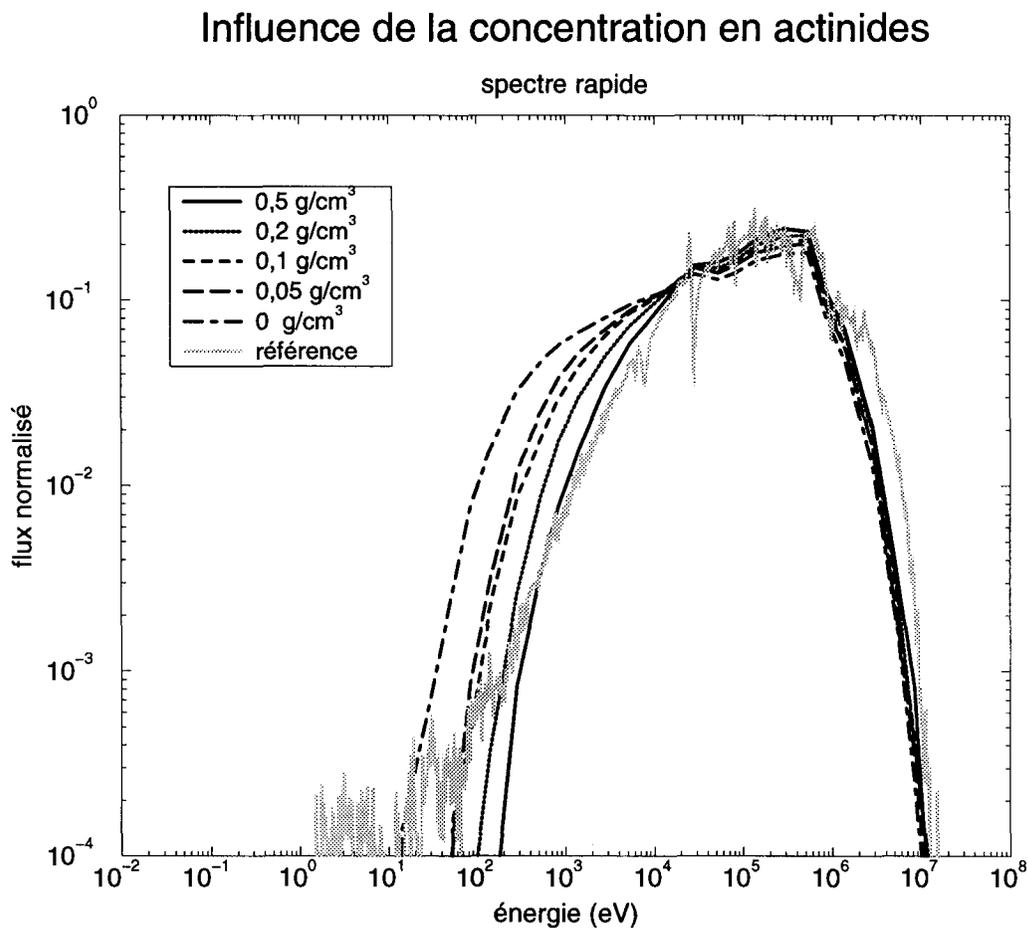


FIG. 6.37: Une forte concentration des actinides permet de durcir le spectre neutronique et de retrouver un spectre voisin de celui de référence. Les écarts sont en partie dus à la répartition spatiale des actinides, dilués dans le premier cas et regroupés sous forme de barreaux en combustible solide dans le second cas.

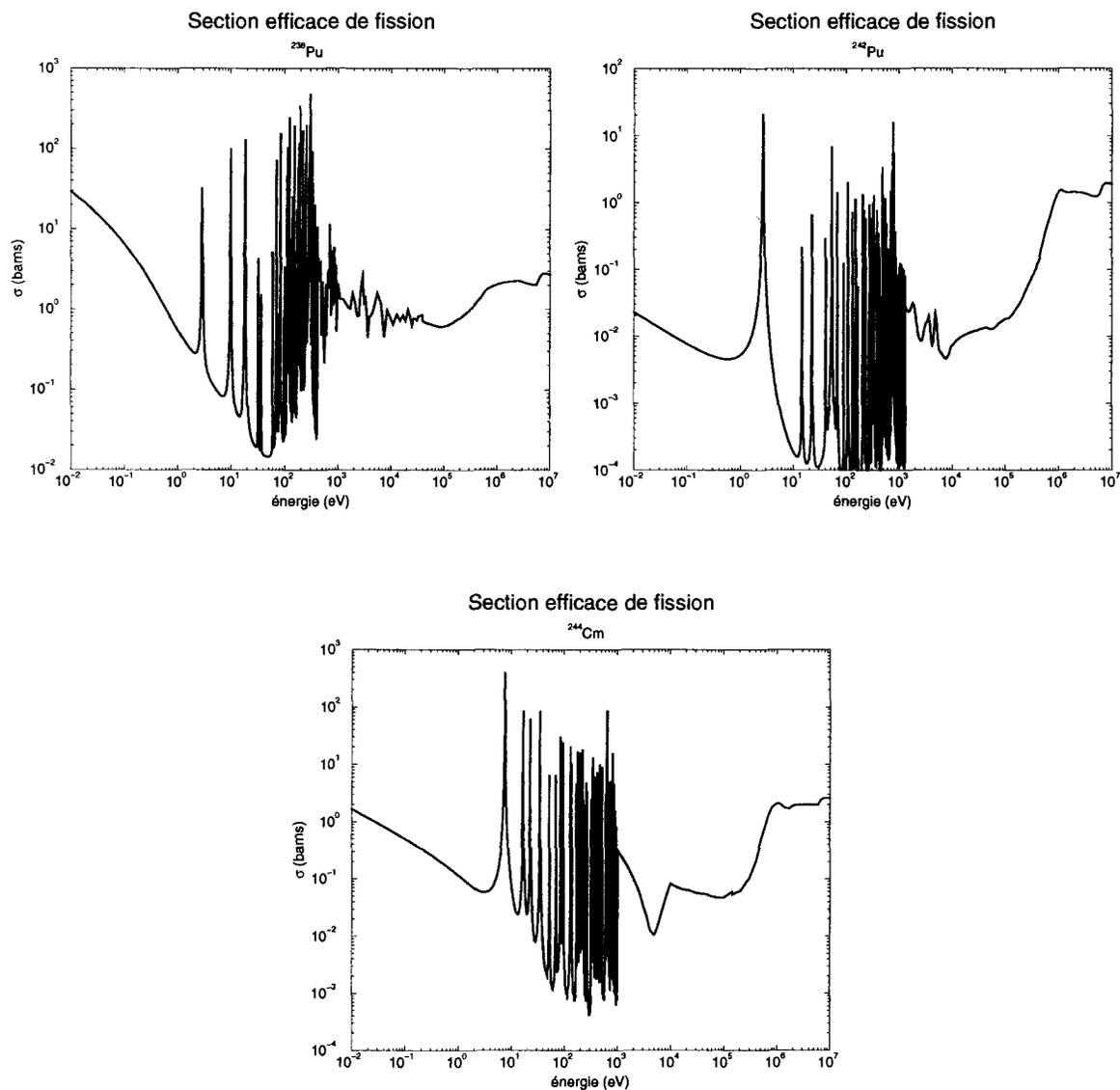
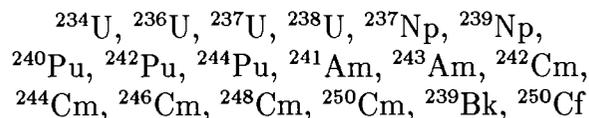


FIG. 6.38: La section efficace de fission des isotopes fertiles et plus spécifiquement ceux de la liste B, remontent au-delà de 100 keV. Ceci entraîne une hausse de la section efficace moyenne de fission avec la concentration. Comme la section efficace de capture décroît avec l'énergie (cf. figure 6.35), le bilan neutronique de ces isotopes est sensiblement amélioré.

de ces isotopes est :

Liste B



Cette hausse provient de la variation de la section efficace en fonction de l'énergie (cf. figure 6.38) : au-delà de quelques centaines de keV, la section efficace de fission augmente pour tous les isotopes de la liste B, alors que la section efficace de capture continue à décroître (cf. figure 6.35).

Notons par ailleurs que les rapports fission sur capture augmentent avec la concentration, effet d'autant plus marqué pour les isotopes de la liste B. Donc, plus le mélange est concentré, plus il est réactif et plus le bilan neutronique est excédentaire.

Mais cette amélioration globale n'a pas autant d'intérêt que le phénomène mis en évidence pour le spectre thermique. En effet, le spectre rapide dispose d'un bilan neutronique très favorable, voire trop favorable puisqu'il faut "gaspiller" une fraction importante des neutrons. Il s'agit donc de trouver un compromis entre la baisse de la section efficace avec la dilution et la hausse concomitante de l'inventaire en actinides. Ne serait-il pas intéressant de diluer les actinides afin de limiter la masse d'actinides à gérer, tout en conservant un bilan neutronique adéquat ? Plutôt que de laisser les neutrons fuir, il s'agirait de les "utiliser" pour diminuer la masse, le rayon des cœurs ... Ceci ouvre, de nouveau, quelques pistes pour la prise en compte des neutrons épithermiques et les avantages qu'ils peuvent apporter.

6.4 Simulation Monte-Carlo

Les résultats mis en évidence ci-dessus reposent sur un calcul analytique du flux avec un traitement à 1 groupe. Il peut être intéressant de comparer ces résultats à ceux d'un calcul Monte-Carlo. Nous avons mené cette comparaison dans le cas de l'incinération des déchets du cycle ouvert en spectre thermique. La solution privilégiée correspond à un flux $\phi_0 = 2 \cdot 10^{15}$ n/cm²s, 70 mA et 10 unités. Ceci conduit à une concentration en actinides de 0,015 g/cm³. Nous avons alors itéré la procédure et calculé les sections efficaces correspondant à cette concentration en ²⁴⁴Cm pour montrer qu'il semblait exister une solution viable.

Nous avons repris les mêmes données pour simuler, grâce au Monte-Carlo MCAP (cf. annexe B.3.4), le spectre d'un tel réacteur hybride :

- un cœur de 2,88 m de rayon avec une cible de spallation en plomb et un réflecteur en graphite de 10 cm d'épaisseur.
- un faisceau de 70 mA et un rendement de conversion de 30 neutrons par proton. Nous n'avons pas simulé le processus de spallation mais juste introduit une source homogène et isotrope de neutrons dans la cible de spallation d'énergie comprise entre 10 MeV et 0,01 eV.
- une température du massif sous-critique de 1000 K.
- un mélange isotopique proche de celui à l'équilibre calculé avec les outils à un groupe développé au chapitre 3. La masse d'actinides introduite dans le cœur est de 1,54 tonnes.

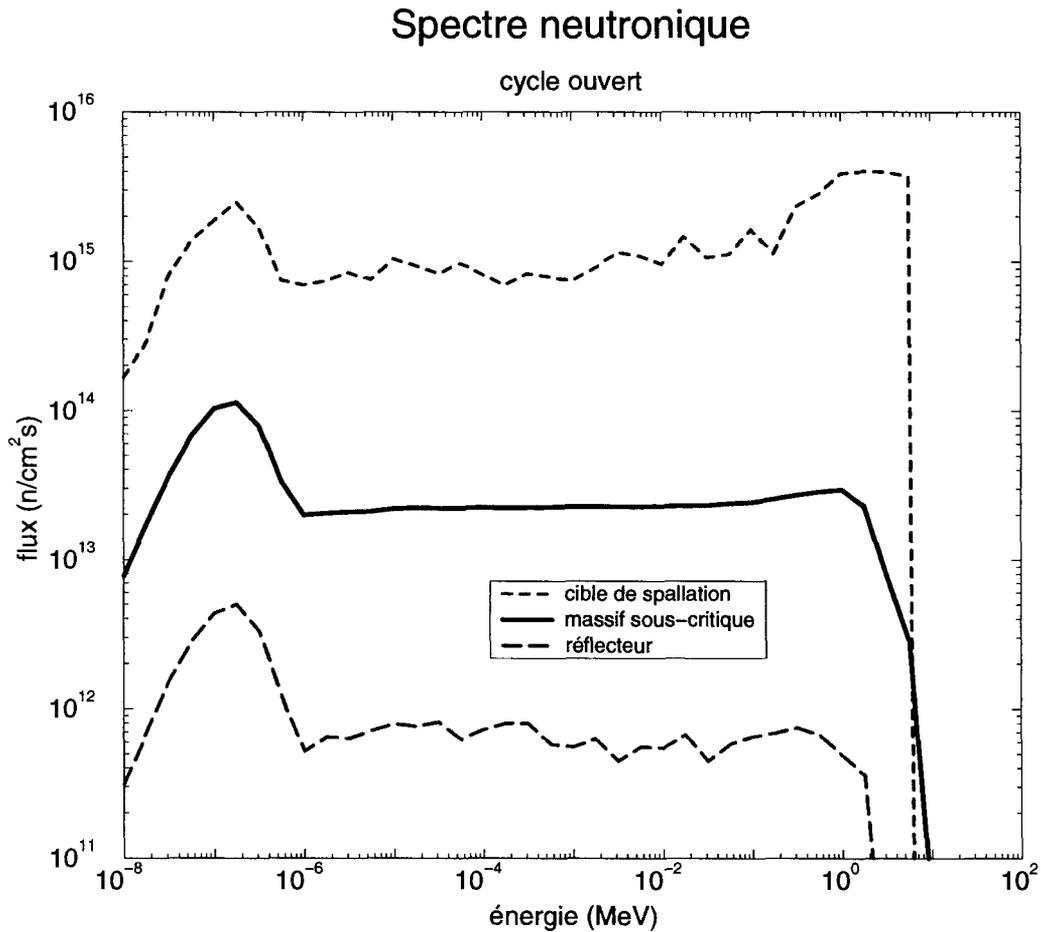


FIG. 6.39: Spectre neutronique obtenu avec une composition isotopique voisine de l'équilibre pour l'incinération des déchets du cycle ouvert. La configuration du cœur correspond à la solution privilégiée $\phi_0 = 210^{15}$ n/cm²s, 70 mA et 10 unités. Le spectre, rapide dans la cible de spallation avec une composante thermique due au retour des neutrons du massif, est correctement thermalisé au sein de la couverture sous-critique.

- les produits de fission sont simulés par un unique isotope, le ⁹⁴Nb. Il faut en effet que cet isotope ait une section efficace proche de 6 barns pour le spectre de référence (cf. figure 2.16). Parmi tous les isotopes disponibles dans les bases de données, seuls 10 satisfont ce critère: ⁵⁰Cr, ⁵⁵Mn, ⁶²Ni, ⁷³Ge, ⁷⁹Br, ⁸⁰Kr, ⁹⁴Nb, ⁹⁵Mo, ¹⁸⁰Hf et ¹⁸³W. Compte-tenu des masses molaires et de la distribution en masse des produits de fission, nous avons opté pour un isotope lourd, le hafnium et le tungstène étant nécessairement exclus.

Le spectre neutronique ainsi calculé est proche de ceux estimés lors de l'analyse de la cohérence interne de la démarche (cf. figure 6.39). Les écarts proviennent à la fois de la finesse de la simulation (pas de notion de groupe d'énergie pour un Monte-Carlo) et de la diversité du mélange isotopique alors que nous n'avions tenu compte que du ²⁴⁴Cm.

Le coefficient de multiplication du milieu est de 0,960 et la puissance dissipée est 3476 MW_{th}, résultats très voisins de ceux estimés par notre démarche. Par contre, le flux intégré sur l'ensemble du massif sous-critique est plus faible dans la simulation Monte-Carlo. Ceci peut s'expliquer par exemple par l'inadéquation de la composition isotopique et du spectre

neutronique résultant de la simulation.

Le code MCAP permet aussi de faire des calculs de dynamique de cœur en déterminant l'évolution de la composition isotopique et sa répercussion sur le spectre neutronique. Nous avons donc repris la simulation ci-dessus en introduisant un chargement continu de déchets (cf. figure 6.40). La masse de produits de fission est constante tout au long de la simulation.

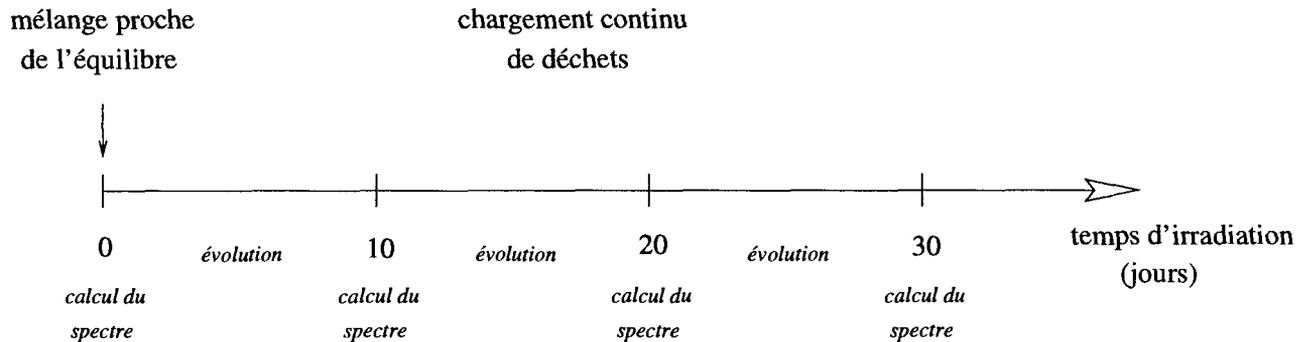


FIG. 6.40: Simulation dynamique de l'incinération du cycle ouvert. La configuration initiale est proche de l'équilibre afin de mettre de côté pour l'instant les problèmes de convergence. Un chargement continu des déchets du cycle ouvert est assuré afin d'étudier l'évolution des paramètres du cœur.

Nous constatons une relative stabilité de la composition isotopique (cf. figure 6.41). La composition initiale est proche de la composition d'équilibre. Le calcul à un groupe permet donc d'estimer de manière adéquate les configurations de réacteurs hybrides. Par contre, la masse de plutonium augmente avec la durée de l'irradiation. L'explication principale vient du niveau de flux. Le flux obtenu avec MCAP est plus faible que celui calculé avec le modèle à un groupe. Le taux de réaction est donc moins important et la transmutation des isotopes du plutonium, principaux composants des déchets, n'est pas suffisante. Ce phénomène s'observe aussi dans la dégradation du spectre neutronique au cours du temps. Après 150 jours, la partie thermique du spectre disparaît progressivement. Les actinides se sont accumulés et leur concentration ne permet plus de thermaliser les neutrons. Ces problèmes sont en partie liés au pilotage du système. Il nous aurait fallu ajuster l'intensité du faisceau de protons afin de maintenir le niveau de flux constant.

Ces quelques remarques nous permettent de mieux comprendre la dynamique d'un tel système à l'équilibre. Mais elle n'est en rien exhaustive puisque il faut étudier à la fois la dynamique avec chargement et la dynamique naturelle, sans alimentation, du système. Retenons juste que les calculs à un groupe permettent de distinguer des solutions potentielles qui doivent être affinées avec un code Monte-Carlo ou déterministe.

6.5 Etude dans le cadre de l'arrêt du nucléaire

L'étude de la transmutation des déchets nucléaires se plaçait dans le cadre du maintien du nucléaire comme source d'énergie. Il faut évoquer maintenant la possibilité d'un arrêt du nucléaire et les problèmes liés aux stocks de matières radioactives. Les solutions "classiques" de stockage ou d'entreposage sont toujours accessibles, mais nous pouvons examiner les possibilités

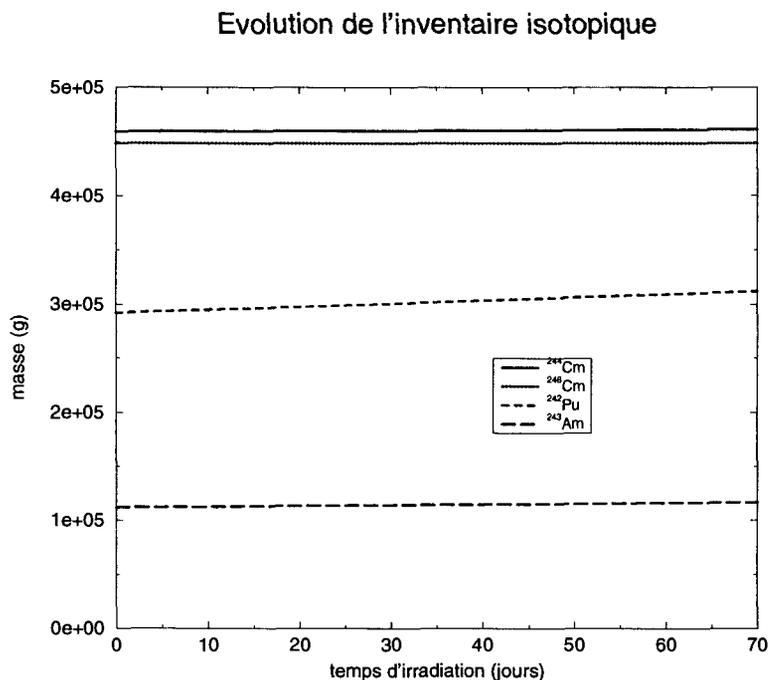


FIG. 6.41: Evolution de la composition isotopique lors de l'incinération des déchets du cycle ouvert. La masse des isotopes du curium est inchangée au cours des 70 premiers jours. Seul l'isotope du plutonium voit sa masse augmenter avec le temps.

d'incinération. Nous ne voulons pas rentrer ici dans les détails de caractérisation de ces éventuels brûleurs, mais juste donner quelques éléments de réflexion.

L'idée fondamentale, proche du concept d'ATW (cf. figure 2.4), est d'utiliser le cœur d'un réacteur arrivé à terme, comme combustible pour un nouvel incinérateur. Le spectre thermique présente, dans cette optique, quelques avantages. Tout d'abord, la composition isotopique d'équilibre, principalement les isotopes pairs du curium, est presque indépendante des déchets à détruire. Les mélanges sont donc peu différents d'un incinérateur de première génération à un incinérateur de seconde génération¹⁷. Les caractéristiques des cœurs seront donc assez voisines. Ce n'est pas le cas en spectre rapide, pour lequel l'homogénéité des sections efficaces, qui a ses avantages pour certains objectifs, est ici un handicap car les générations successives de cœurs pourront être sensiblement différentes alors que l'industrie du nucléaire ne sera pas en mesure d'innover.

Le deuxième avantage du spectre thermique provient des sections efficaces élevées et de l'inventaire réduit en cœur. Avec une masse donnée de déchets, il est possible de construire plus d'incinérateurs en spectre thermique qu'en spectre rapide. Ainsi, si l'aspect financier n'est pas déterminant ou si les problèmes sociologiques prennent le dessus, cette possibilité se traduit par la mise en service d'un plus grand nombre d'incinérateurs et par un traitement du problème des déchets en 10 fois moins de temps.

Ces quelques pistes, insuffisantes pour arbitrer entre les deux spectres, doivent essentiellement nous rappeler que l'objectif poursuivi est le seul critère d'optimisation et que l'arrêt du

17. Nous utilisons la terminologie de génération pour désigner l'origine du combustible des incinérateurs. Pour la première génération, il s'agit des stocks de matières radioactives à détruire. Pour la seconde, et les suivantes, le combustible est l'inventaire en actinides des incinérateurs de la génération précédente.

nucléaire entraîne une modification des contraintes et une redistribution des priorités.

6.6 Conclusion

L'incinération des déchets nucléaires avec un combustible liquide permet de s'affranchir de certains problèmes techniques liés au chargement continu nécessaire pour poursuivre la transmutation jusqu'à des taux suffisamment importants. Mais les produits de fission deviennent alors prépondérants et le bilan neutronique s'en trouve dégradé. La solution passe par le retraitement en ligne du combustible afin de séparer les actinides et les PF. Ce type de configuration peut être entièrement caractérisé et optimisé avec les outils que nous avons développés.

Il ressort tout d'abord que l'inventaire radiotoxique, critère de performance de l'incinération, ne dépend que très peu du flux ou du scénario en spectre thermique. C'est une constante. Il est par contre légèrement plus élevé en spectre rapide, surtout au bout de quelques centaines d'années. En se donnant comme objectif de rejoindre l'inventaire radiotoxique de l'uranium naturel au bout de 200 ans de stockage et en estimant les efficacités de récupération des actinides à 99,9% lors des opérations de retraitement, nous pouvons déterminer la masse de produits de fission en cœur. Il s'avère que ces taux d'incinération ne sont pas si importants, au plus 10% pour le spectre thermique et 20% pour le spectre rapide.

Les deux spectres diffèrent aussi sur le plan de l'inventaire en actinides et du point de vue du bilan neutronique. Le spectre thermique nécessite moins de masse pour détruire une quantité donnée de déchets, mais l'excédent neutronique est beaucoup plus réduit. Ces neutrons, produits par la fission des déchets sont alors utilisés pour réaliser le taux d'incinération, soit $\approx 0,1$ neutron par fission pour les deux spectres quel que soit le scénario, et pour transmuter les PFVL. Parmi ces derniers, nous nous sommes plus particulièrement concentrés sur le ^{99}Tc , l' ^{129}I et le ^{135}Cs . Seul le spectre rapide dispose d'une marge suffisante en terme neutronique pour envisager l'incinération de ces isotopes.

En reprenant les différentes contraintes énoncées au début de cette étude, nous pouvons délimiter les zones de l'espace à 5 dimensions correspondant à des configurations réalistes. En spectre thermique, seul le cycle ouvert et le scénario MOX2 semblent prometteurs, avec respectivement 10 et 9 unités. La contrainte principale est la puissance volumique maximale et les solutions privilégiées sont à forte intensité. En spectre rapide, l'excellent bilan neutronique permet d'envisager la transmutation des déchets de tous les scénarios, PFVL compris (sauf pour le multirecyclage MOX). Mais ce choix a ses inconvénients : la taille des cœurs. Les pertes de neutrons doivent être importantes, conduisant à des solutions à haut flux et faible intensité, tout en vérifiant la contrainte de sous-criticité.

Ces domaines avec au plus 10 unités sont sensiblement plus étendus en spectre thermique si la contrainte sur le nombre d'unités est assouplie. La puissance volumique maximale n'est plus une contrainte pour certains flux et un grand nombre de configurations deviennent envisageables. En spectre rapide, les gains concernent principalement le rayon des cœurs, les solutions à plus faible flux devenant réalistes.

Mais ces parcs d'incinérateurs doivent vérifier la condition de cohérence de la démarche. Cette vérification nous a montré l'importance des neutrons épithermiques pour le spectre rapide puisqu'ils produisent, par l'intermédiaire des sections efficaces moyennes, une contre-réaction qui tend à diluer les actinides. De même, en spectre rapide, ces neutrons peuvent avoir une importance en vue de limiter l'inventaire en actinides tout en conservant un excédent neutronique suffisant.

Ceci met l'accent sur le caractère itératif de la démarche proposée et la convergence vers une solution potentielle cohérente. Mais ces études statiques ne doivent pas faire oublier (i) les problèmes liés aux régimes transitoires, qui, comme nous l'avons montré, peuvent être réduits à quelques années si un plan de chargement adéquat est envisagé et (ii) les problèmes de stabilité de ces solutions et les conditions de pilotage, à la fois de l'accélérateur et de l'alimentation en actinides.

Conclusion

Les déchets produits par les réacteurs nucléaires peuvent être gérés de multiples manières. La solution de référence consiste à les enfouir plusieurs centaines de mètres sous terre dans un milieu géologique stable. Les différentes barrières de stockage doivent limiter le retour à la biosphère des isotopes radioactifs à très longue durée de vie. Mais d'autres solutions sont à examiner, dont l'axe 1 de la loi de 1991 concernant la séparation-transmutation. L'analyse des possibilités d'incinération en réacteurs critiques existants montre les limites de ces réacteurs, tant du point de vue du fonctionnement que de la sûreté et du pilotage. Nous pouvons imaginer un nouveau type de réacteur. Un réacteur avec une source externe de neutrons, le réacteur hybride, est une alternative attrayante.

L'étude de ces nouveaux réacteurs et de leur potentiel de transmutation peut se faire suivant plusieurs orientations. La première, qui se rattache principalement aux domaines des ingénieurs du nucléaire, consiste à partir des réacteurs nucléaires déjà étudiés et de les modifier en vue de l'incinération des déchets. La seconde met plus l'accent, non sur les possibilités techniques actuelles, mais sur l'objectif poursuivi, la réduction de la nocivité des déchets, et cherche à dessiner le réacteur satisfaisant l'ensemble du cahier des charges. Il s'agit, en effet, de prendre en compte l'ensemble des problèmes liés à la physique des réacteurs, cible de spallation ..., mais aussi ceux liés au retraitement.

Nous avons retenu cette seconde démarche. Une hypothèse initiale sur le spectre neutronique permet, grâce à la prise en compte de différents paramètres, de caractériser le parc de réacteurs hybrides adéquat. Parmi ces caractéristiques, la concentration en actinides permet d'accéder aux conditions de thermalisation. Nous pouvons en déduire un nouveau spectre neutronique, sur la base du premier, permettant de recommencer l'ensemble de la procédure et de converger finalement vers une solution cohérente réalisant les objectifs.

La mise en place de cette procédure itérative suppose plusieurs modèles. Le premier concerne le bilan neutronique, que ce soit des actinides, des produits de fission ou des produits de fission à vie longue. Il doit permettre de calculer la composition isotopique et la réactivité globale du mélange. Le deuxième modèle traite des flux de matières et permet de tenir compte des problèmes de chimie du retraitement. Le troisième est un modèle sphérique de réacteur hybride. La juxtaposition de ces trois modèles fait apparaître un espace à 9 dimensions : le spectre neutronique, le scénario, les performances de retraitement y et z , le flux moyen ϕ_0 , le taux d'incinération B , la quantité de PFVL transmutée, le nombre d'incinérateurs n et l'intensité de chaque accélérateur ; espace qu'il convient d'étudier pour trouver les solutions potentielles. Les paramètres physiques des cœurs sont uniques pour chaque point de cet espace. Notons que (i) le rayon est déterminé par une équation implicite et (ii) cette méthodologie s'applique et s'automatise quel que soit le modèle de cœur retenu. En particulier, nous pourrions utiliser un calcul déterministe pour affiner les solutions trouvées avec un cœur sphérique.

On conçoit maintenant comment les divers objectifs permettent de dimensionner de manière

déductive un parc d'incinérateurs. Les modèles permettent de retrouver l'ensemble des grandeurs habituelles du nucléaire et d'explorer de manière exhaustive les solutions d'incinération de déchets nucléaires.

Nous avons donc appliqué cette méthode à trois cas particuliers représentatifs : le combustible solide sans retraitement, le combustible liquide sans retraitement, le combustible liquide avec un retraitement en ligne, donc à l'équilibre (cf. tableau 6.14). Et ce pour deux spectres : le spectre thermique et le spectre rapide.

Cycle	Paramètre	Spectre	
		rapide	thermique
combustible solide sans recyclage	$G_{radiotoxique}$ $T_{irradiation}$	20 à 50	5 à 10
		30 ans	200 jours
Alimentation continue nécessaire			
combustible liquide sans recyclage	$G_{radiotoxique}$ facteur limitant	< 4	< 3
		dilution PF	dilution PF
Intérêt limité et uniquement en thermique			
combustible liquide avec recyclage	$G_{radiotoxique}$ teneur PF PFVL facteurs limitants	200	200
		20%	10%
		oui	non
		rayon	p_{max} et rayon
Plus large éventail en rapide			

TAB. 6.14: Conditions d'incinération de déchets nucléaires et gain radiotoxique pour chaque spectre suivant le cycle retenu.

Le premier cas fait apparaître des différences fondamentales entre les deux spectres, à la fois du point de vue de la réduction de l'inventaire radiotoxique, que de la vitesse d'incinération ou de la distribution de puissance. Le bilan neutronique est favorable en spectre rapide et plus limite en spectre thermique. Une alimentation continue est nécessaire afin d'obtenir des taux d'incinération suffisants. En spectre thermique, l'incinération permet d'espérer des gains compris entre un facteur 5 et 10 pour les scénarios cycle ouvert, MOX1 et MOX2. Pour un flux de 10^{15} n/cm²s, ces gains correspondent à 200 jours d'irradiation. L'incinération du multirecyclage MOX n'est, quant à elle, pas réalisable. En spectre rapide, par contre, les durées d'irradiation sont de 30 ans pour un flux de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s, mais les gains sont plus importants : supérieurs à un facteur 20. Un réacteur sur la base des HTR version allemande avec un lit de pastilles sphériques pourrait être la solution adaptée à ce schéma d'incinération, en raison de son chargement continu et de l'homogénéité du cœur, pourvu qu'il existe un moyen rapide de trier les éléments de combustible.

Les problèmes techniques liés à ce chargement continu peuvent aussi être simplifiés si le combustible est liquide. En fait, on montre que cette gestion n'a aucun intérêt en spectre rapide car les gains sont nettement plus faibles. En spectre thermique, elle peut avoir des avantages de simplification, mais les gains ne sont pas meilleurs que ceux du combustible solide.

Le principal attrait du combustible liquide réside dans le retraitement en ligne, le troisième cas. L'inventaire radiotoxique final, dicté par les performances de la chimie et par le taux d'incinération, est voisin pour les deux spectres, quel que soit le flux neutronique ou le scénario. L'inventaire massique est 20 fois plus important en spectre rapide qu'en spectre thermique. La situation s'inverse pour le bilan neutronique des actinides. Quant aux produits de fission, on

constate que leur consommation de neutrons par fission est identique pour les deux spectres si la contrainte de radiotoxicité est de rejoindre le niveau de l'uranium naturel après 200 ans de stockage. Et seul le spectre rapide permet de transmuter les produits de fission à vie longue. L'étude plus fine des différentes contraintes physiques sur les cœurs montre qu'avec au plus 10 unités, le spectre thermique peut incinérer les scénarios cycle ouvert et MOX2. Les solutions privilégiées sont à forte intensité pour des flux de $2 \cdot 10^{15}$ et $5 \cdot 10^{15}$ n/cm²s respectivement. Le spectre rapide favorise les solutions à haut flux et faible intensité, quel que soit le scénario : cycle ouvert, MOX1, MOX2 ou multirecyclage MOX. Si la contrainte sur le nombre d'unités est en partie levée, les domaines autorisés "éclatent" en spectre thermique en raison de l'évolution de la puissance spécifique maximale.

Ces différentes solutions vérifient la condition de cohérence de la démarche, à savoir l'adéquation entre le spectre obtenu dans la-dite configuration et l'hypothèse initiale sur celui-ci. Cette analyse a permis de mettre en évidence l'importance des neutrons épithermiques. Les intégrales de résonances élevées des isotopes fertiles permettent (i) en spectre thermique, de diluer les actinides et d'améliorer la thermalisation, et (ii) en spectre rapide, d'augmenter la section efficace afin d'utiliser le surplus neutronique pour limiter l'inventaire plutôt que de le perdre par fuites ou captures parasites.

Le spectre rapide offre donc un plus large éventail de solutions, à la fois pour le combustible solide et le combustible liquide, mais aussi pour la transmutation des produits de fission à vie longue. Il convient d'approfondir ces solutions tout en sachant que l'arbitrage entre elles ne relève plus nécessairement du domaine scientifique, mais nécessite la prise en compte des contraintes d'ordre stratégique ou économique comme le maintien des compétences, la possibilité de faire de la surgénération ou la perception de l'opinion publique.

Publication associée A

Estimation of radiation damage induced by a proton beam in a hybrid reactor window

F. Lelièvre¹, S. Vuillier², R. Legrain²

1 : DAPNIA/SPP, CEA/Saclay, 91191 Gif sur Yvette CEDEX, France

2 : DAPNIA/SPhN, CEA/Saclay, 91191 Gif sur Yvette CEDEX, France

Paper in preparation, to be submitted to Nuclear instruments and Methods

A.1 Introduction

With the increasing importance of the nuclear waste problem, hybrid reactors seem to some as a plausible solution. Such a reactor is the reunion of a proton accelerator and a sub-critical blanket containing the actinides which are to be destroyed. One of the critical points of such a system is probably the interface between the accelerator and the blanket, an interface which in some designs is to be a thin tungsten window [47].

The proton beam going through this window will no doubt induce many nuclear reactions and elastic scattering, bringing about the displacement of many atoms as well as their transmutation. The damage in the window has to be estimated correctly and taken into account for the technical design of such a piece [44].

Through simple calculations we are going to estimate this damage for the spallation process, which is always considered, and for the elastic scattering sometimes neglected. The whole analysis will be guided by experimental results for the cross-sections for both processes. With the recoil energy, and the amount of damage induced by a specific nuclei produced by the reactions, we can calculate the damage per year in the window. The window will of course be

considered as a thin target¹⁸ which enables us to take into consideration only one reaction per incoming proton. This hypothesis also enables us to put aside for now the problem of hydrogen and helium production through the spallation reactions. A correct assessment of the impact of these two gases will have to be done for the window.

The different windows we are going to study in this article are:

- a tungsten window of 3 mm in width irradiated by 1 GeV, 10 mA parabolic proton beam with a radius of 7.5 cm, which gives $113 \mu A/cm^2$ for the maximum power density [47];
- an iron window under the same conditions.

The choice of the two materials was based on the existing project and the need to distinguish between heavy and light nuclei.

A.2 Irradiation damage

The proton beam interacts with the nuclei of the window in many different ways. The end product however is always the same: a recoiling nuclei which is going to interact with the matrix to produce damages. Before going through the calculations, we have to understand the process through which this recoiling nuclei induces damage in the window.

A.2.1 Mechanism

We just give an overview of the general mechanism here, the more detailed explanations being available elsewhere [5, 86, 87, 88].

The initial proton induces a given reaction in the window: spallation or elastic scattering. In the first case, many secondary particles are produced (nuclei, protons, neutrons, ...), in the second the initial atom can gain sufficient kinetic energy to leave the lattice site. In both cases, this creates a vacancy and a certain number of interstitial atoms. The recoiling nuclei¹⁹, which are similar to the Primary Knock-on Atom (PKA) [88], follow a trajectory in the window which branches out in a tree-like structure. It loses its energy through elastic scattering with electrons and inelastic scattering with the atoms of the matrix. Only the second leads to damage in the window. The ratio between each process depends on the energy of the nuclei (see figure A.1) [86]. The higher the energy, the higher the percentage of loss due to the electrons.

This result is similar to the Bragg curve which gives the distance traveled by a particle in a given medium, and enables us to define a damage energy T_{dam} [87], fraction of the initial recoiling energy that truly contributes to the damage production in the matrix.

The occasional elastic collisions with the atoms of the matrix can lead to a Frenkel pair, an interstitial atom and a vacancy. Indeed, if the kinetic energy of the nuclei is sufficient, through the collision it can convey enough energy to the atom of the matrix to make it leave its lattice site, creating an empty lattice site and an extra atom in the crystal. We now have two nuclei which propagate in the window, each creating its own Frenkel pairs. This explains the origin of the observed tree-like structure and leads to the notion of **displacement per atom (dpa)**: the number of times a given atom in the matrix has been moved from its lattice site, without taking

18. If we consider a window composed of a material whose density is ρ , with A the atomic weight, l the height of the window and \mathcal{N} , the condition for a thin target $\frac{\mathcal{N}l\rho}{A} \sigma \ll 1$ where σ is the cross-section for all processes.

19. We do not take into account the light particles that are produced through spallation.

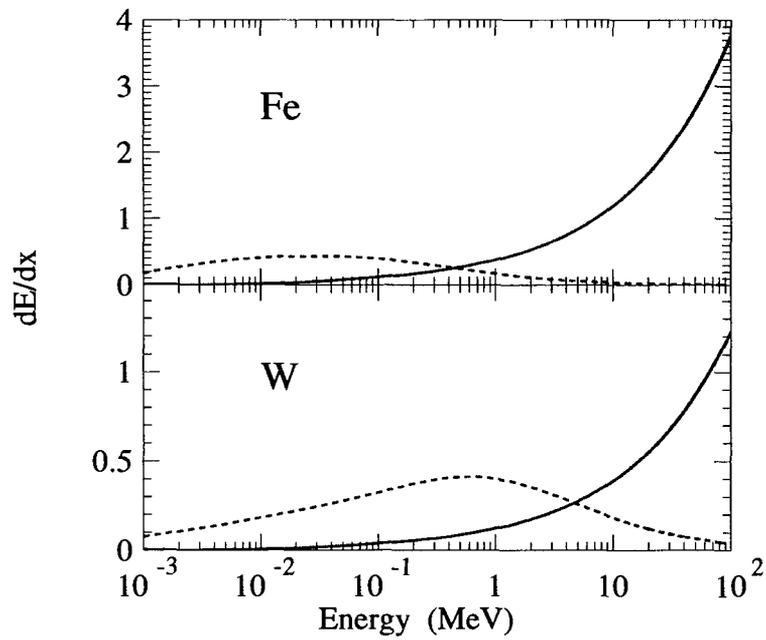


FIG. A.1: *LSS* electronic (solid line) and nuclear (dotted line) stopping powers for an iron nucleus recoiling in an iron matrix (top panel) and a tungsten nucleus recoiling in a tungsten matrix (bottom panel). As the recoiling nuclei propagates through the window matrix, it losses its kinetic energy through elastic scattering with the electrons and through inelastic scattering with the atoms of the matrix. The importance of each process depends on the initial energy of the atom.

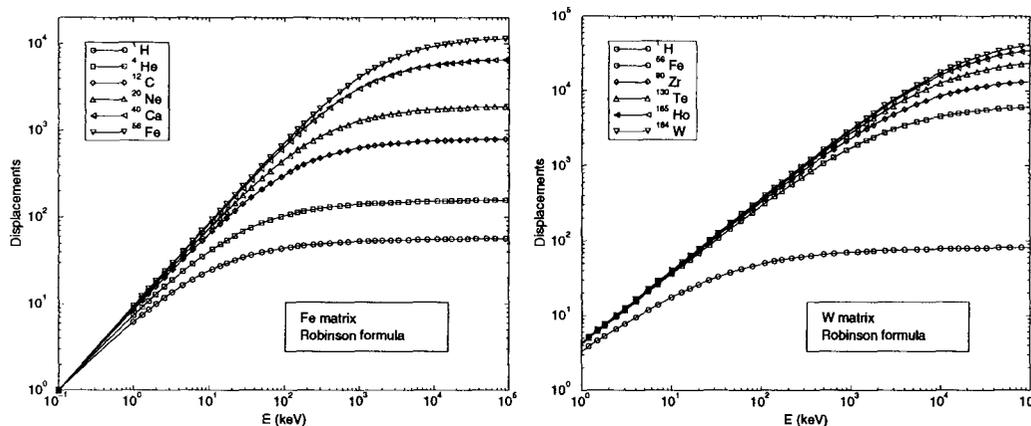


FIG. A.2: As the kinetic energy of the PKA increases a greater portion of its initial energy is lost through elastic scattering with the electrons and therefore does not contribute to the dpa calculation and damage production. This calculation has been performed with the LSS theory.

into account any time-dependent evolution of the Frenkel pairs (see below). It is an indication of the total initial energy that is available to create damage [89].

The dpa energy dependence is not linear. As the energy of the PKA increases, the number of dpa saturates at a certain level (see figure A.2). The damage energy T_{dam} does not increase correspondingly due to the greater importance of the elastic scattering on the electron during the slowing down process as we discussed (see figure A.1).

This cascade develops in the matrix over a period of time of about 20 ps [87], producing a number of atoms moving at near-thermal velocities, the interstitial atoms of the Frenkel pairs. Many of the defects, interstitials and vacancies, are unstable and rearrange rapidly into more stable configurations: they either recombine (vacancy and interstitial “annihilate”) or produce clusters (cavities, loops) [5, 88]. In fact, most of the initial defects, which are given by the dpa calculations, disappear through recombination. We can define the irradiation efficiency as the ratio of the number of free defects, after recombination, to the total defect production (dpa) [90]. This ratio is approximately 15% when we consider an individual cascade. When we look at a greater number of cascades the ratio varies from close to 1 for high energy electrons to a few percent for heavy ions or neutron induced cascades.

This process, which can last from a few picoseconds to a few seconds is extremely temperature dependent: the ratio $\frac{T}{T_f}$, with T_f the fusion temperature, dictates the evolution of the different Frenkel pairs. It is not our purpose to go into any detail here about this process, we would like just to point out the geographical particularities which follow [87, 89]:

- there occurs a spontaneous “segregation”, the vacancies are mostly concentrated in the cascade core and the interstitial at the periphery of the cascade;
- the irradiation efficiency decreases with the damage energy T_{dam} . The higher kinetic energy of the PKA, the more recombinations occur. The lower the energy of the PKA, the greater the chance of survival of the defect in the matrix²⁰.

²⁰. We will come back to this point further on when we will discuss the difference between spallation damage production and proton elastic scattering damages.

To conclude with this presentation of the irradiation induced damage, we must evoke the different macroscopic consequences [5, 87, 90]. There are two main contributions to the changes in the macroscopic properties. The first comes from the remaining Frenkel pairs (vacancy and interstitial), extremely mobile which can induce chemical precipitation and accelerate the metallurgical processes, the mechanical properties. The second comes from the clusters which form either from immediate recombination (during the first second or so) or from the accumulation over time of the defects through their migration in the matrix. The clusters can then change the physical properties of the material. The different macroscopic effects are:

- changes in mechanical properties – elastic modulus, yield stress, tensile strength ;
- swelling (dilatation with constant shape) ;
- growth (change of shape at constant volume) ;
- irradiation creep (deformation under constant applied stress).
- irradiation induced segregation, diffusion of chemical species, induced and enhanced precipitation in alloys.

The changes in the mechanical properties can render the material useless. It is therefore important to quantify adequately the induced damage and to evaluate correctly all the contributions to the displacements.

A.2.2 Calculation tools

Having explained the general mechanism through which irradiation changes the properties of the matrix, we go through the method used to calculate the number of displacements per atom (dpa). We refer to this notion only to quantify the amount of damage induced by the proton beam, leaving aside for now the different problems of recombination. We are going to use two different methods to calculate the dpa. One is based on an atomic theory by Thomas and Fermi, the NRT model [88, 91, 92, 93], the second, a simulation of the cascades [94, 95].

A.2.2.1 LSS theory

The number of displacements produced by a recoiling nuclei, with energy E_r , is related to the displacement energy E_d by the Kinchin-Pease formula [88, 91]:

$$\nu(E_r) = \eta \frac{E_d}{2 E_s} \quad (\text{A.7})$$

where E_s is the threshold energy and $\eta = 0.8$ a normalization factor.

We must now link the recoiling energy and the displacement energy. The nuclei lose most of its energy through electronic scattering and only a small part through nuclei scattering (see figure A.1). Only the latter leads to damages in the window. An evaluation of this part of the dissipated energy can be made with the LSS theory based on an atomic theory by Thomas and Fermi.

Define a reference energy, using the subscript 1 for the projectile (the recoiling nuclei) and the subscript 2 for the atom of the matrix:

$$E_L = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{a_{12}} \frac{1 + A}{A} \quad (\text{A.8})$$

with

$$a_{12} = \left(\frac{9\pi^2}{128} \right)^{1/3} \frac{a_H}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}}$$

the screening length and $a_H = 52.92 \text{ pm}$ the Bohr radius.

Given L the cascade multiplication threshold²¹, the expression of the damage energy is :

$$T_{dam}(E) = \frac{E}{1 + k_L g(E/E_L)} \quad (\text{A.9})$$

with

$$g(\varepsilon) = \varepsilon + 0.40244 \varepsilon^{3/4} + 3.4008 \varepsilon^{1/6} \quad (\text{A.10})$$

$$k_L = \frac{32}{2\pi} \left(\frac{m_e}{M_2} \right)^{1/2} \frac{(1+A)^{3/2} Z_1^{2/3} Z_2^{1/2}}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/4}} \quad (\text{A.11})$$

This enables us to calculate easily the amount of displacements induced per recoiling nuclei:

$$\nu(E) = \frac{T_{dam}(E)}{T_{dam}(L)} \quad \text{if } T_{dam}(E) \geq T_{dam}(L) \text{ and } E \geq L \quad (\text{A.12})$$

Figure A.2 shows the number of displacements calculated with this method as a function of the energy of the recoiling nucleus.

Having discussed this approach to the calculation of displacements, we can turn to the simulation calculations which were used to compare results.

A.2.2.2 DIANE code

The simulation codes describe explicitly the cascade induced by the PKA through two methods:

- by following the collective movement of the nuclei and electron in mutual interaction (molecular dynamics);
- by the mean free path in the BCA approximation of binary collisions, either through deterministic or Monte-Carlo codes.

The DIANE code is part of the second category. It uses the Alberman and Lesueur model [96] which gives the number of displaced atoms without using the damage energy. The Lindhard equation, modified to take into account a polyatomic matrix, is solved by iteration.

A.2.2.3 Comparison

We can compare the results of both tools with respect to the dpa production for a given recoiling nuclei. The results, given figure A.3, are consistent for both calculations.

With these methods to calculate the dpa for each window, we are now going to look at each process in detail: spallation and elastic scattering; to assess the contributions of each in the global damage of the window.

21. The exact definition of the cascade multiplication threshold is given by $L = E_b + E_c + E_d$ with E_b the energy binding an atom to its lattice site, E_d the minimum energy for displacing an atom permanently from its lattice site and E_c the maximum energy for the capture of a slow projectile by a vacant lattice site. The equation giving L then states that an incoming nuclei with energy $E \geq L$ can multiply the cascade, produce a new Frenkel pair without falling into the newly created vacant site. With [88], we have $L = \frac{2E_d}{\eta}$.

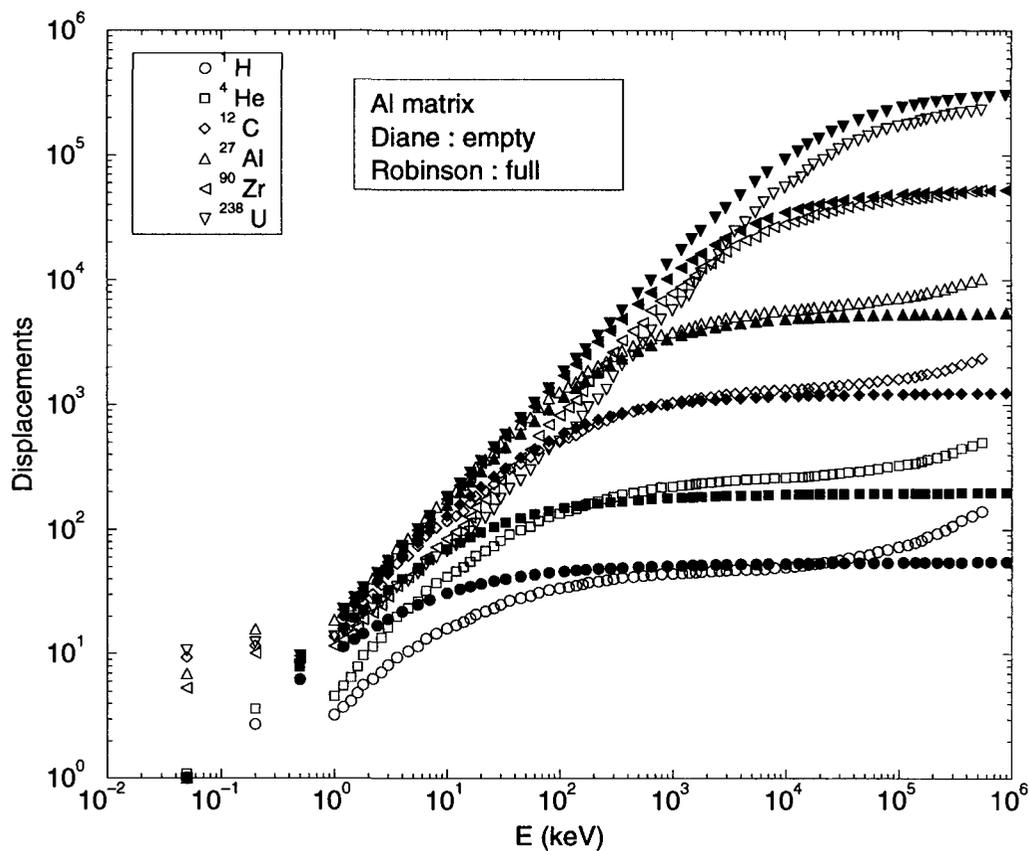


FIG. A.3: Comparison of the number of displacements calculated with the LSS theory (full symbols) and the DIANE code (empty symbols) as a function of the energy of the recoiling nucleus.

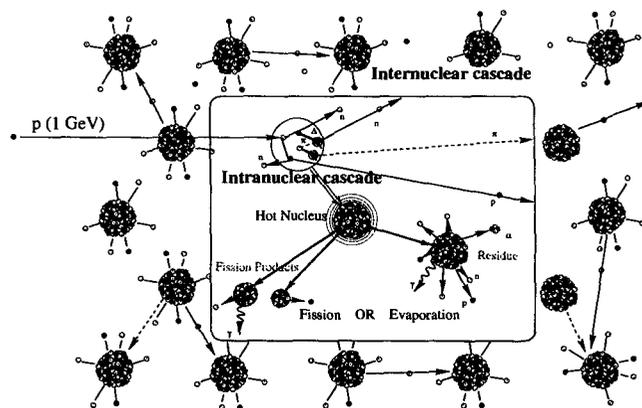


FIG. A.4: *The high energy proton which hits a nuclei induce a spallation, a combination of nucleon-nucleon collisions leading to the emission of high energy particles and leaving the initial nuclei in a excited state from which it decays by evaporation of nuclei or fission.*

A.3 Spallation reactions

A.3.1 The process

A spallation reaction is a nuclear inelastic interaction induced by high energy protons ($E \geq 100$ MeV). These reactions are modeled by a two step process [97] (cf. figure A.4). The first step, in which nucleon-nucleon collisions are taking place, is described by intra-nuclear cascade codes and leads to the production of energetic light particles and of an excited residual nucleus. In the second step, this nucleus decays by particle evaporation and fission (for heavy nuclei).

The production cross-sections and the recoil energy of the residual nuclei are necessary for an evaluation of the dpa. These quantities have been calculated with a Monte-Carlo simulation coupling an intra-nuclear cascade code [98, 99] and a statistical desexcitation code [100] including evaporation and fission. The recoiling energy of the fragments was evaluated event by event taking into account momentum conservation for each particle emission. The average recoil energy of the residues was then calculated.

First, the results of these codes have been compared to existing experimental data and to systematics.

A.3.2 Comparaison to experimental data

A.3.3 Cross-sections

Experimental results exist for the reaction of 754 MeV protons with tungsten [101] and of 600 MeV protons with ^{56}Fe [102]. The results of the code calculations are compared to these data in figures A.5 and A.6. The agreement is good and certainly sufficient for the dpa calculation. In particular, the ratio of the evaporation decay (masses above 110) to the fission decay (masses below 110) in the case of the tungsten target is correctly reproduced.

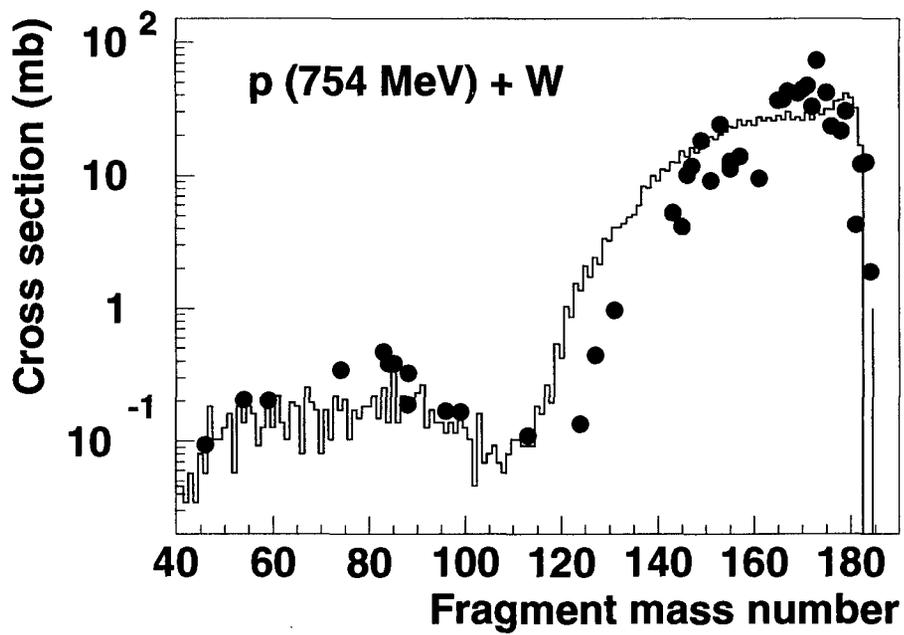


FIG. A.5: The spallation of tungsten by 1 GeV protons leads to the production of heavy nuclei and fission products. The data [101] are reproduced by the calculation (solid histogram).

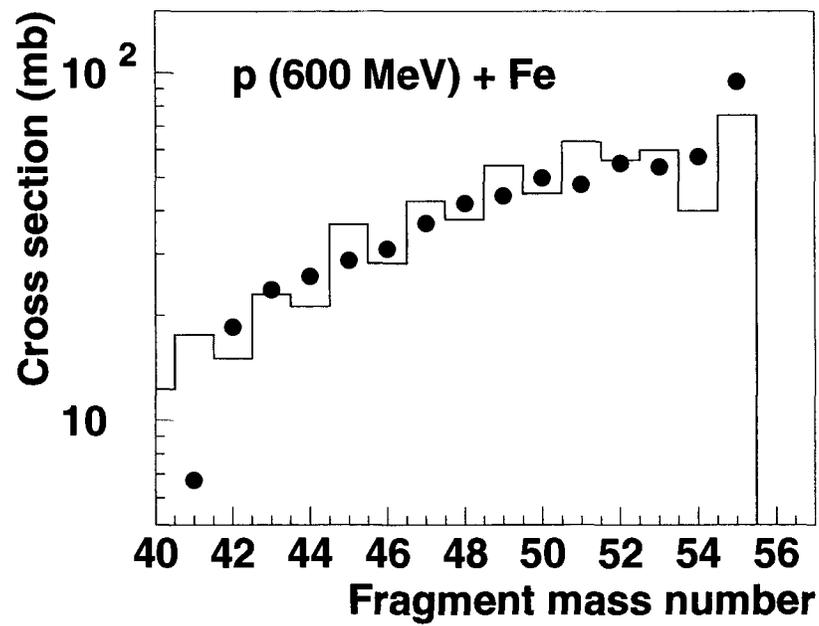


FIG. A.6: Cross-sections for fragment production for 600 MeV $p + Fe$. Points: data [102], solid histogram: the calculation described in the text.

A.3.4 Recoil energy

The calculated average recoil energies can be compared to the systematics of the momentum distribution of spallation reactions studied in [103]. The average recoil momentum was calculated as:

$$P_{rms} = (2 A_F \langle T_F \rangle 931.5)^{1/2} \quad (\text{A.13})$$

in which A_F is the mass number of the recoiling nucleus and $\langle T_F \rangle$ the calculated average recoil energy of this fragment.

P_{rms} is plotted in figure A.7 as a function of the fragment mass number for the interaction of 1 GeV protons with Fe and W targets.

The solid lines in figure A.7 represent the systematics of P_{rms} [103, 104]:

$$P_{rms} = \sqrt{\frac{3p_F^2 A_{obs}(A_{init} - A_{obs})}{5(A_{init} - 1)}} \quad (\text{A.14})$$

in which p_F is the Fermi momentum and A_{init} is the mass number of the nuclei of the matrix (the initial nuclei). Fermi momenta of 260 MeV/c and 265 MeV/c [105] were used for Fe and W respectively. The results of the Monte Carlo calculation of the average recoil momentum are in reasonable agreement with the systematics for the spallation residues decaying by evaporation. Higher values of the kinetic energies, characteristic of fission, are obtained for fission fragments.

A.3.5 Displacements per atom

Having calculated the different probabilities, cross-sections, for the production of a given nucleus and its recoiling energy, we can evaluate the dpa induced in the window by the spallation. The results will be compared, on Aluminum, with the results given in [106].

The displacements per atom is the sum of the different contribution of each recoiling nuclei produced by the spallation process. If we write $dpa(E(A_{obs}))$ the number of dpa produced by a recoiling nucleus of mass A_{obs} , the number of each such process per second is given by:

$$\sigma(A_{obs}) \frac{\Phi_t}{S} \quad (\text{A.15})$$

with Φ_t the total number of protons going through the window per second, and S the surface of the beam at the window.

The total number of dpa due to the spallation is then²²:

$$dpa/s = \sum_{A_{obs}} \sigma(A_{obs}) dpa(E(A_{obs})) \frac{\Phi_t}{S} \quad (\text{A.16})$$

We can now calculate the dpa for the different windows. As we saw there are two different possibilities for the displacement calculations. The differential cross-sections for the protons are of course always determined by the Monte-Carlo code described above. We will use the notation:

LSS LSS theory is used for the displacements;

²² Indeed, the total number of displacements is the product $\sigma(A_{obs}) dpa(E(A_{obs})) \Phi_t N_s$ with N_s the number of atoms per cm^2 . When calculating the dpa, we have to calculate the number of displacements *per atom* under the beam of protons and therefore divide by $N_s S$ with S the surface area of the beam.

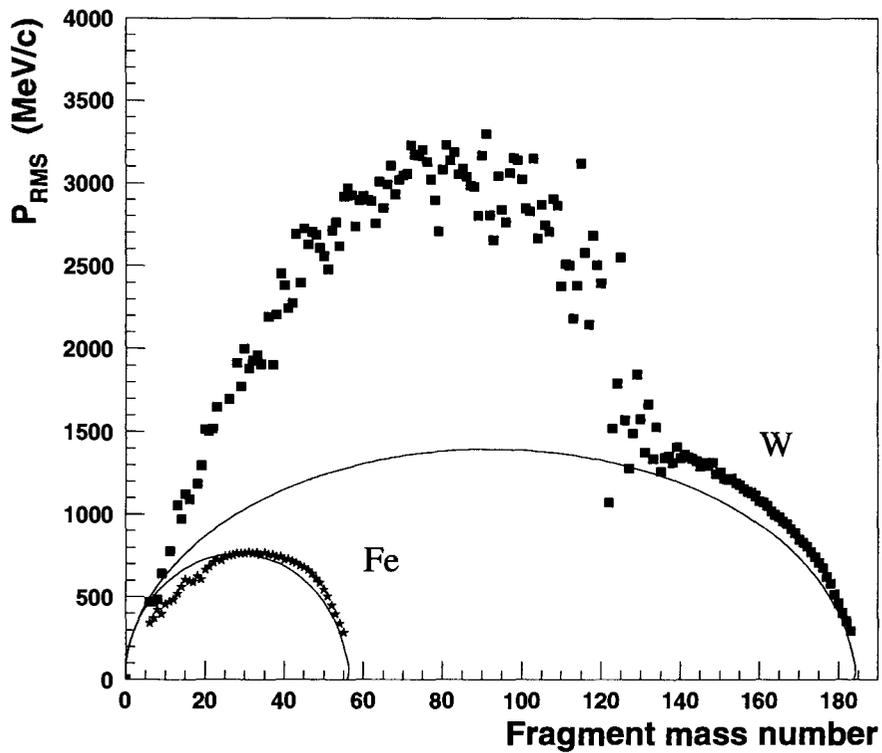


FIG. A.7: Average recoil momentum of residual nuclei as a function of the fragment mass number calculated with the spallation code described in the text (full symbols) for the interaction of 1 GeV protons with Fe and W. The calculations agree with the systematics (solid line) for spallation residues while fission fragments have higher recoil momenta.

DIANE the results of the simulation code are used.

Before going into the calculations for the different windows considered, we can check that we find the adequate results for an aluminum window [106]: the displacements per atom induced by a $4 \mu A/mm^2$ 600 MeV proton beam in a 10 mm thick window have been calculated using the HETC code [107]. Our calculation of the dpa per second for a 600 MeV proton beam on an aluminium target using the LSS theory is in agreement with the results of [106] as shown in the following table. Both values are given for $113 \mu A/cm^2$:

Al	[106]	LSS
dpa/s	$8.76 \cdot 10^{-7}$	$8.17 \cdot 10^{-7}$

Figure A.8 shows the variation of the number of displacements as a function of the recoiling nuclei for recoil energies calculated for reactions of 1 GeV protons on tungsten and iron calculated using the LSS theory. These distributions exhibit a peak at $\sim 65\%$ and 80% of the target mass number for tungsten and iron targets respectively. But taking into account the production cross-sections to get the contribution to the dpa/year of each recoiling nucleus, this peak moves to higher mass numbers (cf. figure A.9). One can note that the contribution of fission products to the dpa is small although their recoil energy is larger than the recoil energy of evaporation residues.

The distribution shown in figure A.10 is obtained using the displacements calculated with the DIANE code. The results are very similar to those obtained with the LSS theory. Summing the contributions of all recoiling nuclei, the values of the dpa per year shown in the following table are obtained. Both calculations agree and yield rather high values of dpa.

Method	Fe	W
LSS	74	200
DIANE	78	222

In tungstene, the nuclei which cause the most damage in the window, with $A \approx 120$, are not produced in important quantities (see figures A.8 and A.9). It is mainly the heavy nuclei, $A \approx 160$, with a kinetic energy of $4 \sim 5$ MeV, which lead to the most dpa.

For the iron window, because of the absence of the fission process, the situation is the same for the displacement production and the dpa production: $A \approx 40$. The corresponding kinetic energy is $4 \sim 7$ MeV, similar to the energy for the tungstene window.

These results, which seem high compared to neutron damage in critical reactors as we will see, are similar to those in [47] which gives 200 dpa for 7000 hours at $113 \mu A/cm^2$, using the LSS theory.

A.4 Elastic scattering

A second reaction we have to take into account is the elastic scattering of the protons on the nuclei of the window. This mechanism of dpa production is not often taken into account when analyzing the beam window. Indeed, the scattering cross-sections decreases rapidly with the angle of diffusion: only forward scattering can be responsible for displacements. But at such angles, the recoil energy is very low, which means that few displacements are induced. Such a reasoning leads to neglect the elastics scattering in the analysis.

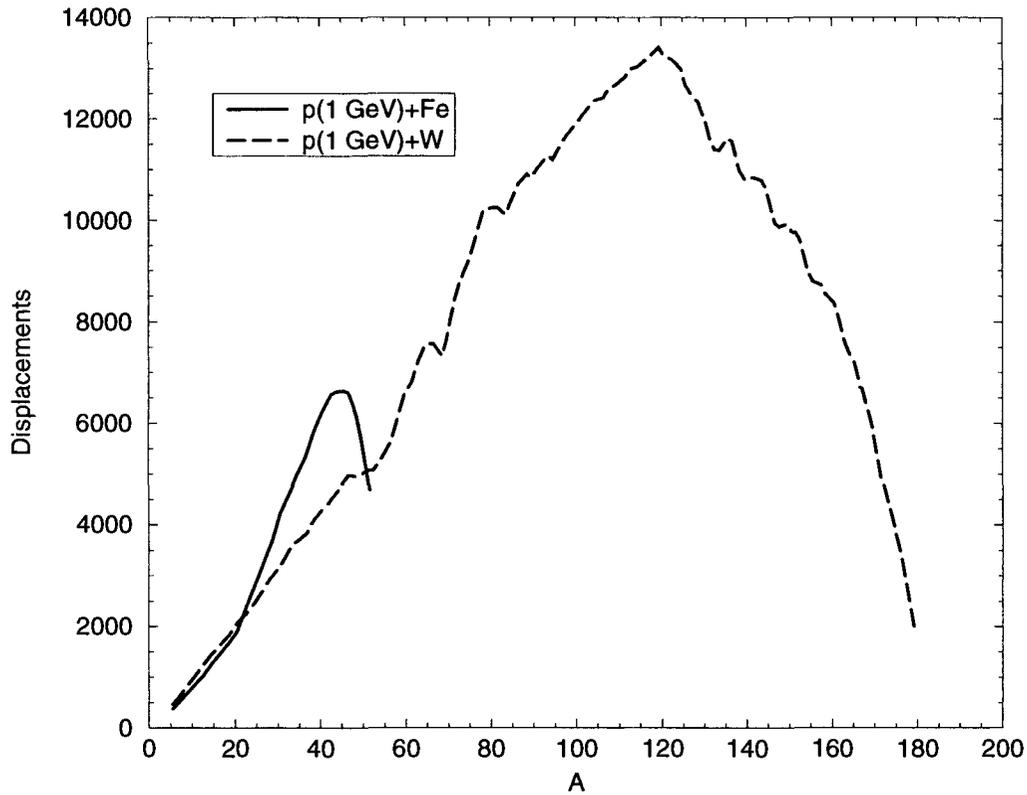


FIG. A.8: The distribution of the displacements (without taking into account the probability of such an occurrence) as a function of the recoiling nucleus mass number calculated using LSS theory from the average kinetic energy of the recoiling nuclei for 1 GeV protons on Fe (solid line) and 1 GeV protons on W (dashed line).

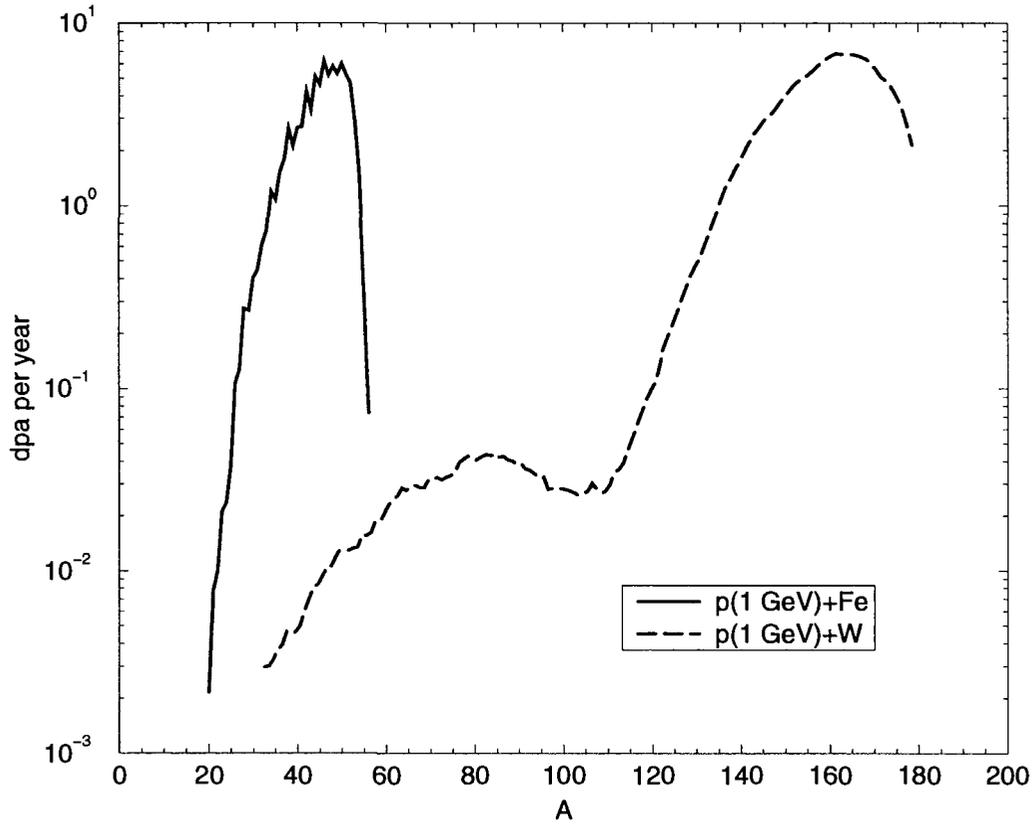


FIG. A.9: Distribution of displacements per atom per year as a function of the recoiling nucleus mass number calculated using the LSS theory and the spallation code described in the text for 1 GeV protons on Fe (solid line) and 1 GeV protons on W (dashed line).

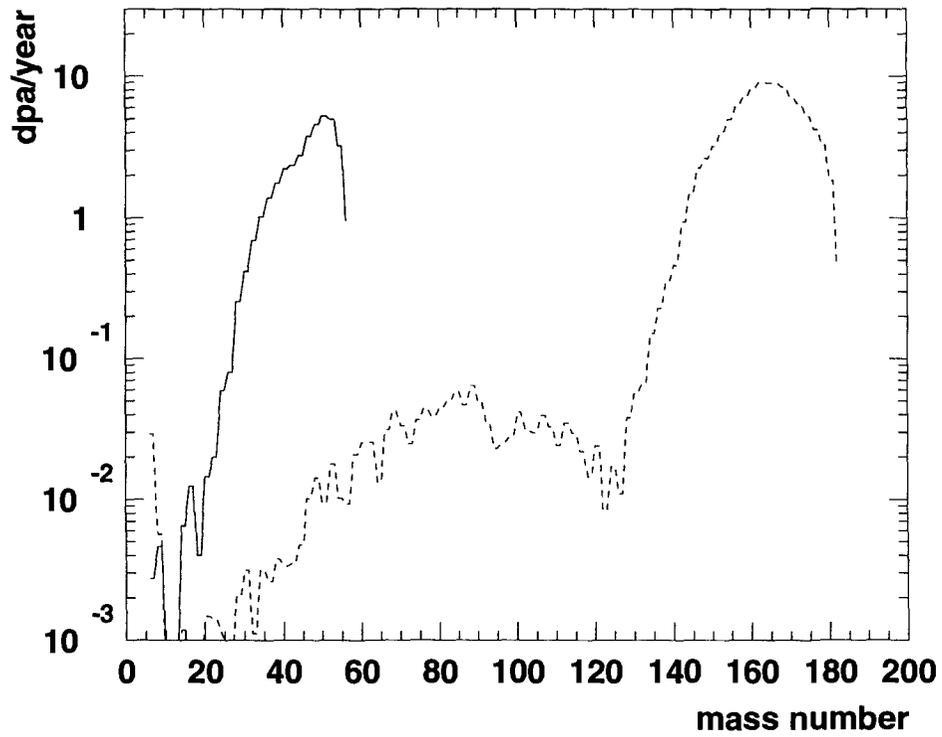


FIG. A.10: *Distribution of displacements per atom per year as a function of the recoiling nucleus mass number calculated using the DIANE code and the spallation code described in the text for 1 GeV protons on Fe (solid line) and 1 GeV protons on W (dashed line).*

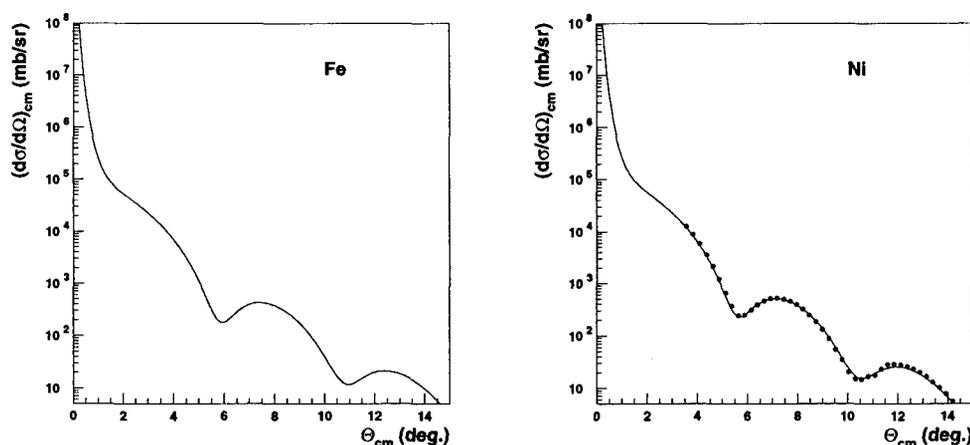


FIG. A.11: Angular distribution in the center of mass for elastic scattering of 1 GeV protons. Left: Calculated for a ^{56}Fe target with the procedure described in the text. Right: Calculated for ^{58}Ni and compared to data [108].

We are going to show here that because of the energy of protons, 1 GeV, the recoil energy at forward angles is sufficient to create damages and must be taken into account. It should be noted however that this process does not change the nature of the nuclei and therefore does not create impurities within the window.

A.4.1 Cross-sections

In order to do this calculation correctly, we must have an adequate value for the differential elastic cross-section. However, the experimental values go only as low as a few degrees [108]. After a quick calculation with these data, it became clear that most of the dpa were done at extremely low angles, as we will see later on. It therefore became necessary to have a better approximation of these differential cross-sections.

An optical model calculation in which the Dirac equation has been solved numerically by the ECIS94 code [109], has been used. The vector and scalar potentials have been derived from the global Dirac phenomenology of references [110, 111]. This work provides energy and target mass number dependent global optical potentials for proton energies from 65 to 1040 MeV. Figures A.11 and A.12 show the quality of the fits obtained with such a procedure when compared to data for Ni and Pb [108] and the angular distributions calculated for Fe and W.

A.4.2 Displacements per atom

Here again, once we have at our disposal an adequate set of differential cross-sections and the correct DIANE tables, we can evaluate the total number of displacements per second. The kinetic energy of the recoiling nucleus is obtained through simple relativistic kinematics and increases with the angle of deviation of the proton.

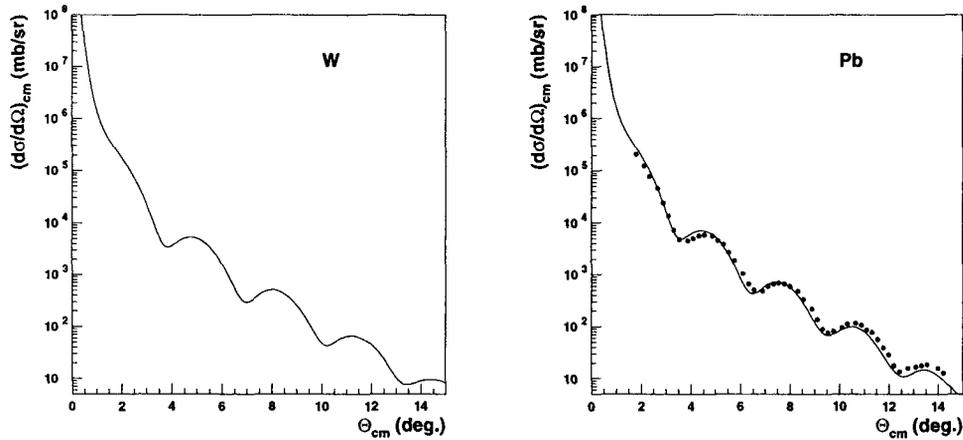


FIG. A.12: Angular distribution in the center of mass for elastic scattering of 1 GeV protons. Left: Calculated for a ^{184}W target with the procedure described in the text. Right: Calculated for ^{208}Pb and compared to data [108].

As was the case for the spallation, the dpa per second are given by:

$$dpa/s = \int \frac{d\sigma}{d\Omega} dpa(E(\theta)) \frac{\Phi_t}{S} d\Omega \quad (\text{A.17})$$

with Φ_t the intensity of the proton beam and θ the deviation angle (cylindrical symmetry) and $dpa(E(\theta))$ the number of dpa induces by a nuclei recoiling at the $E(\theta)$.

For the tungsten and iron windows we find:

Method	Fe	W
LSS	480	180
DIANE	428	183

The dpa are mainly produced at extremely low angles : $\theta_{cm} < 0.5^\circ$, for which we observe the “cut-off” due to the cascade energy threshold. The energy at such an angle is 2 keV for iron and 0.5 keV for tungstene. This explains the results : the cross-section increases rapidly as θ_{cm} decreases and the diminishing kinetic energy of the recoil nuclei is still sufficient to produce a cascade. This process is in part due to the energy of the initial proton : 1 GeV. With protons of lower energy, we would observe a “cut-off” at a greater angle and a significant reduction in the number of dpa.

We also note a difference between the iron and tungstene matrix. The second is (i) lighter, the recoil nucleus therefore takes more energy at a given angle, and (ii) the cascade energy threshold is lower. Both effects combine to give a substantial difference in the total amount of dpa.

Where as for the spallation, a light nuclei is preferred, the elastic scattering favors heavy nuclei.

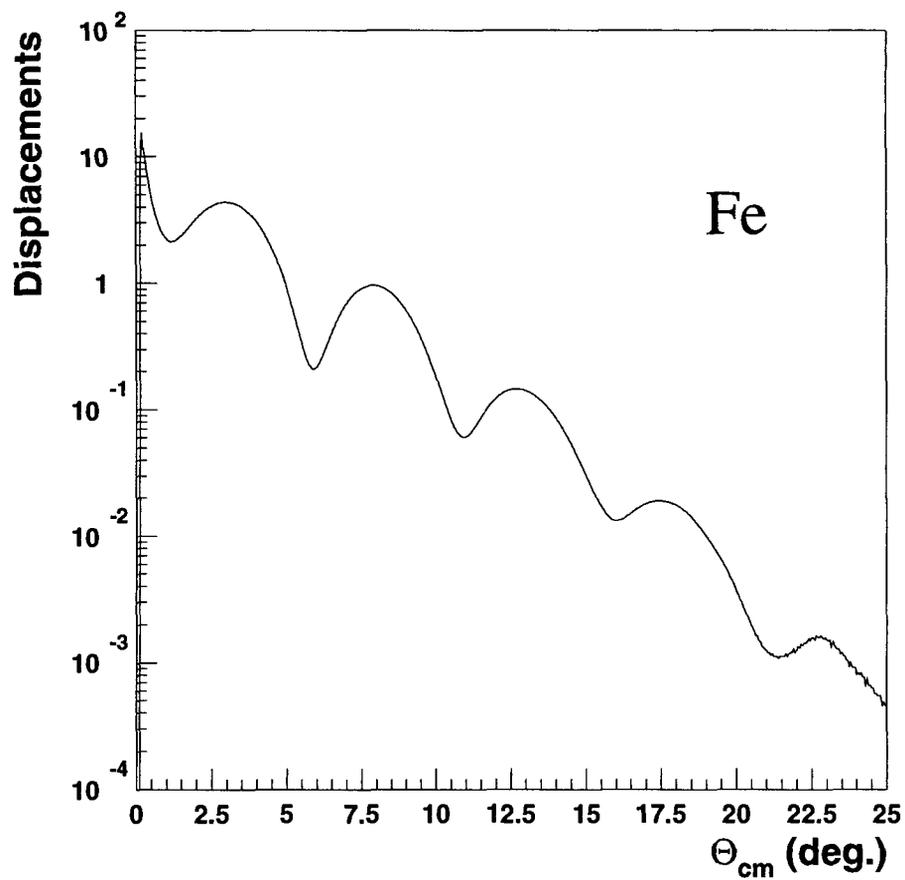


FIG. A.13: The distribution of displacements (arbitrary units) as a function of the angle of deviation of the proton for ^{56}Fe calculated using the LSS theory.

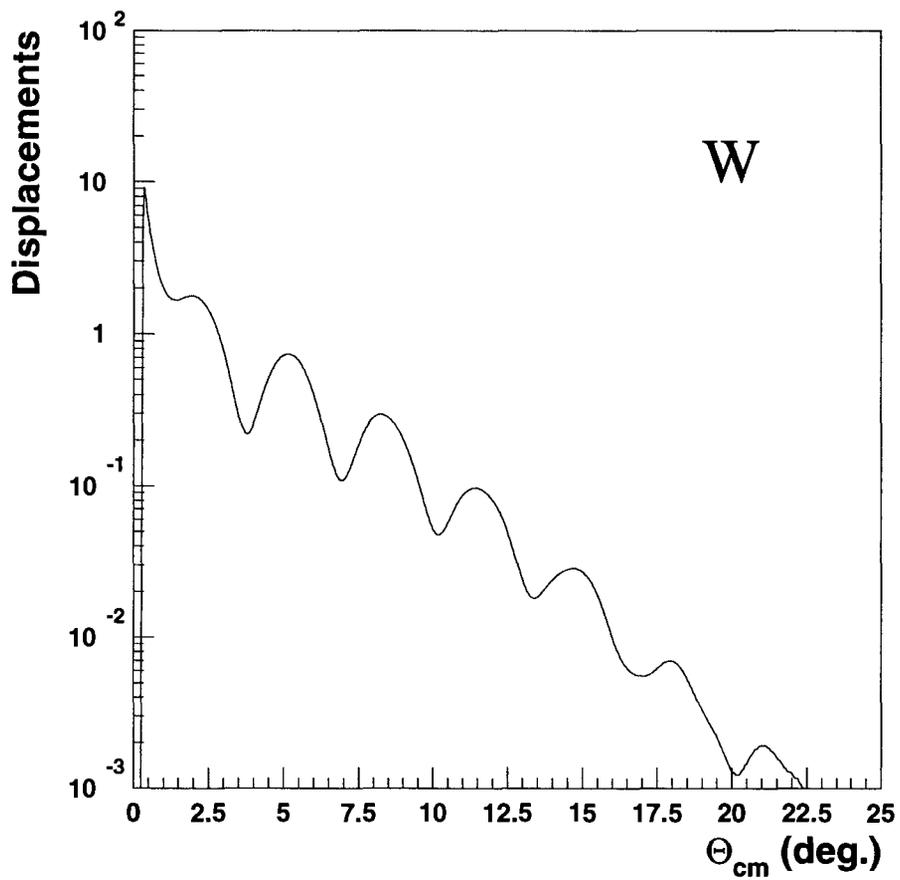


FIG. A.14: The distribution of displacements (arbitrary units) as a function of the angle of deviation of the proton for ^{184}W calculated using the LSS theory.

A.4.3 Comparison spallation - elastic scattering

The spallation process, as well as creating dpa, changes the nature of the window by introducing new elements in the matrix. This might lead us to think that the spallation process is still the main responsible for the degradation of the window because the change in chemical composition will change the physical and mechanical properties of the matrix. However, without thinking of diminishing this aspect, we can look back at the dpa mechanism and the recombination that occurs immediately after the cascade. The irradiation efficiency, which is the number of free defects left after recombination divided by the total number of dpa, decreases with the damage energy T_{dam} [87, 89]. From close to 1 just above the threshold, it falls rapidly to about 30% for a few keV. The mean recoiling energy at the peak of the dpa distribution (see figures A.8, A.9, A.13 and A.14) is:

window	spallation	elastic scattering
Fe	4 ~ 7 MeV	< 2 keV
W	4 ~ 5 MeV	< 0.5 keV

In the spallation process the recoil energy of the fragments comes mainly from multiple emission of particles leading to energies of the order of several MeV. In addition, when fission occurs, the fragments have energies close to 1 MeV/nucleon.

On the contrary, the elastic scattering process occurs only at extremely low angles, for which the recoiling energy is very close to the threshold²³. This important difference may lead to two distinct mechanism, one, the spallation, where the recombination is very important but there is a change in the nature of the matrix, another which does not alter the chemical composition of the matrix but for which the recombination is very low, leading to very high real displacements.

A.5 General Considerations

A.5.1 Thermal power

Besides the damage by displacement in beam window, there is another important direct technological impact of the proton beam: the heat deposit in the window through ionisation.

If we consider a parabolic profile for the proton beam we have

$$I(r) = \frac{2 I_0}{\pi r_0^2} \left(1 - \frac{r^2}{r_0^2}\right) \quad (\text{A.18})$$

with $r_0 = 7.5\text{cm}$ the radius of the beam and $I_0 = 10\text{mA}$ the beam current. The maximum current density is $113\mu\text{A}/\text{cm}^2$. If we consider that the energy lost in the window is given by:

$$\frac{dE}{dx}(1\text{ GeV}, W) = 24\text{ MeV}/\text{cm} \quad (\text{A.19})$$

$$\frac{dE}{dx}(1\text{ GeV}, Fe) = 13\text{ MeV}/\text{cm} \quad (\text{A.20})$$

²³. Because the protons have 1 GeV, the recoiling energy at such small angles is sufficient to make the nucleus leave its lattice site. Another way to say this would be to introduce a threshold energy for the proton beam under which the elastic scattering process is not to be taken into account because the recoiling energy is below the threshold energy of the matrix.

then we find:

window	Fe	W
energy deposit (kW)	39	72
max power density (W/cm ²)	440	814

We can compare these results with the power densities in the critical reactors [5]: for a PWR we have 200 W/cm². The removal of this heat may lead to prefer a window composed of light nuclei, but even then it will raise important technological difficulties.

We can compare these results with the power densities in the critical reactors²⁴ [5]. For a PWR we have 200W/cm² and 1kW/cm³. For a fast reactor, with a sodium coolant, we have 1.3kW/cm³.

A.5.2 Transmutation of window

As we saw above when considering the differences in elastic scattering and spallation damage production, the second brings about a change in the chemical composition of the window. We can evaluate the percentage of nuclei which have undergone spallation:

$$\rho = \frac{\sigma_t \phi_t}{S} \quad \text{with} \quad \sigma_t = \sum_A \sigma(A) \quad (\text{A.21})$$

with $\sigma(A)$ the differential cross-section for producing a spallation fragment of mass A [122].

window	Fe	W
σ_t (mb)	710	1620
ρ (%/year)	0.79	1.8

A significant fraction of the window will change nature during the year, which may lead to metallurgical and physical difficulties when we compare with the standard percentage added in typical steels. The nature of the spallation products have therefore to be known precisely to predict the evolution of the window.

A.5.3 Displacements by neutrons

Finally, the window is also placed in contact with the spallation source and therefore is in the neutron flux of the source. To evaluate the neutron damage we can compare with those observed in the critical reactors [5] for which we have the value:

$$10^{22} n/cm^2 (E \geq 1 \text{ MeV}) \rightarrow 5 \text{ dpa} \quad (\text{A.22})$$

This leads to about 100 dpa per year in steel window. Only a gross figure can be given since the precise value depends on the flux in the sub-critical blanket.

There is therefore a substantial difference between the dpa induced by the neutrons and those induced by the protons: the second are by far the most dangerous.

24. The power density in kW/cm³ is related to the heat production per cm³ of fuel in the reactor cells.

A.6 Conclusion

The interface between the accelerator and the sub-critical core in a hybrid reactor is an essential part of the design. It is solicited by the liquid metal spallation source, neutron flux and proton beam. We have studied here some of the impacts of the proton on the window. The dpa calculations were done with the spallation process but also with the elastic scattering on the nuclei of the matrix. We found that this last process must be taken into account because of the high values of dpa and the difference in recombination of the defects which could lead to very different macroscopic behaviors.

Considering this impact, it seems extremely difficult to conceive a window which could hold for a year and even a few months. There are solutions in which this interface is spread over a broader region: the spallation target ensures a minimum void in the end region of the accelerator through its convection, and a window is placed outside of the core itself. This could lead to easier replacement and less damage to the window.

Acknowledgments

We would like to thank the DAPNIA/SPP and SphN groups for the help they have given us, particularly M.Cribier, M. Spiro. We would like to express our gratitude to J.Cugnon for the help with the spallation, P.Cuendet and D.Simeone for the DIANE code.

Publication associée B

Transmutation of ^{241}Am induced by thermal neutrons

M. Aubert, S. Ayrault, T. Bolognese, J.-M. Cavedon, F. Chartier, M. Cribier, F. Doneddu, G. Fioni, A. Gaudry, F. Gunsing, F. Lelievre, F. Marie, J. Martino, A. Pluquet, M. Spiro, C. Veyssiere

Commissariat à l'Energie Atomique CEA/Saclay 91191 Gif-sur-Yvette, France

H. Faust, Ph. Leconte, R. Oliver

Institut Laue-Langevin BP 156 F-38042 Grenoble, France

Paper in preparation, to be submitted to Nuclear Science and Engineering

Résumé

The transmutation of the most abundant minor actinide (^{241}Am) by neutron induced nuclear fission is a promising way to address the question of nuclear waste incineration. In a thermal neutron flux this option depends crucially on the ^{242g}Am capture cross section, which differs by a factor of 20 in the two most widely used nuclear data libraries (ENDF-B/VI and JEF 2.2). An experimental study carried out at the Institut Laue-Langevin in Grenoble (France) and its impact on the present understanding of nuclear waste incineration systems will be discussed.

B.1 Introduction

Social acceptability of nuclear energy is strongly related to the problem of long living nuclear waste produced during the burn-up of the nuclear fuel. The transmutation of transuranic elements by neutron induced fission constitutes a very promising way to reduce long-term radiotoxicity of nuclear waste. The INCA (INCineration by Accelerator) project [112] of the Directorate for Science of Matter of the French Atomic Energy Authority (CEA/DSM), aims to outline the ideal physical conditions to transmute minor actinides (mainly $^{241-243}\text{Am}$, ^{237}Np and $^{244-245}\text{Cm}$) and some long living fission products (^{99}Tc , ^{129}I and ^{135}Cs) in an intense neutron flux obtained by an accelerator driven spallation facility coupled to a sub-critical system. In this framework, a sizeable discrepancy of a factor of 20 was pointed out on the $^{242\text{g}}\text{Am}$ thermal neutron capture cross section from JEF-2.2 (5511 barns) and ENDF-B/VI (252 barns) libraries [113, 114]. For the $^{242\text{g}}\text{Am}$ data, JEF 2.2 is based on the JENDL 3.2 library [115] which rely on a Japanese evaluation [116]. No experimental data are actually available for this reaction and the recommended values are based on theoretical evaluations.

This big discrepancy has no major impact on the current nuclear reactors, where the $^{242\text{g}}\text{Am}$ is present at very low concentration. This is essentially due to the absence of ^{241}Am in the starting fuel²⁵, to the low neutron flux and to the very short half-life of the $^{242\text{g}}\text{Am}$ (16.02 hours). On the other hand, in a minor actinide incineration system the initial fuel will contain mostly ^{241}Am and the high neutron flux will contribute to form a large amount of $^{242\text{g}}\text{Am}$. The quantitative impact of its capture cross section on the behaviour of an incineration system based on thermal neutrons, can be obtained by looking at the number of neutrons required to fission an atom of a specific nuclear fuel. This parameter, also known as the Dfactor, is plotted in figure B.1 as a function of the thermal neutron flux [117]. A mixture of minor actinides composed of 43% ^{241}Am , 27% ^{243}Am , 17% ^{237}Np and 10% ^{244}Cm , was assumed in the calculations. This composition corresponds to the minor actinides which are supposed to be present after multi-recycling of a MOX (Mixed Oxide) fuel. The continuous and the dashed lines in figure B.1 are obtained respectively by using the JEF-2.2 and the ENDF-B/VI libraries. A negative value of the D-factor corresponds to a gain of neutrons during the transmutation process and it should be obtained to have a transmutation system economically acceptable. In reality the "break-point", where the system becomes "critical", is situated at about 0.3 to take into account the neutron leakage from the system. From figure B.1, it is therefore evident that the transmutation of a mixture of minor actinides issued from multi-recycling of MOX fuels, is possible with a thermal neutron flux of about $2 \cdot 10^{15}$ n/cm²s only if the value of the $^{242\text{g}}\text{Am}$ capture cross section is lower than a few hundred barns.

A correct determination of this cross section is indeed crucial for the present studies of minor actinides incineration systems.

B.2 Experimental procedure

In order to assess experimentally the transmutation efficiency of ^{241}Am in a high thermal neutron flux and to estimate the ^{242}Am capture cross sections, a total of 12 samples containing each about 30 μg of ^{241}Am oxide canned in quartz ampoules have been irradiated at the High Flux Reactor of the Institut Laue-Langevin in Grenoble (France). This single highly enriched fuel element reactor is cooled and moderated by D₂O and provides the highest purely thermal

²⁵. ^{241}Am is mainly formed by β^- decay of ^{241}Pu during the fuel burn-up.

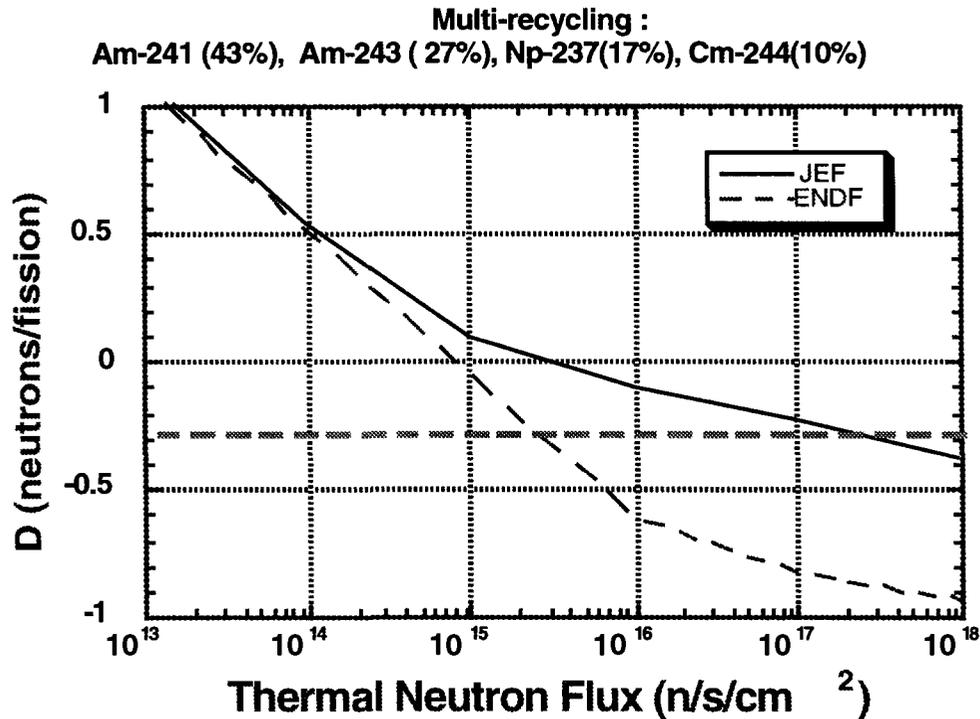


FIG. B.1: Number of neutrons required to incinerate by nuclear fission one atom of the given isotope mixture as a function of the thermal neutron flux intensity. The continuous line is calculated using the JEF 2.2 library, while the dashed line is obtained with ENDF-B/VI. The starting mixture corresponds to the average composition of the minor actinides after multi-recycling of a MOX-fuel.

neutron flux available in the world. The combination of a very high neutron flux and the absence of epithermal neutrons, has been essential for the success of the following experiment.

The experimental method relies in the measurement of the evolution of the isotopic composition of several samples irradiated for different times and in different neutron fluxes. The H9 beam position, which provides the highest neutron flux easily available at ILL, was used for 8 of the 12 samples. The sample changer of the Lohengrin spectrometer was used to bring the samples at a distance of about 60 cm from the fuel element, where the neutron flux approaches $6 \cdot 10^{14}$ n/cm²s with a thermalization coefficient of more than 98%. The T4 irradiation position located on the top of the ILL-reactor and giving access to a neutron flux of about $2 \cdot 10^{13}$ n/cm²s, was used for 4 samples. In Table B.1 the experimental programme is given with the precise mass of each sample and the irradiation duration. The main reason for using two different fluxes resides on having two independent sets of data to be used in the final fit and especially to verify experimentally that the epithermal component in H9 could be neglected in the data analysis. In fact, the T4 position is outside the heavy water reactor vessel at about 1.3 meters from the fuel element, where the neutron flux is perfectly thermalized. The isotopic chains formed by thermal neutron irradiation of ²⁴¹Am are shown in figure B.2. Off-line gamma-ray spectroscopy and mass spectrometry were used to determine the evolution of each irradiated sample as described in the following section.

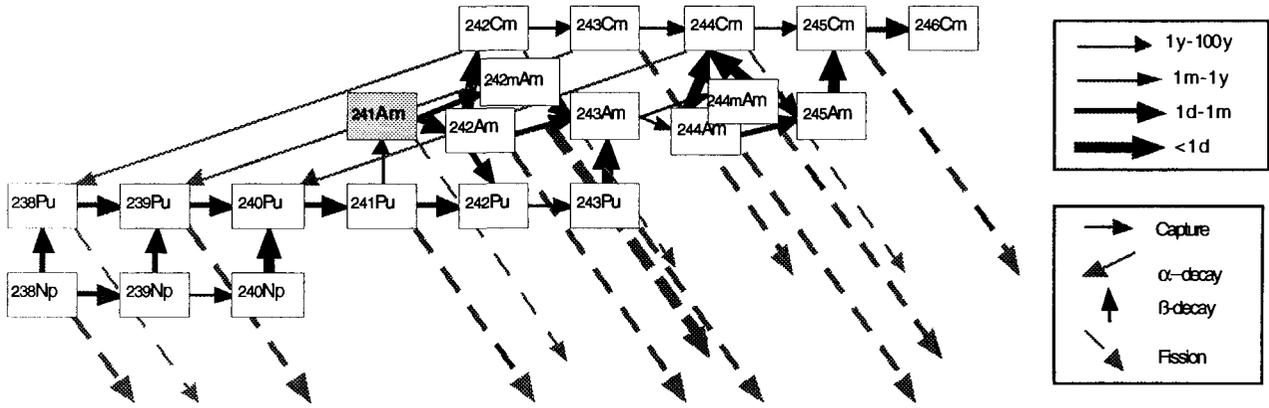


FIG. B.2: Isotopic chains formed during the irradiation of ^{241}Am in a thermal neutron flux of $2 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$. The bold dashed lines indicate when neutron induced fission is possible. Transmutation is more efficient when the fission event occurs after the lowest number of successive neutron captures.

B.3 Off-line measurements

The very short half-life of $^{242\text{gs}}\text{Am}$ and its very low concentration, make impossible on-line experiments. Mass spectrometry techniques must then be applied. A number of ancillary measurements are nevertheless necessary to obtain a reasonable precision on the final results.

B.3.1 Neutron Flux determination

A 20 mg natural iron wire, canned in a quartz ampoule, was irradiated together with each ^{241}Am sample to measure the average thermal neutron flux. During the irradiation of the iron sample, the isotope ^{59}Fe is formed through neutron capture of ^{58}Fe . ^{59}Fe then decays with a half-life of $T_{1/2} = 44.5$ days to the stable ^{59}Co through beta decay followed by gamma-ray emission. By measuring the absolute gamma-ray intensity of the 1291.6 keV line of the irradiated iron samples, the average neutron flux has been determined [118] with an accuracy of about 4%, which is satisfactory for the present experiment. The choice of natural iron as a flux monitor was made in consideration of the experimental conditions. The very high temperature (≈ 750 °C) inside the H9 beam tube makes the use of any aluminium alloy impossible and the high neutron flux impose a very "diluted" sample to avoid to have a very high radioactivity.

In figure B.3, the average neutron flux is plotted as a function of the irradiation time, where the 0 value corresponds to the beginning of the irradiation campaign. We observe a steady decrease of the neutron flux as a function of time, probably due to the movement of the reactor control rod during the cycle. The reactor stability is better than 2% over the considered time interval. During the initial six days the reactor was operated at the nominal power, before the decrease at 52 MW from the sixth day on.

B.3.2 X and Gamma-ray spectroscopy of irradiated samples

The accuracy of the final results depends strongly on the determination of the capture cross section of ^{241}Am and the corresponding branching ratio towards the ground and the metastable

^{241}Am Mass (μg)	Irradiation duration (days)	Irradiation Position
29.52	30 minutes	H9
25.94	0.95	H9
30.21	2.01	H9
27.89	5.02	H9
31.52	10.98	H9
25.24	10.98	H9
25.32	19.03	H9
38.14	19.03	H9
37.92	5.01	T4
27.95	11.01	T4
29.81	24.0	T4
29.85	24.0	T4

TAB. B.1: Details of the irradiation programme. In three cases, two ^{241}Am samples were irradiated simultaneously to permit two different mass spectrometry analyses, as described in section B.3.3. The neutron flux at the H9 position is about $6 \cdot 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$, while on T4 is about $2 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$.

states of ^{242}Am . To determine these values, dedicated X and gamma-ray spectrometry measurements have been carried out [119] using two samples irradiated respectively 30 minutes and 1 day on H9. The principle relies on the determination of the X and gamma activities after 1, 2 and 273 days from the end of the irradiation. In figure B.4, a schematic view of the first steps of the ^{241}Am evolution is given. $^{242g\text{s}}\text{Am}$ is formed either directly by $^{241}\text{Am}(n,\gamma)$ or by decay of the ^{242m}Am by internal conversion. The $^{242g\text{s}}\text{Am}$ then undergoes β^- decay to ^{242}Cm (83%) and electron capture to ^{242}Pu (17%).

The decay rate of $^{242g\text{s}}\text{Am}$ can then be determined by looking at the K_α lines of ^{242}Pu at 99.5 and 103.7 keV, and at the 42.1 keV γ -line. Complementary information can be obtained by the α -decay of ^{242}Cm to ^{238}Pu observed by looking at the associated 44.1 and 101.9 keV γ -lines.

At short cooling times, the decay of $^{242g\text{s}}\text{Am}$ formed by $^{241}\text{Am}(n,\gamma)$ dominates, with the contribution coming from ^{242m}Am decay being negligible. X and γ -spectroscopy measurements will then provide directly the capture cross section for $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g\text{s}}\text{Am}$. These measurements require a very short irradiation (30 minutes) in order to avoid a huge background coming from the X-rays emitted from the fission fragments. At long cooling times, the "original" $^{242g\text{s}}\text{Am}$ has disappeared ($T_{1/2} = 16.02 \text{ h}$) and the $^{242g\text{s}}\text{Am}$ present in the sample is formed only by the Internal Conversion of ^{242m}Am ($T_{1/2} = 141 \text{ y}$). In this case, X and γ -spectroscopy measurements of a sample irradiated for 1 day on H9 will provide the capture cross section for $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242m}\text{Am}$. In figure B.5, the X and γ spectra obtained after a cooling time of 1.9 and 273 days are shown. The g transition at 42.1 keV is strongly suppressed after 273 days as a consequence of the disappearing of the $^{242g\text{s}}\text{Am}$ formed during the irradiation.

The final results are:

$$^{241}\text{Am}(n,\gamma) = (695 \pm 30) \text{ barns}$$

While the branching ratio is in agreement with the values given in the literature, the total

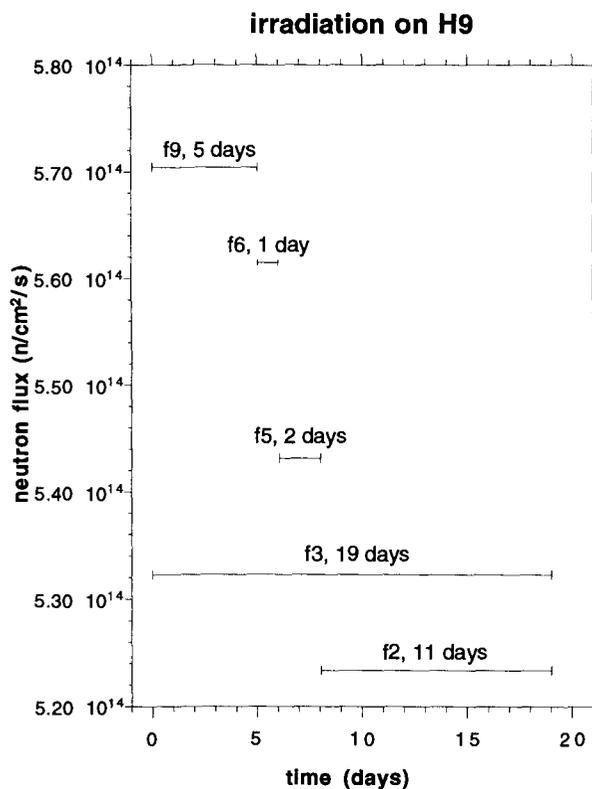


FIG. B.3: Average thermal neutron flux at the H9 position of the ILL reactor as a function of the time, where 0 corresponds to the beginning of the irradiation campaign. It should be noted that after 6 days of irradiation, the reactor thermal power was decreased from 57 to 52 MW.

capture cross section is 16% higher than the recommended JEND-3.2 valuation and 22% lower than a recent Japanese measurement [120].

B.3.3 Mass spectrometry analysis

All samples have been analysed by Thermal Ionisation Mass Spectrometry (TIMS). With this technique, the Am isotope ratios for all samples, as well as those of Cm and Pu for some samples, have been measured on some tens of ng of each element, with a precision ranging from 0.5% to few percents, depending on the value of the isotopic ratios. For some samples, the isotope dilution analysis with tracers has been applied for the determination of Cm and Pu amounts relative to the initial ^{241}Am quantity. Due to the isobars coming from the different elements, it was necessary to perform a separation between these elements before TIMS analyses. These separations have been carried out by High Performance Liquid Chromatography (HPLC), so that the composition of different Am, Cm and Pu isotopic chains has been determined with very high accuracy and precision.

In figure B.6, the isotopic ratio $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ is plotted as a function of the irradiation time.

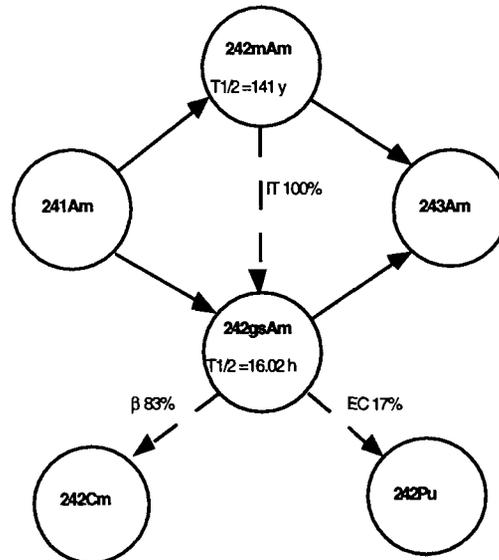


FIG. B.4: Schematic view of the first steps of the ^{241}Am transmutation chain.

The continuous and the dotted lines are respectively calculated for a nominal neutron flux of $5 \cdot 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$ from JEF 2.2 and ENDF-B/VI libraries. The uncorrected experimental data are plotted with square marks connected by a dashed line to guide the eye. It is evident from these raw data that the value of the $^{242gs}\text{Am}$ cross section is compatible with the ENDF-B/VI evaluation.

A qualitative and semi-quantitative analysis (15 to 20% uncertainty) has also been carried out by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS) to obtain the fission fragment yields. At present the results are still under evaluation and a comprehensive article will be submitted within few months.

B.3.4 Results and Conclusions

The mass spectrometry data, as well as the X and γ -ray spectroscopy measurements described in the previous section, have been analysed to determine the capture cross sections of $^{242gs}\text{Am}$.

All available measurements on the different samples (X_s , δX_s) - isotopic ratios ($^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$, $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$) for all samples as well as Cm, Pu and fission product abundances for three samples - constitute the experimental data to be compared in a global fit with the prediction (P_s) obtained by solving the Bateman equations describing the evolution of each sample.

The minimisation of the global χ^2 function over all different measurements and for all twelve samples,

$$\chi^2 = \sum_{s=1}^{12} \sum_{meas.} \left(\frac{X_s - P_s}{\delta X_s} \right)^2$$

with the unknown $^{242gs}\text{Am}$ capture cross section as a free parameter, gives the following value:

$$^{242gs}\text{Am}(n,\gamma) = (280 \pm 40) \text{ barns}$$

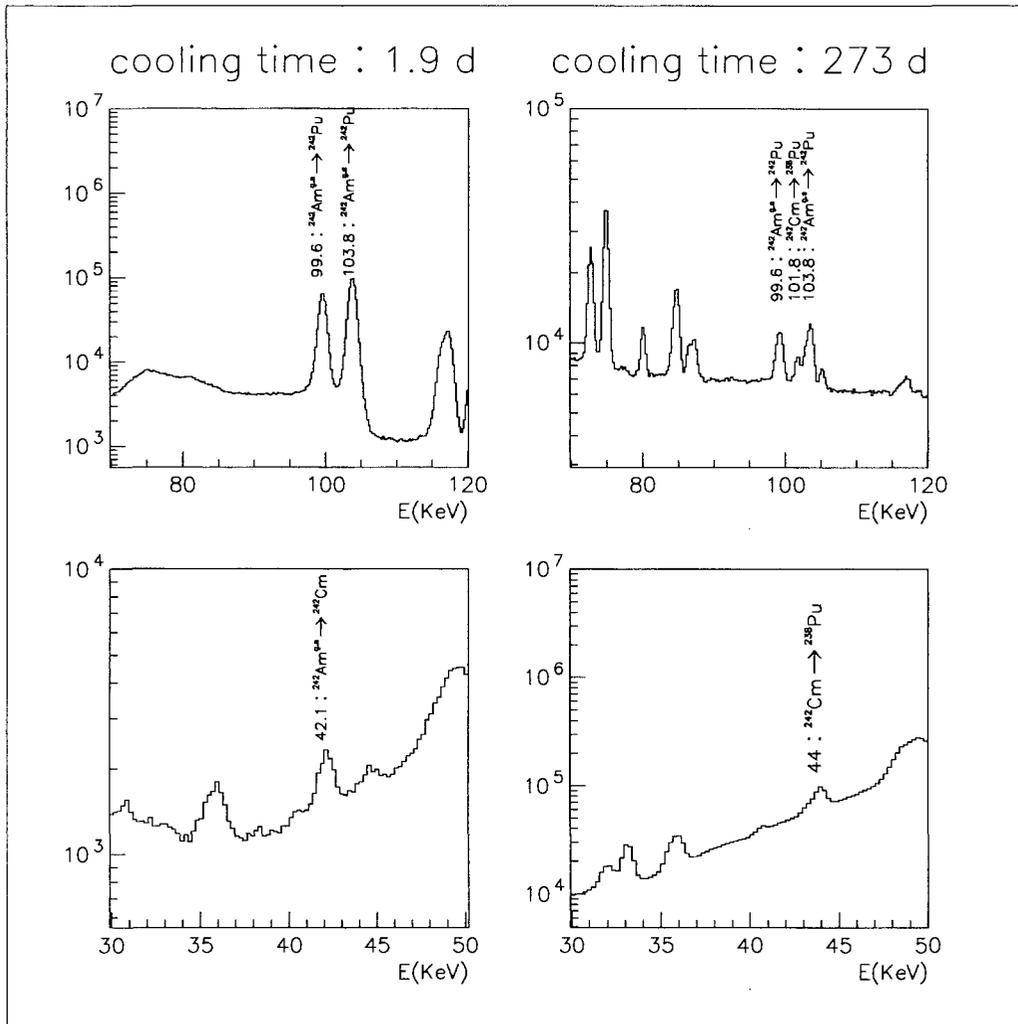


FIG. B.5: X and γ -spectra after a cooling time of 1.9 and 273 days.

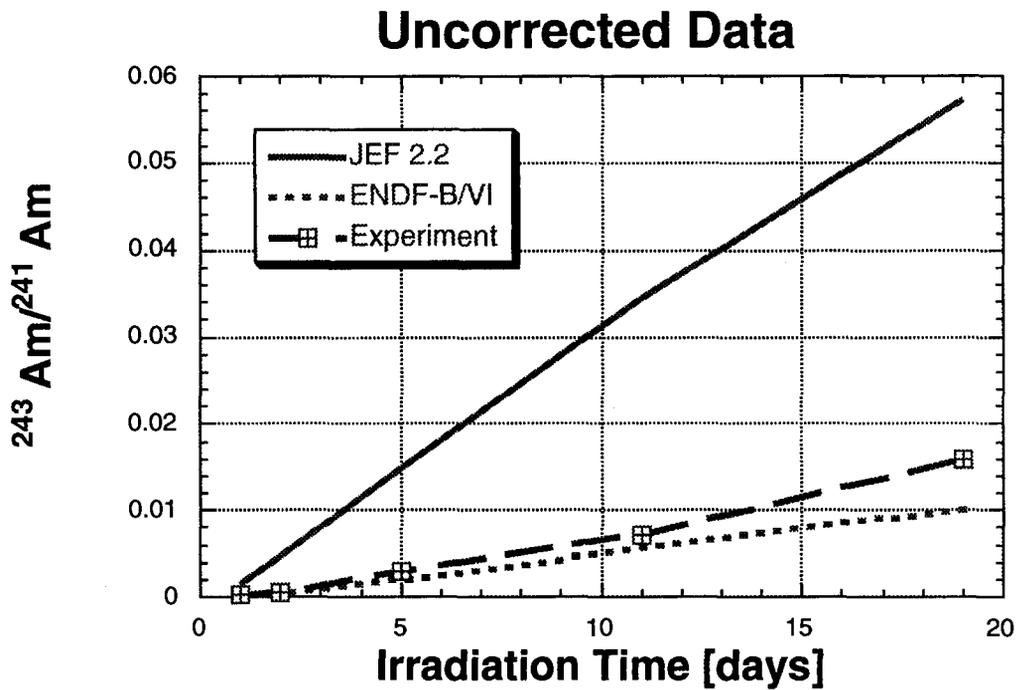


FIG. B.6: Isotopic ratio $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ plotted as a function of the irradiation time. The continuous and the dotted lines are respectively calculated for a nominal neutron flux of $5 \cdot 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$ from JEF 2.2 and ENDF-B/VI libraries. The uncorrected experimental data are plotted with a square marker connected by a dashed line to guide the eye.

An accuracy of 25% is given as the result is still preliminary and further data analysis is still in progress.

The preliminary result is in agreement with both the ENDF-B/VI value and with a recent Belarussian evaluation [121].

The option to transmute ^{241}Am together with the minor actinides issued from multi-recycling of a MOX fuel by an intense flux of thermal neutrons is still theoretically open.

Acknowledgements

This experiment would have not been possible without the co-operation and the essential help of the personnel of the ILL-Grenoble. We wish to acknowledge the ILL reactor department in the person of Mr. E. Bauer for the competent and efficient support.

Publication associée C

Code Monte-Carlo MCAP

An object oriented software for the
simulation of sub-critical hybrid systems

A. Pluquet, M. Cribier, F. Lelièvre
CEA DSM/DAPNIA/SPP
October 30, 1998

Résumé

The growing public awareness to the problem of nuclear waste has led many research laboratories to look into the possibilities of transmutation and the design of hybrid reactors. Such a reactor is the combination of a proton accelerator, a spallation target and a sub-critical blanket. The simulation of such systems is well suited to Monte Carlo techniques. We propose a new program, *mcap*, specifically developed for this purpose. But more than a neutronics code, it benefits from the recent progress in software engineering, giving a completely integrated tool combining static flux and dynamical evolution calculations.

Condensed versions of this article are going to be submitted to Nuclear Instruments and Methods in Physics Research and to Computers in Physics.

C.1 Motivation

During the first stage of the nuclear adventure, the question of nuclear waste was considered marginal. Nowadays, it is perceived as a very serious and particularly difficult problem to solve. As a means of avoiding long-term storage, the use of neutrons for transmutation of the long-lived radioactive nuclei to short-lived or stable species is under consideration in several laboratories. Sub-critical accelerator-driven systems are thought to offer a technological solution to the nuclear waste problem. They are based on (figure C.1) an intense neutron source, consisting of a

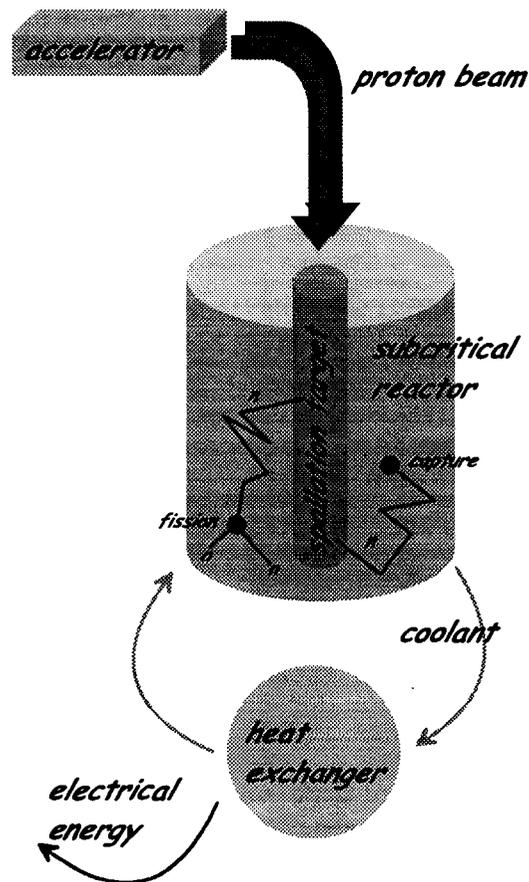


FIG. C.1: Principle of an accelerator driven hybrid system.

high intensity proton accelerator and a spallation target, surrounded by a sub-critical blanket containing actinides and selected fission products to be destroyed.

The evaluation of the performances of such a system necessitates specialized tools. The minimal specifications include :

- the calculation of the neutronics of the sub-critical blanket (neutron flux as a function of position and energy, sub-criticality level, power),
- the prediction of the evolution of the isotopic composition of the blanket under spontaneous and induced decay for significant durations,
- the possibility of varying the many parameters that describe the system (cross section databases, geometry, materials, operating mode, etc.,).

At the time this study began and after a few attempts, it seemed to us that no software was fulfilling the above specifications. We discarded the coupling of different tools, which required the realization of tricky interfaces between programs using different conventions or physical hypotheses. We decided instead to create a new and integrated software, *mcap*, based on Monte Carlo techniques for the physical description. In contrast to the very poor ergonomics of previous codes and in order to safely control the calculation inputs and outputs, it was agreed that an user-friendly interface had to be developed. These concerns led to an object oriented design of the code.

C.2 Physical model and computation scheme

C.2.1 Neutronics

C.2.1.1 Spallation source

The collision of the proton beam with the spallation target is not simulated in *mcap* for two reasons. First, the complexity of the physics of the spallation and the existence of specialized models and programs [123, 124] makes any new software development inefficient. Secondly, the behavior of ordinary hybrid systems is dominated by fission neutrons, that are much more numerous than spallation neutrons. *mcap* gives the possibility of using parameterized spallation source or, for detailed studies, of importing sources computed by external tools.

C.2.1.2 Interaction generation and propagation

The core of *mcap* is built on a Monte Carlo algorithm that simulates the interactions of a statistically significant number of neutrons with the nuclei of the sub-critical blanket. The propagation of one of these neutrons is depicted by iterating the following scheme :

1. the material, in which the neutron is located before a new interaction, is described by the list of n_i partial isotopic densities ρ_i (atoms cm^{-3}). For every isotope present in this material, the microscopic cross sections $\sigma_i^p(T)$, for the n_p processes p , are evaluated at the kinetic energy T of the incoming neutron. Elastic, (n,γ) , (n,p) , (n,α) , $(n,2n)$, $(n,3n)$ and fission reactions are taken into account. The cross sections result from linear interpolations between the values that are available in the database.
2. the global interaction length is calculated [125]

$$\Lambda(T) = \frac{1}{\sum_i^{n_i} \sum_p^{n_p} \rho_i \sigma_i^p(T)}. \quad (\text{C.23})$$

The distance r to the next interaction point is randomly generated with an exponential law

$$\frac{dN}{dr} = e^{-\frac{r}{\Lambda}} \quad (\text{C.24})$$

and the interaction type as well as the isotope i are chosen according to the partial macroscopic cross sections $\Lambda_i(T) = \rho_i \sigma_i^p(T)$.

3. the temperature Θ of the medium is taken into account via a Maxwellian distribution of the kinetic energy T_i of the target isotope i

$$T_i = \frac{\overline{p}_i^2}{2M_i} = \frac{3}{2}k_B\Theta \quad \frac{dN}{dT_i} = e^{-\frac{2T_i}{3k_B\Theta}} \quad (\text{C.25})$$

where \overline{p}_i is the momentum of the target, M_i its mass, and k_B the Boltzmann constant.

4. depending on the interaction, the kinematics of the out-coming neutrons is determined. Since *mcap* propagates only neutrons, the captures (n,γ) , (n,p) , (n,α) give an empty output. For elastic interactions, the kinetic energy and momentum of the diffused neutron are updated. For $(n,2n)$, $(n,3n)$ and fission reactions, new neutrons are generated. In the case of fission of an isotope i , the average number of emitted neutrons $\bar{\nu}_i$ varies linearly with the incident neutron kinetic energy [126]

$$\bar{\nu}_i = \nu_{0i} + \frac{d\nu_i}{dT}T, \quad (\text{C.26})$$

where the constant term ν_{0i} and the slope are fitted from the nuclear database. The actual number of neutrons ν_i for a particular fission is assumed to follow a Gaussian distribution

$$\frac{dN}{d\nu_i} \propto e^{-\frac{(\nu_i - \bar{\nu}_i)^2}{2\sigma_f^2}} \quad (\text{C.27})$$

with a width $\sigma_f = 1.08$ [127]. The kinetic energies T_f of the out-coming neutrons are generated according to a Watt spectrum

$$\frac{dN}{dT_f} \propto \sqrt{T_f} e^{-\frac{T_f}{W}} \quad (\text{C.28})$$

with $W=1.29$ MeV for a fission or $W=0.8$ MeV for a (n,xn) reaction [126].

5. if the incoming neutron, on its way to the next generated interaction point, does not cross any boundary with a new volume, then the interaction is declared valid (figure C.2). In the opposite case, the neutron is propagated, without interaction, towards the intersection of its line of flight with the boundary, and conserves its momentum.

The program offers two ways of managing the neutrons produced by fission or by (n,xn) reactions (figure C.3). In a *single stack* calculation a LIFO (Last In First Out) stack stores the neutrons, suppressing any notion of generation. When the stack is empty, a new spallation neutron is pushed on the stack, until the required number of spallation neutrons is processed. When the stack is not empty, the first neutron on the stack is propagated. When it disappears, it is removed from the stack and its descendants (if any) are put on the stack. This first method minimizes the number of neutrons to store in memory but has the disadvantage of giving unusable results when a divergence occurs (the stack grows indefinitely). Consequently, a *double stack* algorithm has been developed: all the spallation neutrons are pushed on the first LIFO stack, propagated, and removed from the stack. The descendants are placed on a second LIFO stack, which corresponds to the next generation. When the first stack is empty, the two stacks are swapped, and the procedure is iterated until the two stacks are empty or a maximum number of generations is reached. With this second algorithm, one can recover pertinent results even for sur-critical systems. Figure C.4 illustrates the propagation of a neutron in a reactor close to the criticality.

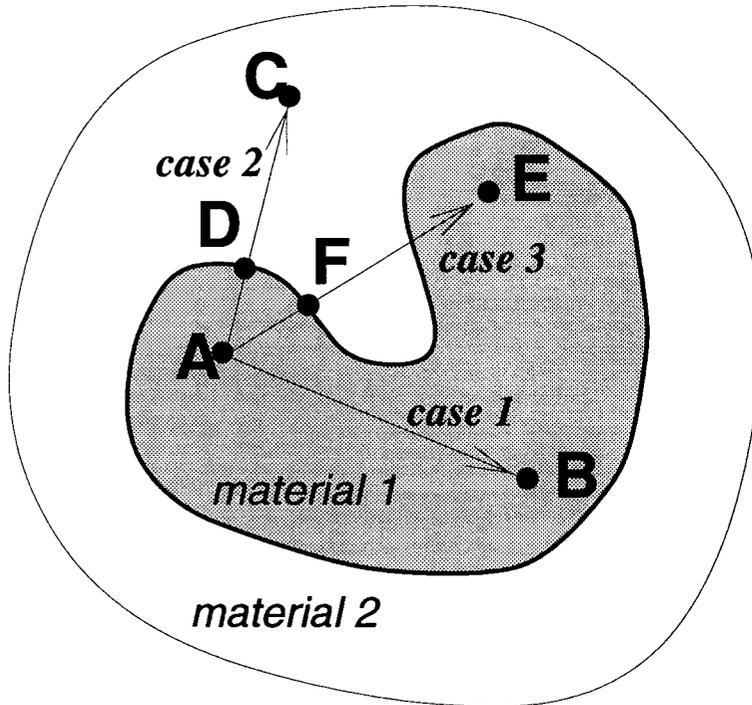


FIG. C.2: This figure illustrates three possible outcomes of the interaction generator, for a incident neutron originally located at point A. In the case 1, the generated interaction in B is valid because the path AB is fully contained in the same volume. On the contrary, in the cases 2 and 3, the generated points C and E must be rejected, because the paths AC and AE intersect a material with a different composition, that is to say with different neutronics properties. The neutron is therefore propagated to points D and F respectively, and a new interaction is simulated.

C.2.1.3 Characterization

Flux

Once all neutrons are propagated, the flux $\phi(T)$ is given by the “cord” estimator [125]. In one sub-volume of the reactor, and in a bin of kinetic energy $[T_{min}, T_{max}]$, the flux in neutrons $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ will be

$$\int_{T_{min}}^{T_{max}} \frac{d\phi(T)}{dT} dT \simeq \frac{\sum l}{V} \frac{n_{np} I_{beam}}{e n_{spa}} \quad (\text{C.29})$$

where

- $\sum l$ is the sum of path lengths (the “cords”) in the sub-volume for neutrons having their kinetic energies within $[T_{min}, T_{max}]$,
- V is the volume of the sub-volume.
- n_{np} is the number of spallation neutrons per proton on target,
- I_{beam} is the beam intensity (A),
- e is the elementary charge (C),
- n_{spa} is the number of simulated spallation neutrons.

Multiplication factor

The multiplication factor k_{eff} is evaluated differently for the single and double stack algorithms. For a single stack simulation, for which no generation information is recorded, k_{eff} is simply given by [128]

$$k_{eff} = 1 - \frac{n_{spa}}{n_t} \quad (\text{C.30})$$

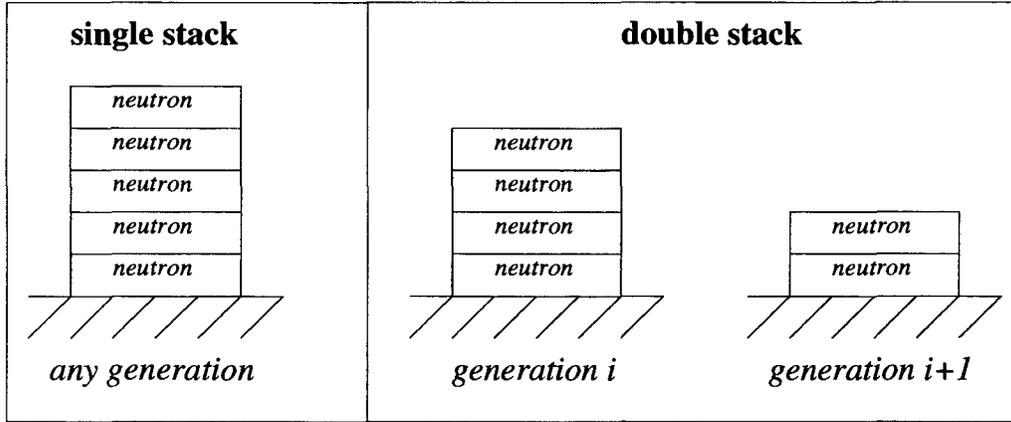


FIG. C.3: *Single and double stack calculation (see text).*

where n_{spa} is the number of spallation neutrons and n_t the total number of neutrons. This estimator is biased ($k_{eff} < 1$) for systems above criticality. For a double stack simulation, k_{eff} is calculated through

$$n_t = n_{spa}(1 + k_{eff} + k_{eff}^2 + \dots + k_{eff}^{n_g}) = n_{spa} \frac{1 - k_{eff}^{n_g+1}}{1 - k_{eff}}. \quad (C.31)$$

for n_g generations. The solution k_{eff} of this equation is unbiased and works for any system.

Power

Knowing that a fission produces 200 MeV in average, a simple count of the simulated fissions gives the power in every sub-volume of the reactor.

C.2.2 Evolution

C.2.2.1 Bateman equations

The evolution of the isotopic composition is given by the well known Bateman equations. In our case, the time variation of the partial density ρ_i in a given volume comprises four terms:

$$\frac{d\rho_i}{dt} = - \text{spontaneous disappearance} + \text{spontaneous appearance} \quad (C.32)$$

$$- \text{induced disappearance} + \text{induced appearance} \quad (C.33)$$

More precisely,

$$\frac{d\rho_i}{dt} = - \sum_{j=1}^{n_i} \lambda_{ij} \rho_i + \sum_{j=1}^{n_i} \lambda_{ji} \rho_j \quad (C.34)$$

$$- \sum_{p=1}^{n_d} \sum_{j=1}^{n_i} \int_0^\infty \frac{d\phi(T)}{dT} \sigma_{ij}^p(T) \rho_i dT \quad (C.35)$$

$$+ \sum_{p=1}^{n_a} \sum_{j=1}^{n_i} \int_0^\infty \frac{d\phi(T)}{dT} \sigma_{ji}^p(T) \rho_j dT \quad (C.36)$$

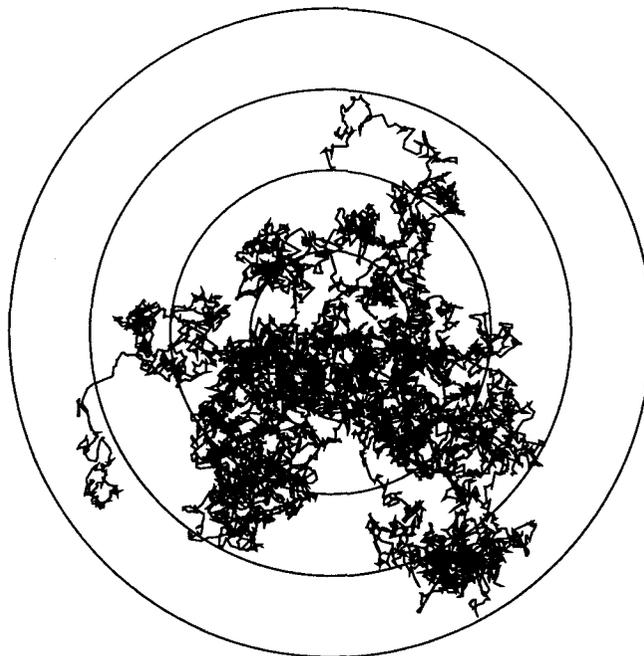


FIG. C.4: Propagation of a neutron and its descendants in a nearly critical hybrid system.

where

- λ is the $n_i \times n_i$ matrix of spontaneous decay constants λ_{ij} (s^{-1}) (the process $i \rightarrow j$ corresponds to $\lambda_{ij} = -\lambda_{ji} < 0$),
- $\frac{d\phi(T)}{dT}$ is the differential neutron flux ($cm^{-2}s^{-1}MeV^{-1}$),
- n_d the number of disappearance processes,
- n_a the number of appearance processes,
- $\sigma_{ij}^p(T)$ the cross section of the disappearance process $i \rightarrow j$ (cm^{-2}),
- $\sigma_{ji}^p(T)$ the cross section of the appearance process $j \rightarrow i$ (cm^{-2}).

Writing by hand such a system of differential equations rapidly becomes an inextricable task (figure C.2.2.1).

In *mcap*, this operation is fully automatized. According to the list of isotopes that have been selected by the user, all calculable decay channels are identified and incorporated in the differential system. When a reaction leads to two different final states (e.g. $Am_{\text{fundamental}}^{242}$ and $Am_{\text{meta-stable}}^{242}$), the corresponding branching ratios are taken into account.

C.2.2.2 Numerical resolution

The actual resolution of the above system of differential equations is preceded by a cross sections averaging procedure. The neutron flux ϕ , stemmed from the neutronics calculation,

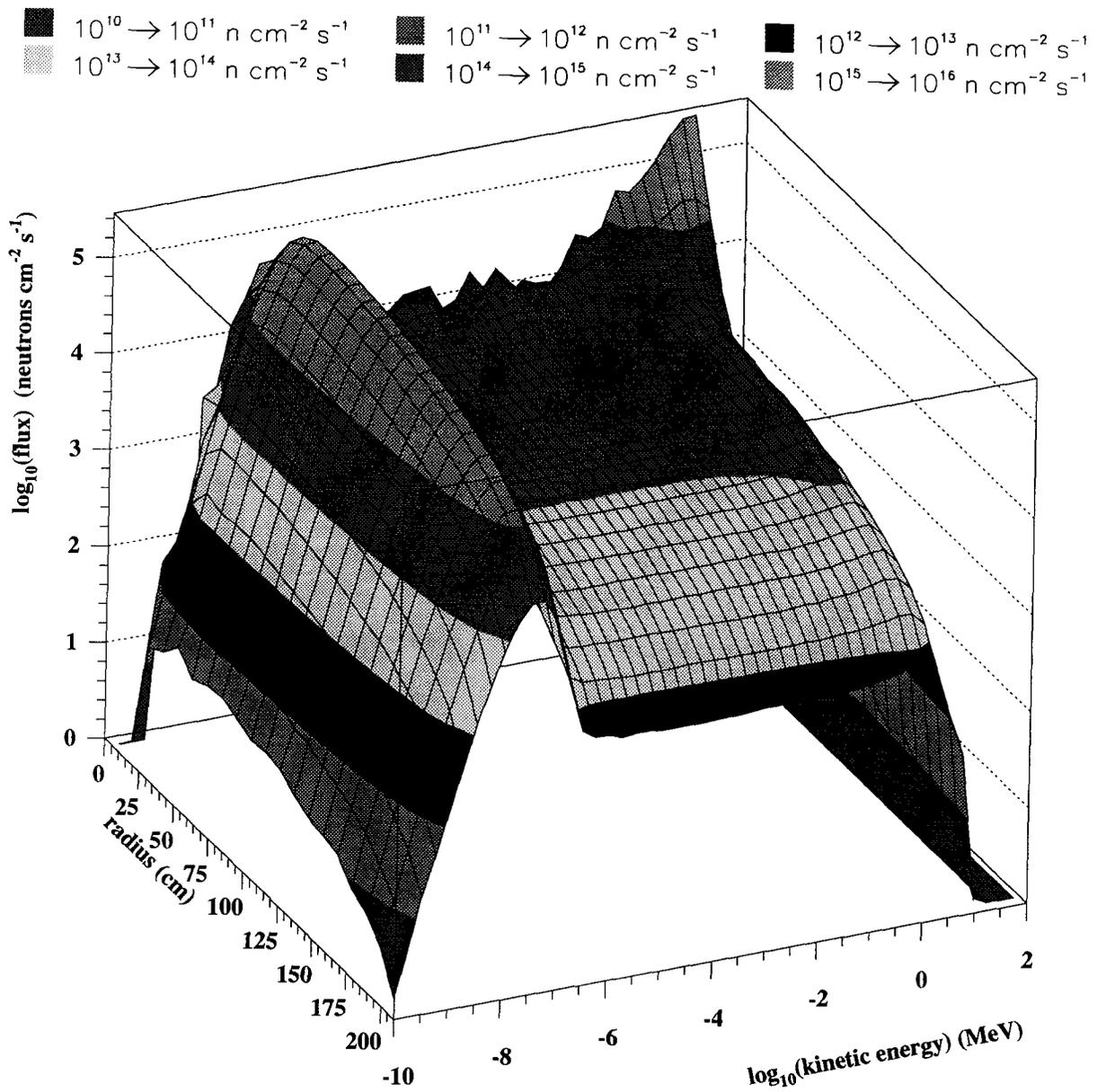


FIG. C.5: Example of neutronics calculation in a super-thermal hybrid system. The spallation target (top right) is clearly visible with a high flux of fast neutrons. On the left, a thermal peak remains intense from the center to the limit of the reactor.

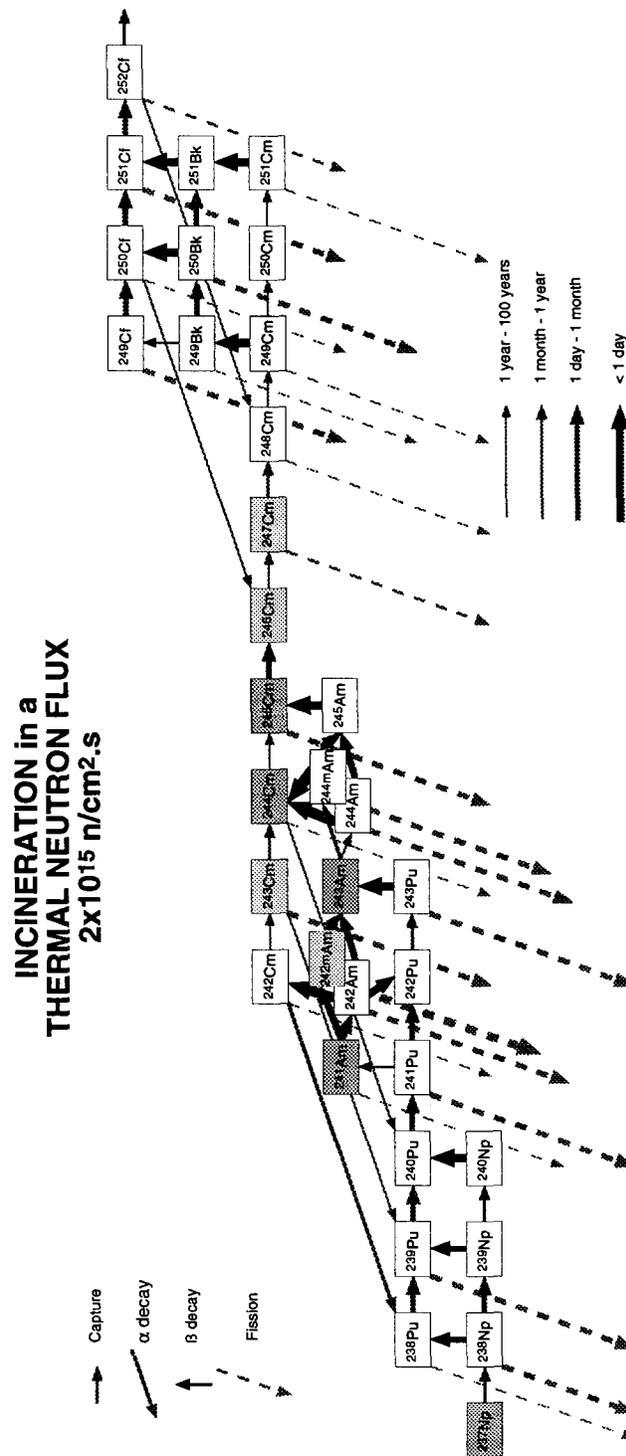


FIG. C.6: The typical composition of nuclear waste, at the output of a PWR, is a mixture of Americium, Neptunium, and Curium (weight fractions: $am_{241} \rightarrow 0.511$, $am_{243} \rightarrow 0.1971$, $am_{242} \rightarrow 0.0219$, $cm_{244} \rightarrow 0.108$, $cm_{245} \rightarrow 0.012$, $np_{237} \rightarrow 0.15$). This simplified figure shows the complexity of the evolution by spontaneous and induced transmutation.

comes in histogram form, with a logarithmic energy axis. The continuous sums $\int_0^\infty \dots dT$ in equations C.35 and C.36 are replaced by discrete sums

$$\frac{d\rho_i}{dt} = - \sum_{j=1}^{n_i} \lambda_{ij} \rho_i + \sum_{j=1}^{n_i} \lambda_{ji} \rho_j \quad (\text{C.37})$$

$$- \sum_{p=1}^{n_d} \sum_{j=1}^{n_i} \sum_{b=1}^{n_b} \phi(T_b) \sigma_{ij}^p(T_b) \rho_i \quad (\text{C.38})$$

$$+ \sum_{p=1}^{n_a} \sum_{j=1}^{n_i} \sum_{b=1}^{n_b} \phi(T_b) \sigma_{ji}^p(T_b) \rho_j \quad (\text{C.39})$$

where

- n_b is the number of bins in the flux histogram (typically 48, but any value is possible as long as the statistics is large enough to populate the histogram),
- $\phi(T_b)$ the flux ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) in the bin b ,
- $\sigma_{ij}^d(T_b)$ is the averaged cross section over the b th bin.

Finally, a Runge-Kutta algorithm is used to solve the system.

C.2.3 Coupling neutronics and evolution

The simulation of an hybrid system over significant periods of time poses the problem of the coupling between static and dynamic aspects. By static, we mean the evaluation of the quantities that describe the reactor *at a given time* whereas by dynamic, we mean the *time evolution* of these quantities. Flux and inventory (*i.e.* the isotopic composition of the blanket) are a good illustration of such a coupling: the neutron flux $\phi(t)$ at time t depends on, among other things, the inventory and its spatial distribution. In its turn, the inventory is being modified continuously by the evolution under neutron flux, among other things. An iterative procedure (figure C.7) solves the problem: the neutron flux is evaluated at periodic values of time $t = 0, T, 2T, \dots, nT$, where the period T is chosen small enough to ensure the validity of a constant neutron flux hypothesis between iT and $(i+1)T$. So the fundamental simulation is a simple sequence of *flux, evolution, flux, evolution...* calculations. Many optional operations can be superimposed on this simple scheme:

- in order to describe the introduction of matter in the reactor, operations called *loads* can be taken into account: a load is defined by its composition, the affected volumes and the occurrence times. It can be discontinuous (*i.e.* at discrete times) or continuous,
- symmetrically, the extraction of matter from the reactor is described by operations called *unloads*. An unload is defined by the extraction efficiencies for a list of selected isotopes, the affected volumes and the occurrence times. It can be discontinuous or continuous, the later case being very useful, for example, for the description of systems with an on-line extraction of fission products.

- since distinct sub-volumes evolve independently, sub-volumes sharing the same composition at a given time will have different compositions after evolution. For the simulation of molten salt reactors, where the composition is uniform, *homogenization* can be programmed. They insure a uniform composition for a list of sub-volumes.

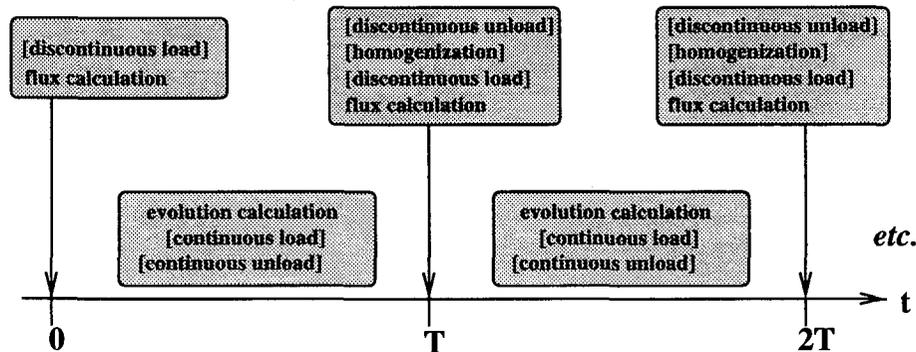


FIG. C.7: Iterative structure of a simulation. Operations within brackets are optional.

C.3 Ergonomics

C.3.1 Integration

mcap is certainly not the first program dedicated to neutronics or evolution calculation. But, to our knowledge, it was the first to offer the essential functionalities in a single and coherent package, whose strong points are

- a transparent interface to the nuclear databases. These sets of data come from the Nuclear Energy Agency of the OECD²⁶ [129]. They contain a huge amount of data which are evaluated by different international groups of experts. The principal drawback of these databases is a awkward format, mostly due to historical reasons. *mcap* allows simulations with any combination of isotopes available in the JEF, ENDF and JENDL databases.
- as described above, neutronics and evolution calculation are fully and automatically interconnected, sparing the user the trouble of translating data between more or less compatible programs.

C.3.2 Flexibility

The conceptual design of new hybrid systems has been the main application of *mcap* so far. In this context, its ability to easily modify any parameter that describes the system is an undeniable advantage. *mcap* accepts:

- *any isotope*, as long the data exists in the databases (314 isotopes in JEF, 320 in ENDF, 337 in JENDL), allowing comparisons or sensitivity studies.

26. Organization for Economic Co-Operation and Development.

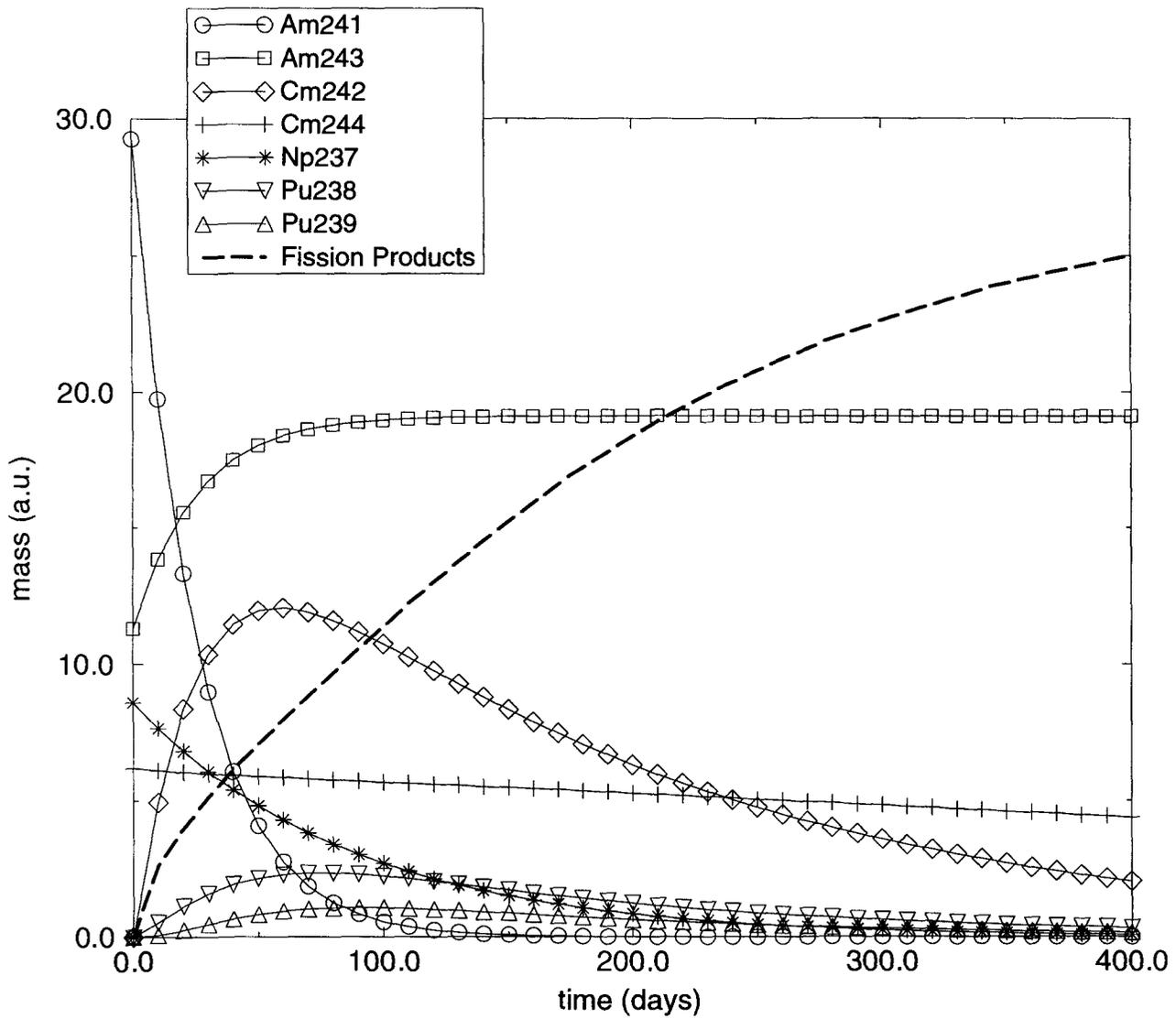


FIG. C.8: Example of evolution calculation : a sample composed of the mixture Am/Np/Cm (see figure C.2.2.1) is irradiated in a high thermal flux. Am²⁴¹ is efficiently destroyed.

- *any material*. A material is a mixture of isotopes and can be defined by many ways (weight, atomic or stoichiometric fractions with automatic conversions, mixture of known materials,...).
- *any geometry*. Spherical, parallelepipedic or cylindrical sub-volumes can be freely distributed in space. The inclusion tree is automatically build, and inconsistencies are reported.
- *any spallation source*. As mentioned before (C.2.1.1), simple parameterizations of the source are proposed, or, for detailed studies, external sources can be imported via a simple ASCII file.
- *any operating mode*. The load, unload and homogenization operations (see C.2.3) can describe many situations.

C.3.3 Readability

A complete graphical user interface (figure C.9) helps the physicist to organize, visualize and control its input parameters. At the output, the program produces an easy to read document and lays emphasis on the physical behavior of the reactor.

C.4 Results and perspectives

C.4.1 Results

Analytical calculations and documented experiments offer great opportunities of code validation.

Only a few cases can be solve analytically, restricting the comparisons to a few examples with simple geometry and mono-energetic spectrum [125]. Nevertheless, for a Monte Carlo, “simple” does not mean anything and these cases are treated exactly like any other “complex” case. As an example, figure C.10 shows the perfect agreement between prediction and simulation.

An abundant literature about criticality benchmarks provide high precision data. For instance, the critical mass of a bare sphere of Pu239 can be found with a 0.6% uncertainty [131]. The exact composition of the alloy and its precise radius (6.3849 cm) can be directly used for a simulation. *mcap* gives $k_{eff} = 1.025$ instead of the “experimental” value $k_{eff} = 1.000 \pm 0.002$.

In the sub-critical region, experimental reasons explain the lack of reliable benchmarks. Nevertheless, complementary cross-checks with approximated analytical calculations and with other codes (mcnp) can be performed. When the physical hypotheses and the nuclear data can be chosen coherently, comparisons with *mcap* show a good agreement.

C.4.2 Perspectives

Our group is mainly interested in conceptual design of hybrid systems. We have divided our study in three successive stages :

- an *exploratory phase*. The huge number of *a priori* conceivable systems prevents us from simulating all of them. An analytical model reduces the solution space to permitted regions (figure C.11), in which the appropriateness of the selected hybrid systems is insured,

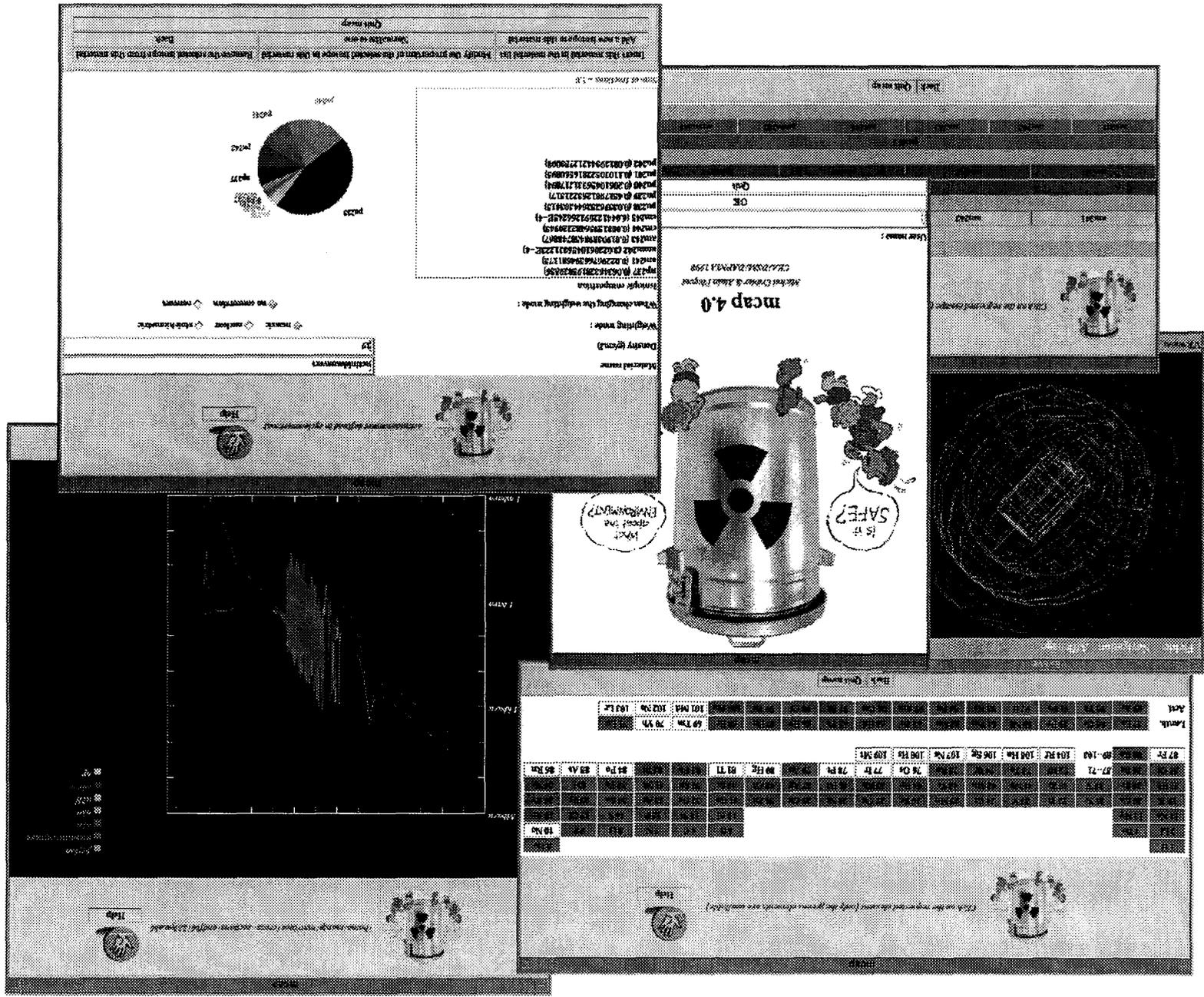


FIG. C.9: Examples of windows presented by the graphical user interface.

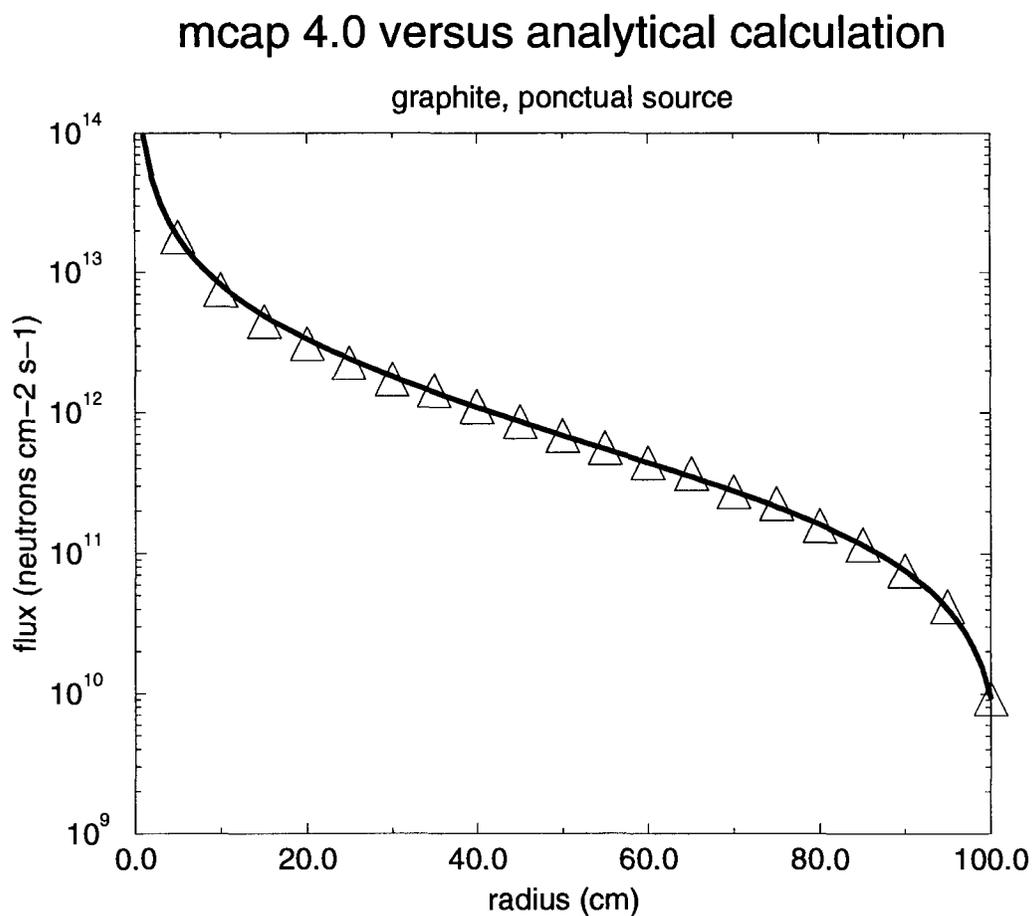


FIG. C.10: Comparison between an analytical calculation (solid line) and a simulation (triangles). The system is an homogeneous sphere of graphite, fed with neutrons by a punctual source.

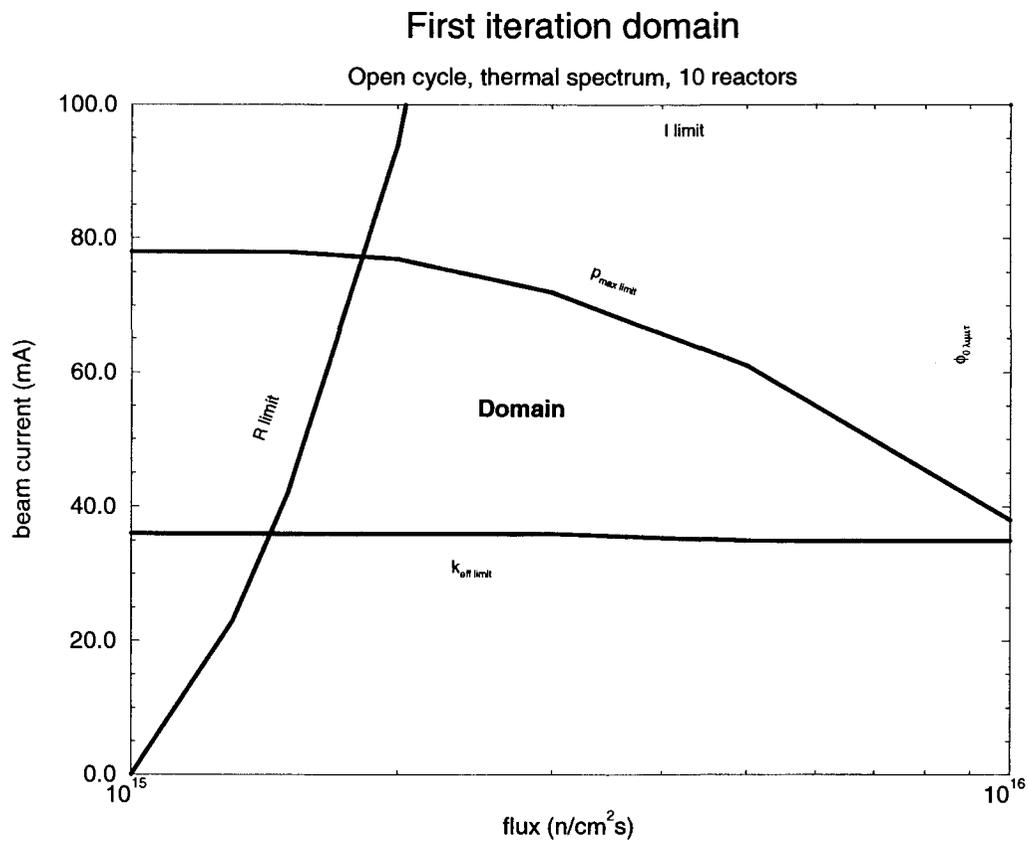


FIG. C.11: Allowed domain for a thermal hybrid system. The domain is limited by constraints on k_{eff} , radius and power density. Favorite solutions are located at the up left corner and correspond to low concentration systems.

- a *simulation phase* of the selected hybrid systems. For this use, the level of precision reached by *mcap* and its flexibility have been found perfectly suitable (figure C.12).
- a *detailed study phase* of the final design. Crossing the 1% precision limit will require the use of specialized softwares [132] or new developments in *mcap*, which is, by comparison, still in its early days. Preliminary studies show that improvements can be expected from a more detailed description of the neutron interactions (parameterization of the anisotropy in the high energy range, non linearities in the mean number of neutrons produced per fission, *etc.*).

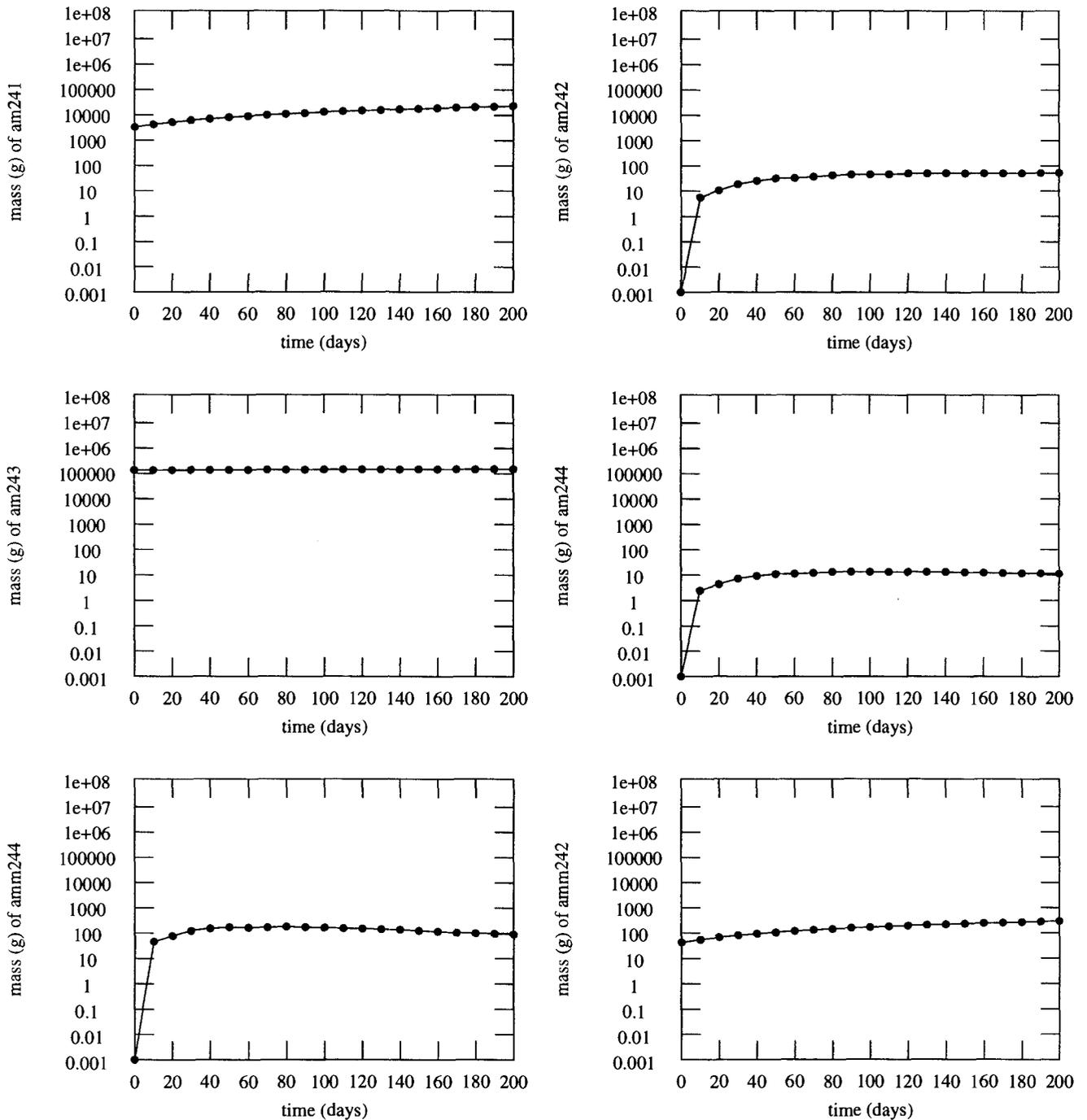


FIG. C.12: *Example of study of the dynamics of an hybrid system. The plots show the masses of various isotopes of Americium as a function of time, during the start of a thermal hybrid system : as expected from simplified analytical calculations [130], the system tends to equilibrium.*

C.5 Conclusion

A new object oriented software, mcap, dedicated to the conceptual design of hybrid systems has been developed. The neutronics of the reactor and its evolution in time can be calculated, with an excellent flexibility and a good precision. The program was presented in different international conferences [133] and is in the process of being diffused to external laboratories.

C.6 Acknowledgments

We wish to thank Michel Spiro for important contributions to this project. We are grateful to Paul Reuss, Ali Nouri and Alain Boudard for their constructive remarks.

Annexe A

Développements mathématiques

A.1 Equation de diffusion

Nous allons mettre en place l'équation de diffusion utilisée dans le modèle du cœur sphérique pour calculer le flux en fonction du rayon.

Soit $\Psi(\vec{r}, \vec{u}, t)$ le nombre de neutrons ayant une localisation dans l'espace des phases autour du point (\vec{r}, \vec{u}) . Dans un petit volume de phase $d^3u d^3r$, le nombre de neutrons est égal à $\Psi(\vec{r}, \vec{u}, t) \cdot d^3u d^3r$. On définit :

$$\Phi(\vec{r}, \vec{u}, t) = u \cdot \Psi(\vec{r}, \vec{u}, t) \quad (\text{A.1})$$

où u est le module de la vitesse. Le flux scalaire prend la forme :

$$\phi(\vec{r}, t) = \int \Phi(\vec{r}, \vec{u}, t) d^3u = \int \Phi(\vec{r}, \vec{\Omega}, t) d\Omega \quad (\text{A.2})$$

et le courant

$$\vec{J}(\vec{r}, t) = \int \vec{\Omega} \cdot \Phi(\vec{r}, \vec{\Omega}, t) d\Omega \quad (\text{A.3})$$

Explicitons les variations de neutrons dans un petit volume de phase $V = d^3u d^3r$ et de surface S , pendant le temps dt , pour des neutrons au voisinage du point (\vec{r}, \vec{u}) :

$$dN = d^3u dt \int \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}, \vec{u}, t) d^3r \quad (\text{A.4})$$

Les sources de variation de ce nombre de neutrons sont :

1. les fuites à travers la surface S :

$$d^3u dt \int \Psi(\vec{r}, \vec{u}, t) \vec{u} \cdot d\vec{S} \quad \Rightarrow \quad d^3u dt \int \vec{u} \cdot \vec{\nabla}_r \Psi(\vec{r}, \vec{u}, t) d^3r \quad (\text{A.5})$$

2. les collisions faisant sortir les neutrons du volume V :

$$d^3u dt \int u \Sigma_t \Psi(\vec{r}, \vec{u}, t) d^3r \quad (\text{A.6})$$

3. les arrivés par collisions :

$$d^3u dt \iint u' \Sigma_s(\vec{u}' \rightarrow \vec{u}) \Psi(\vec{r}, \vec{u}', t) d^3r d^3u' \quad (\text{A.7})$$

4. les sources internes au volume V , à la fois les neutrons de fission et une éventuelle source externe (neutrons de spallation ...)¹ :

$$d^3u dt \int S(\vec{r}, \vec{u}, t) d^3r \quad (\text{A.8})$$

Ceci conduit à l'équation d'équilibre en tout point :

$$\frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}, \vec{u}, t) + \vec{u} \cdot \vec{\nabla}_r \Psi(\vec{r}, \vec{u}, t) + u \Sigma_t \Psi(\vec{r}, \vec{u}, t) = \int u' \Sigma_s(\vec{u}' \rightarrow \vec{u}) \Psi(\vec{r}, \vec{u}', t) d^3u' + S(\vec{r}, \vec{u}, t) \quad (\text{A.9})$$

En utilisant la fonction Φ , nous trouvons l'équation :

$$\frac{1}{u} \frac{\partial}{\partial t} \Phi(\vec{r}, \vec{u}, t) + \vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla}_r \Phi(\vec{r}, \vec{u}, t) + \Sigma_t \Phi(\vec{r}, \vec{u}, t) = \int \Sigma_s(\vec{u}' \rightarrow \vec{u}, \vec{\Omega}' \cdot \vec{\Omega}) \Phi(\vec{r}, \vec{u}', t) d^3u' + S(\vec{r}, \vec{u}, t) \quad (\text{A.10})$$

Nous pouvons développer le flux directionnel Φ :

$$\Phi(\vec{r}, \vec{u}, t) = \frac{1}{4\pi} \left[A(\vec{r}, t) + 3\vec{B}(\vec{r}, t) \cdot \vec{\Omega} + \dots \right] \quad (\text{A.11})$$

ce qui conduit à :

$$\begin{cases} A(\vec{r}, t) = \phi(\vec{r}, t) \\ \vec{B}(\vec{r}, t) = \vec{J}(\vec{r}, t) \end{cases} \quad (\text{A.12})$$

En effet nous avons $\int \Omega_i \Omega_j d\Omega = \frac{4\pi}{3} \delta_{ij}$.

Considérons une source isotropique $S(\vec{r}, \vec{\Omega}, t) = \frac{\vec{r}}{4\pi}$, nous obtenons :

$$\frac{1}{u} \frac{\partial}{\partial t} \left\{ \phi(\vec{r}, t) + 3\vec{J}(\vec{r}, t) \cdot \vec{\Omega} \right\} + \vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla}_r \left\{ \phi(\vec{r}, t) + 3\vec{J}(\vec{r}, t) \cdot \vec{\Omega} \right\} + \Sigma_t \left\{ \phi(\vec{r}, t) + 3\vec{J}(\vec{r}, t) \cdot \vec{\Omega} \right\} = \Sigma_s(\vec{r}) \phi(\vec{r}, t) + 3 \int d\Omega' \vec{\Omega}' \cdot \vec{J}(\vec{r}, t) \Sigma_s(\vec{r}, \vec{\Omega}' \cdot \vec{\Omega}) + S(\vec{r}, t) \quad (\text{A.13})$$

Nous trouvons ainsi :

$$\begin{cases} \frac{1}{u} \frac{\partial}{\partial t} \vec{J}(\vec{r}, t) + \Sigma_{tr}(\vec{r}) \vec{J}(\vec{r}, t) = -\frac{1}{3} \vec{\nabla} \phi(\vec{r}, t) \\ \frac{1}{u} \frac{\partial}{\partial t} \phi(\vec{r}, t) + \vec{\nabla} \cdot \vec{J}(\vec{r}, t) + \Sigma_a(\vec{r}) \phi(\vec{r}, t) = S(\vec{r}, t) \end{cases} \quad (\text{A.14})$$

avec $\Sigma_{tr} = \Sigma_t - \Sigma_s \bar{\mu}$ la section efficace de transport.

En supposant que le courant varie faiblement avec le temps, $\frac{\partial}{\partial t} \vec{J}(\vec{r}, t) = 0$ nous obtenons l'équation de diffusion à un groupe :

$$\begin{cases} \vec{J}(\vec{r}, t) = -D \vec{\nabla} \phi(\vec{r}, t) \\ \frac{1}{u} \frac{\partial}{\partial t} \phi(\vec{r}, t) = -\vec{\nabla} \cdot \vec{J}(\vec{r}, t) - \Sigma_a(\vec{r}) \phi(\vec{r}, t) + S(\vec{r}, t) \end{cases} \quad (\text{A.15})$$

1. Nous négligeons dans cette formulation l'impact de neutrons retardés sur la distribution spatiale du flux, ce qui permet de considérer que la source de neutrons de fission au temps t est proportionnelle au flux au temps t .

A.2 Le k_{eff}

L'équation de diffusion (cf. formule A.15) relie la variation temporelle du flux avec sa variation spatiale. Il est naturel de chercher les conditions stationnaires en temps de cette équation :

$$D\Delta\phi(\vec{r}, t) - \Sigma_a(\vec{r}, t)\phi(\vec{r}, t) + S(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{A.16})$$

Considérons le cas d'un réacteur critique. La source étant constituée uniquement de neutrons de fission, il faut résoudre l'équation :

$$D\Delta\phi(\vec{r}, t) - (\Sigma_a(\vec{r}, t) - \nu(\vec{r}, t)\Sigma_f(\vec{r}, t))\phi(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{A.17})$$

en exprimant la source comme le produit du flux par la section efficace macroscopique de fission et du nombre moyen de neutrons par fission. Nous ne tenons pas compte dans ces développements des réactions (n,xn). Les intégrer ne change en rien le formalisme.

Aucun théorème mathématique ne garanti l'existence d'une solution non nulle à cette équation. Pour pouvoir résoudre, il faut introduire le k_{eff} comme une renormalisation de la source de neutrons², à savoir qu'il faut trouver k_{eff} tel que

$$D\Delta\phi(\vec{r}, t) - \left(\Sigma_a(\vec{r}, t) - \frac{\nu(\vec{r}, t)\Sigma_f(\vec{r}, t)}{k_{eff}} \right) \phi(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{A.18})$$

possède une solution non triviale. Remarquons que cette équation est invariante par la multiplication d'un scalaire. Le niveau de flux n'est donc pas déterminé par l'équation de diffusion.

L'expression du k_{eff} peut être obtenue en intégrant cette dernière équation sur le volume du cœur³ ce qui nous conduit à :

$$k_{eff} = \frac{\iiint_V \nu(\vec{r}, t)\Sigma_f(\vec{r}, t)\phi(\vec{r}, t) dV}{\iiint_V \Sigma_a(\vec{r}, t)\phi(\vec{r}, t) dV + \iint_S \vec{J}(\vec{r}, t)dS} \quad (\text{A.19})$$

Nous retrouvons au numérateur les termes de productions de neutrons et au dénominateur les absorptions et les fuites.

En revenant à la dynamique du flux de neutrons, il est possible d'écrire le système

$$\begin{cases} D\Delta\phi - \Sigma_a\phi + \nu\Sigma_f\phi = \frac{1}{u}\frac{\partial\phi}{\partial t} \\ D\Delta\phi - \Sigma_a\phi + \frac{\nu\Sigma_f}{k_{eff}}\phi = 0 \end{cases} \quad (\text{A.20})$$

d'où la variation temporelle du niveau de flux

$$\partial\phi = \nu\Sigma_f u \left(1 - \frac{1}{k_{eff}} \right) \phi \partial t \quad (\text{A.21})$$

qui permet de comprendre la vitesse de réaction du flux si l'on néglige les neutrons retardés. En fait, ces neutrons, émis par les produits de fission lors de leur décroissance, sont essentiels

2. Cette normalisation est tout à fait arbitraire et il aurait été possible de renormaliser la production de neutrons ou un autre paramètre.

3. Plus généralement sur tout l'espace où le flux est non nul.

au pilotage d'un réacteur critique. Nous ne reviendrons par ici sur le formalisme de l'équation de Nordheim et la prise en compte des précurseurs [27]. Indiquons seulement que les calculs de dynamique à un groupe considère que 0,065% sont émis avec en moyenne 13 minutes de retard par rapport aux neutrons prompts.

Si nous considérons un réacteur hybride, l'équation de diffusion A.15 possède un terme qui n'est pas proportionnel au flux. Un théorème nous indique qu'il existera toujours une solution [134], mais qui peut ne pas avoir de signification physique. Ainsi, dans le cas sphérique homogène, nous avons constaté que certaines configurations conduisaient à des flux négatifs, correspondant à des cas sur-critiques, i.e. des bombes.

Ce théorème nous indique aussi que le coefficient de multiplication, k_{eff} , n'a aucune signification mathématique pour un réacteur hybride puisqu'il n'est pas nécessaire de renormaliser l'équation de diffusion. Il peut, par contre, avoir une signification physique pour exprimer le développement de la chaîne de neutrons issue d'un neutron de spallation primaire.

A l'inverse, le k_{eff} , reprend tout son importance quand on examine l'arrêt du faisceau. La source de neutrons disparaît et il faut procéder comme pour un réacteur critique. Mais il faut bien voir que ce calcul de coefficient de multiplication peut être sensiblement différent de la définition physique souvent prise pour l'étude des réacteurs hybrides. En effet, une fois la source éteinte, le spectre des neutrons est très fortement modifié puisque les neutrons de spallation sont absents et seuls demeurent les neutrons de fission.

A.3 Points fixes du facteur de multiplication

Nous pouvons constater l'existence possible de points fixes dans l'étude de l'influence de la teneur en ^{241}Am dans le mélange initial. Nous allons montrer ici que ce phénomène est tout à fait général dans le cadre des études à un groupe avec un flux fixé, et nous allons établir l'équation que satisfait le temps t_0 pour être un point fixe. Nous raisonnerons donc sur deux isotopes, notés 1 et 3 pour se rapprocher du problème traité, avec une simulation comprenant un nombre quelconque de noyaux (ce nombre n'intervient pas dans la démonstration).

Posons $N_1(t)$ le vecteur isotopique correspondant à l'évolution du premier isotope pur, et $N_3(t)$ celui pour le deuxième isotope. Il est alors possible, avec le système de Bateman et Λ la matrice associée, d'écrire :

$$N_i(t) = e^{\Lambda t} \cdot N_i(0) \quad (\text{A.22})$$

Une composition quelconque peut alors s'écrire

$$N(t) = \varepsilon N_1(t) + (1 - \varepsilon) N_3(t) \quad (\text{A.23})$$

Le facteur η est défini par

$$\eta = \frac{\sum \nu_i \sigma_{f,i} N_i(t)}{\sum (\sigma_{f,i} + \sigma_{c,i}) N_i(t)} \quad (\text{A.24})$$

et pour simplifier la notation nous allons utiliser la notation matricielle (les produits sont donc des produits scalaires) :

$$\eta = \frac{{}^t\alpha \cdot N}{{}^t\beta \cdot N} \quad (\text{A.25})$$

où α et β sont respectivement les vecteurs de $\nu_i \sigma_{f,i}$ et $(\sigma_{f,i} + \sigma_{c,i})$.

Nous pouvons donc considérer que $\eta(t, \varepsilon)$ est une fonction de deux paramètres continus, le temps t et la teneur ε . Cette fonction est une fraction rationnelle donc dérivable presque partout sur \mathfrak{R}^2 .

La notion de point fixe se traduit alors par :

$$\exists t_0 \quad \forall y \quad \frac{\partial \eta}{\partial \varepsilon}(t_0, y) = 0 \quad (\text{A.26})$$

En dérivant donc l'expression A.25 munie de la relation A.23, nous trouvons la condition nécessaire que doit satisfaire le temps t_0 pour être un point fixe :

$$({}^t\alpha \cdot N_1(t_0)) ({}^t\beta \cdot N_3(t_0)) = ({}^t\beta \cdot N_1(t_0)) ({}^t\alpha \cdot N_3(t_0)) \quad (\text{A.27})$$

Nous avons ainsi montré qu'il pouvait exister des point fixes dans les représentations de $\eta(t, \varepsilon)$. Il semblerait que l'incinération du combustible issu du multirecyclage MOX [69] conduise à deux points fixes

Qu'en est-il de la réciproque?

Considérons deux courbes correspondant à deux teneurs différentes ε et $\tilde{\varepsilon}$. Si nous traduisons l'existence d'un point d'intersection entre ces deux courbes, nous avons :

$$\frac{{}^t\alpha \cdot N}{{}^t\beta \cdot N} = \frac{{}^t\alpha \cdot \tilde{N}}{{}^t\beta \cdot \tilde{N}} \quad (\text{A.28})$$

En développant cette relation par rapport aux deux vecteurs N_1 et N_3 , nous retrouvons exactement la condition A.27.

Ainsi deux courbes de η se coupent uniquement en des points fixes. Ceci permet aussi de connaître des sens de variation de ce facteur en fonction de la teneur, et la connaissance de ces sens de variation permet de mieux appréhender les fluctuations du bilan neutronique associées à des variations de teneurs dans le combustible initial.

Il est aussi possible d'aller un peu plus loin en remarquant que les conclusions ci-dessus ne sont pas liées au facteur η lui-même mais proviennent de la linéarité du numérateur et du dénominateur. Ainsi il est possible de faire le même raisonnement avec le k_∞ ou le k_{eff} . Seule la condition A.27 prendra une autre forme, ce qui influencera l'existence des points fixes mais ne modifiera en rien les propriétés qui leurs sont associés.

A.4 Réacteur cylindrique

Afin d'obtenir des images de cœur, nous avons opté pour une résolution analytique afin de permettre l'exploration de tout l'espace des solutions. Le choix s'est alors porté sur le réacteur sphérique : c'est la seule configuration permettant de calculé analytiquement le flux dans toutes les zones du cœur.

Un réacteur cylindrique aurait pu être adapté au problème mais la séparation des variables ($\phi(r, z) = R(r)Z(z)$) n'est pas possible. Les seuls cas où cela est possible sont les suivants [27] :

- un cylindre sans réflecteur avec une source homogène dans tout le cœur ;

- un cylindre de hauteur infinie entouré d'un réflecteur d'épaisseur infinie;
- un cylindre fini possédant au moins une face sans réflecteur.

Il est possible de résoudre le cas d'un cylindre fini entièrement entouré d'un réflecteur mais cela nécessite une procédure itérative : partant par exemple d'une valeur approximative δ_{0z} de l'économie axiale du réflecteur on résout le problème radialement, ce qui fournit une valeur $\delta_{0\rho}$ de l'économie de réflecteur radiale. Avec $\delta_{0\rho}$ on résout le problème axialement ce qui fournit une nouvelle valeur δ_{1z} pour l'économie axiale et ainsi de suite [27].

Mais cette configuration n'est toujours qu'à deux zones : il nous manque la cible de spallation. Si cette dernière n'est pas homogène dans tout le milieu sous-critique, le réacteur cylindrique ne possède pas de solution analytique. Nous avons donc eu recours au modèle sphérique.

A.5 Image de cœurs homogènes à combustible solide

Le calcul des images de cœur nécessite la connaissance des différentes sections efficaces d'absorption et de fission. L'approche linéaire consiste à calculer la composition isotopique à l'équilibre. Dans le cas d'un combustible solide, cette démarche soulève des problèmes de temps de calculs et de gestion des données. En effet, il convient de calculer la composition isotopique d'une pastille au cours du temps et ensuite d'intégrer sur toutes les pastilles présentes en cœur. Ces inconvénients ne sont pas rédhibitoires mais nous allons montrer qu'il existe une approche plus "simple" qui permet de se passer du calcul de l'équilibre.

Le cadre général est identique à celui décrit dans le chapitre 3. Il faut faire une hypothèse sur le spectre et le scénario de déchets à détruire. Le flux de départ, la quantité de PFVL à détruire, le nombre d'incinérateurs et l'intensité par unité sont quatre des paramètres fondamentaux. Le dernier est la teneur en produits de fission. Son estimation repose sur les calculs de réduction d'inventaire radiotoxique suivant le cheminement suivant :

Inventaire radiotoxique	gain à réaliser
↓	
B_{max}	taux d'incinération maximal
↓	
T_{max}	temps d'incinération maximal
↓	
$\langle B \rangle = \frac{1}{T_{max}} \int_0^{T_{max}} B(u) du$	teneur moyenne en PF

dans lequel $B(u)$ est l'évolution du taux d'incinération en fonction du temps d'irradiation.

Nous pouvons en déduire la masse de produits de fission en fonction de $m_{chargé}$ la masse d'actinides chargée par unité de temps :

$$m_{PF}^{totale} = T_{max} \langle B \rangle m_{chargé} \quad (A.29)$$

et la masse d'actinides dans le cœur :

$$m_{Act}^{totale} = T_{max} (1 - \langle B \rangle) m_{chargé} \quad (A.30)$$

Le bilan neutronique totale $D_{total}(T_{max})$ nous est donné par les courbes d'évolution de D en fonction du taux d'incinération, et l'évaluation de D_{PF} est triviale compte-tenu de la masse de

produits de fission en cœur m_{PF}^{totale} (cf. formule 3.35, la puissance totale étant directement reliée à B_{max}).

Le seul paramètre qu'il reste à déterminer est la section efficace totale d'absorption. Pour cela, revenons sur l'équation intrinsèque portant sur le rayon du cœur (cf. expression 3.74). Le rayon est déterminé de manière unique pour que le flux moyen soit égal au flux de départ ϕ_0 . Il existe un deuxième critère de cohérence du calcul : la puissance. Cette dernière doit être égale à la puissance estimée à partir du taux d'incinération maximal.

Puisque ce second critère n'est pas utilisé dans la procédure d'itération, il peut être utilisé pour calculer la section efficace totale d'absorption des actinides. Il s'agit de résoudre le système :

$$\begin{cases} \phi_m(R) = \phi_0 \\ \mathcal{P}(\sigma_{Act}, \phi_0) = \mathcal{P}(B_{max}) \end{cases} \quad (\text{A.31})$$

Nous pouvons ainsi compléter le fichier d'entrée du programme afin de déterminer les paramètres physiques du cœur. A titre indicatif, nous donnons sur la page suivante le fichier utilisé dans ce travail.

Fichier d'entrées typique pour le calcul d'un réacteur hybride sphérique avec trois zones homogènes : la cible de spallation, le milieu multiplicateur sous-critique et le réflecteur.

Flux de départ pour les calculs (hypothèse) en neutrons/cm²s

ϕ_0

m_{totale} (tonnes)	M	ρ (g/cm ³)	$\sigma_{absorption}$ (barns)	$\sigma_{diffusion}$ (barns)	
					Actinides (scénario ...) PF (lies a un taux de combustion ...) PFVL correspondant á ... Element support du milieu multiplicateur

- I intensite totale (Amperes)
 η bilan neutronique pour les Actinides Mineurs seuls
 $\bar{\nu}$ nombre moyen de neutrons par fission
 ν_s neutrons de spallation par proton incident
 R_s rayon en cm de la cible de spallation
 β albedo du réflecteur

Pour la cible de spallation (spectre rapide):

M	ρ	$\sigma_{diffusion}$	$\sigma_{absorption}$	$\sigma_{(n,2n)}$	ν
208	11.35				

Nombre d'unites minimum - Nombre d'unites maximum

0 1

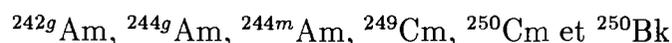
Annexe B

Données physiques

B.1 Sections efficaces à un groupe

Les sections efficaces utilisées pour les calculs d'irradiation ont été obtenues en faisant une moyenne des sections efficaces sur le spectre en énergie des neutrons. Les deux spectres de référence sont donnés figures 2.16 et 2.17. Ces sections efficaces moyennes pour la capture et la fission sont données tableau B.1.

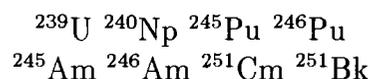
Les sections efficaces sont calculées à partir de la base de données de JEF sauf pour les isotopes suivants :



Les sections efficaces du premier sont tirées de la base de données ENDF. En effet, la mesure récente à l'Institut Laüe Langevin de Grenoble (voir publication associée B) de la section efficace de capture de l' ^{242g}Am est en désaccord avec la base de données JEF, mais compatible avec les valeurs de la base ENDF. Nous avons donc retenu cette dernière pour le calcul des sections efficaces (voir aussi section 3.1.3.2).

Les autres isotopes, qui n'interviennent pas dans les réacteurs industriels car les flux y sont trop faibles, et les taux d'incinération moins importants que dans cette étude. Il ne sont donc par présent dans la base de données JEF. Nous avons opté pour les sections efficaces disponibles dans la base JENDL.

Hormis ces isotopes qui subissent des réactions nucléaires, la chaîne doivent être compléer par des isotopes qui décroissent rapidement et dont nous ne disposons pas des sections efficaces. Il s'agit ds isotopes :



B.2 Isotopes et facteurs de dose

Le calcul de l'inventaire radiotoxique des déchets nucléaires nécessite la connaissance des facteurs de dose des différents isotopes de la chaîne de décroissance. Par ailleurs, le calcul de cette inventaire tel qu'il est effectué dans cette étude repose sur la résolution analytique des équation de Bateman. Ceci suppose que les chaînes ne bouclent pas, cas c'est le cas de la chaîne de l' ^{238}U . Deux solutions sont possibles : soit introduire à chaque boucle une chaîne

Isotope	Demi-vie	Spectre thermalisé		Spectre rapide	
	$T_{1/2}$	$\sigma_{capture}$	$\sigma_{fission}$	$\sigma_{capture}$	$\sigma_{fission}$
²³² U	68,9 ans	26,99	30,08	0,61	1,91
²³³ U	1,59 10 ⁵ ans	23,4	230	0,26	2,72
²³⁴ U	2,46 10 ⁵ ans	44,56	0,20	0,52	0,27
²³⁵ U	7,04 10 ⁸ ans	40,77	227	0,51	1,83
²³⁶ U	2,34 10 ⁷ ans	4,68	0,06	0,49	0,05
²³⁷ U	6,75 jours	185	0,81	0,41	0,53
²³⁸ U	4,47 10 ⁹ ans	3,32	0,004	0,10	0,02
²³⁷ Np	2,14 10 ⁶ ans	106	0,03	1,50	0,32
²³⁸ Np	2,12 jours	80	797	0,16	3,49
²³⁹ Np	2,36 jours	18,6	0,026	1,84	0,46
²³⁸ Pu	87,7 ans	166	5,65	0,53	1,10
²³⁹ Pu	24 110 ans	475	802	0,48	1,79
²⁴⁰ Pu	6 564 ans	221	0,091	0,55	0,38
²⁴¹ Pu	14,35 ans	247	700	0,53	2,47
²⁴² Pu	3,74 10 ⁵ ans	16	0,036	0,58	0,26
²⁴³ Pu	4,96 heures	36,9	75,9	0,37	0,84
²⁴⁴ Pu	8,08 10 ⁷ ans	1,43	0,019	0,18	0,17
²⁴¹ Am	432 ans	708	5,07	1,89	0,26
^{242g} Am ^(a)	16 heures	97,6	878	0,60	3,14
^{242m} Am	141 ans	953	4107	0,50	3,14
²⁴³ Am	7360 ans	51	0,048	1,68	0,20
^{244g} Am ^(b)	10 heures	281	1102	0,83	3,05
^{244m} Am ^(b)	26 minutes	250	993	0,70	3,05
²⁴² Cm	163 jours	7,27	2,46	0,48	0,58
²⁴³ Cm	30 ans	42,9	213	0,23	3,32
²⁴⁴ Cm	18,1 ans	10,2	0,53	0,55	0,42
²⁴⁵ Cm	8500 ans	100	660	0,31	2,64
²⁴⁶ Cm	4730 ans	1,22	0,081	0,22	0,26
²⁴⁷ Cm	1,56 10 ⁷ ans	40,5	59,8	0,31	1,94
²⁴⁸ Cm	3,40 10 ⁵ ans	2,70	0,012	0,27	0,30
²⁴⁹ Cm ^(b)	64 minutes	1,95	1,15	0,31	1,55
²⁵⁰ Cm ^(b)	9700 ans	0,22	0,026	0,11	0,19
²⁴⁹ Bk	320 jours	846	0,010	1,01	0,16
²⁵⁰ Bk ^(b)	3,2 heures	98,9	268	0,43	1,93
²⁴⁹ Cf	351 ans	233	711	0,35	2,56
²⁵⁰ Cf	13 ans	1766	0,056	0,52	1,06
²⁵¹ Cf	898 ans	1216	2453	0,33	2,37
²⁵² Cf	2,65 ans	8,32	13,4	0,29	0,67

^(a) : base de données ENDF

^(b) : base de données JENDL

TAB. B.1: Sections efficaces moyennes utilisées pour les calculs d'irradiation, principalement avec la base de données JEF. Les calculs à l'équilibre nécessite la présence de tous les isotopes des chaînes isotopes. Certains isotopes n'étant pas présents dans la bibliothèque JEF, nous avons eu recours à la base JENDL. Par ailleurs, la mesure de la section efficace de capture de l'²⁴²Am (cf. publication associée B) donnant une valeur compatible avec la base de données ENDF, nous l'avons retenue pour cet isotope particulier.

supplémentaire, ce qui est permis grâce à la linéarité des équations de Bateman, soit négliger certaines des voies de décroissance. Nous avons vu (cf. figure 1.2) que cette deuxième solution était valable. Nous donnons donc ici les chaînes réduites et les facteurs de doses de chaque isotope.

B.3 Inventaire radiotoxique isotope par isotope

Les chaînes données ci-dessus permettent de calculer l'évolution de l'inventaire radiotoxique en fonction du temps. Nous avons utilisé à maintes reprises les différentes propriétés de décroissance de chaque isotope pour faire des observations quant au comportement des déchets (ex : saturation due à tel ou tel isotope). Afin de faciliter la compréhension de ces courbes de radiotoxicité, nous présentons ici les inventaires radiotoxique isotope par isotope (mais uniquement les principaux), normalisés à l'unité de masse. Ceci permet de mieux cerner l'impact de tel ou tel isotope et peut être de faciliter la compréhension des conclusions données pour chaque scénario.

Les constatations importantes à faire sont les niveaux équivalents de radiotoxicité du ^{244}Cm , du ^{246}Cm et du ^{240}Pu pour des temps supérieurs à quelques centaines d'années. Noter aussi le comportement spectaculaire du ^{242}Cm et du ^{238}Pu à l'origine de remontées importantes de radiotoxicité autour de 10^5 ans après l'incinération.

B.4 Les contraintes technologiques

L'optimisation d'un parc d'incinérateurs nécessite la donnée de différentes contraintes afin de délimiter de manière adéquate l'espace des solutions. Certaines de ces contraintes relèvent de la sûreté, comme la sous-criticité minimale, ou sont d'ordre économique, comme la sous-criticité maximale. Mais il faut aussi tenir compte des possibilités techniques. Nous avons imposé des limites à la puissance spécifique, aux dommages dans les matériaux, à l'intensité du faisceau de protons ou encore le rayon des cœurs.

Revenons rapidement sur les différentes grandeurs technologiques des réacteurs de puissance. La puissance thermique par unité est d'au plus de $4,27 \text{ GW}_{th}$, correspondant au palier N4 des réacteurs à eau pressurisée développés en France. Le diamètre des cuves est de 3,47 mètres (5 mètres hors tout [5]) pour les REP et de 2,1 mètres pour les BWR (8,6 mètres hors tout [5]) [4]. Les réacteurs à eau lourde ont des dimensions comparables au BWR : une longueur de cuve de 6 mètres et un rayon de 3,14 mètres [135].

Les contraintes thermiques sont liées aux mesures de sécurité. Ainsi, dans les REP, afin d'éviter l'apparition de la caléfaction sur la gaine (sécurité BO), qui produirait une élévation brutale et très dangereuse de celle-ci, le flux de chaleur doit être maintenu en deçà de 200 W/cm^3 [5]. De même, la rupture d'une canalisation de circuit primaire avec dépressurisation (accident LOCA) et la nécessité d'évacuer la chaleur résiduelle après l'arrêt du réacteur, limite la puissance spécifique maximale à 1000 W/cm^3 [5]. Les puissances spécifiques moyennes en

Isotope	$T_{1/2}$	ρ	Facteur F_k (Sv/Bq)
^{252}Cf	2,65 ans	96,91%	$9,0 \cdot 10^{-8}$
^{248}Cm	$3,4 \cdot 10^5$ ans	91,74%	$7,7 \cdot 10^{-7}$
^{244}Pu	$8,1 \cdot 10^7$ ans	99,88%	$2,4 \cdot 10^{-7}$
^{240}U	14,1 heures	100%	$1,1 \cdot 10^{-9}$
^{240}Np	62 minutes	100%	$8,2 \cdot 10^{-11}$
^{240}Pu	6560 ans	100%	$2,5 \cdot 10^{-7}$
^{236}U	$2,3 \cdot 10^7$ ans	100%	$4,7 \cdot 10^{-8}$
^{232}Th	$1,4 \cdot 10^{10}$ ans	100%	$2,3 \cdot 10^{-7}$
^{228}Ra	5,8 ans	100%	$6,9 \cdot 10^{-7}$
^{228}Ac	6,15 heures	100%	$4,3 \cdot 10^{-10}$
^{228}Th	1,9 ans	100%	$7,2 \cdot 10^{-8}$
^{224}Ra	3,66 jours	100%	$6,5 \cdot 10^{-8}$
^{220}Rn	55,6 secondes	100%	0
^{216}Po	0,15 secondes	100%	0
^{212}Pb	10,6 heures	100%	0
^{212}Bi	60,6 minutes	63,8%	$2,6 \cdot 10^{-10}$
^{212}Po	$3 \cdot 10^{-5}$ secondes	100%	0
^{208}Pb	<i>stable</i>		0

TAB. B.2: Chaîne $4n$ retenue pour le calcul avec la valeur des branchements

Isotope	$T_{1/2}$	ρ	Facteur F_k (Sv/Bq)
^{249}Cf	351 ans	100%	$3,5 \cdot 10^{-7}$
^{245}Cm	8500 ans	100%	$92,1 \cdot 10^{-7}$
^{241}Pu	14,4 ans	100%	$4,8 \cdot 10^{-9}$
^{241}Am	432 ans	100%	$2,0 \cdot 10^{-7}$
^{237}Np	$2,1 \cdot 10^6$ ans	100%	$1,1 \cdot 10^{-7}$
^{233}Pa	27 jours	100%	$8,7 \cdot 10^{-10}$
^{233}U	$1,6 \cdot 10^5$ ans	100%	$5,1 \cdot 10^{-8}$
^{229}Th	$7,9 \cdot 10^3$ ans	100%	$4,9 \cdot 10^{-7}$
^{225}Ra	14,9 jours	100%	$9,9 \cdot 10^{-8}$
^{225}Ac	10 jours	100%	$2,4 \cdot 10^{-8}$
^{221}Fr	4,9 minutes	100%	0
^{217}At	$3,2 \cdot 10^{-2}$ secondes	100%	0
^{213}Bi	46 minutes	97,8%	$2,0 \cdot 10^{-10}$
^{213}Po	$4 \cdot 10^{-6}$ secondes	100%	0
^{209}Pb	3,25 heures	100%	$5,7 \cdot 10^{-11}$
^{209}Bi	<i>stable</i>		0

TAB. B.3: Chaîne $4n+1$ retenue pour le calcul avec la valeur des branchements

Isotope	$T_{1/2}$	ρ	Facteur F_k (Sv/Bq)
^{250}Cf	13,1 ans	99,92%	$4,4 \cdot 10^{-6}$
^{246}Cm	4730 ans	99,97%	$2,1 \cdot 10^{-7}$
^{242}Pu	$3,7 \cdot 10^5$ ans	100%	$2,4 \cdot 10^{-7}$
^{238}U	$4,5 \cdot 10^9$ ans	100%	$4,5 \cdot 10^{-8}$
^{234}Th	24,1 jours	100%	$3,4 \cdot 10^{-9}$
^{234}Pa	6,7 heures	100%	$5,1 \cdot 10^{-10}$
^{234}U	$2,5 \cdot 10^5$ ans	100%	$4,9 \cdot 10^{-8}$
^{230}Th	$7,5 \cdot 10^4$ ans	100%	$2,1 \cdot 10^{-7}$
^{226}Ra	1600 ans	100%	$2,8 \cdot 10^{-7}$
^{222}Rn	3,8 jours	100%	0
^{218}Po	3,1 minutes	99,98%	0
^{214}Pb	26,8 minutes	100%	$1,4 \cdot 10^{-10}$
^{214}Bi	19,9 minutes	99,96%	$1,1 \cdot 10^{-10}$
^{214}Po	$1,6 \cdot 10^{-4}$ secondes	100%	0
^{210}Pb	22 ans	100%	$6,9 \cdot 10^{-7}$
^{210}Bi	5 jours	100%	$1,3 \cdot 10^{-9}$
^{210}Po	138 jours	100%	$1,2 \cdot 10^{-6}$
^{206}Pb	<i>stable</i>		0

TAB. B.4: Chaîne $4n+2$ retenue pour le calcul avec la valeur des branchements

Isotope	$T_{1/2}$	ρ	Facteur F_k (Sv/Bq)
^{251}Cf	898 ans	100%	$3,6 \cdot 10^{-7}$
^{247}Cm	$1,56 \cdot 10^7$ ans	100%	$1,9 \cdot 10^{-7}$
^{243}Pu	4,96 heures	100%	$8,5 \cdot 10^{-11}$
^{243}Am	7370 ans	99,71%	$2,0 \cdot 10^{-7}$
^{239}Np	2,35 jours	100%	$8,0 \cdot 10^{-10}$
^{239}Pu	24110 ans	100%	$2,5 \cdot 10^{-7}$
^{235}U	$7 \cdot 10^8$ ans	100%	$4,7 \cdot 10^{-8}$
^{231}Th	25,5 heures	100%	$3,4 \cdot 10^{-10}$
^{231}Pa	$3,3 \cdot 10^4$ ans	100%	$7,1 \cdot 10^{-7}$
^{227}Ac	22 ans	98,62%	$1,1 \cdot 10^{-6}$
^{227}Th	18,7 jours	100%	$8,9 \cdot 10^{-9}$
^{223}Ra	11,4 jours	100%	$1,0 \cdot 10^{-7}$
^{219}Rn	4,0 secondes	100%	0
^{215}Po	$1,8 \cdot 10^{-3}$ secondes	100%	0
^{211}Pb	36,1 minutes	100%	$1,8 \cdot 10^{-10}$
^{211}Bi	2,14 minutes	99,68%	0
^{207}Tl	4,8 minutes	100%	0
^{207}Pb	<i>stable</i>		0

TAB. B.5: Chaîne $4n+3$ retenue pour le calcul avec la valeur des branchements

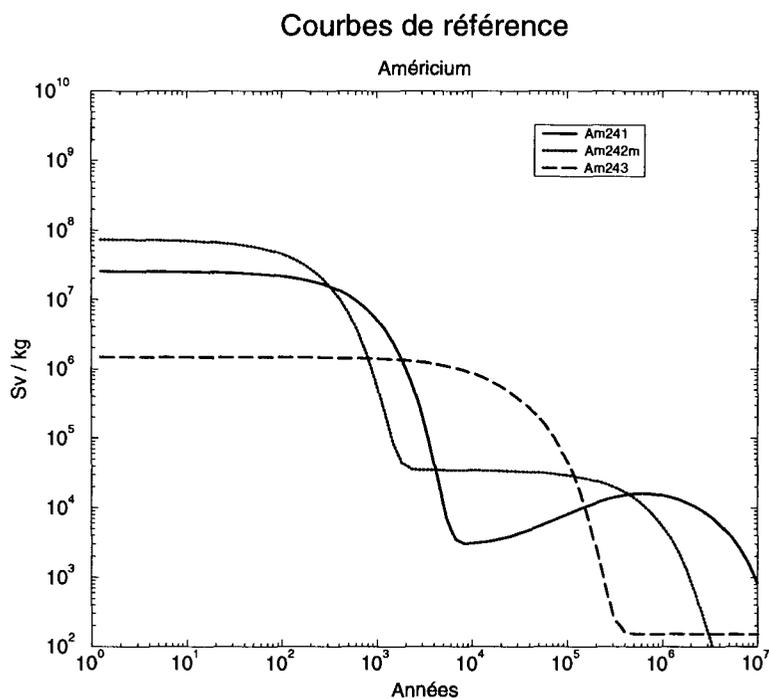


FIG. B.1: *Inventaire radiotoxique des isotopes de l'américium*

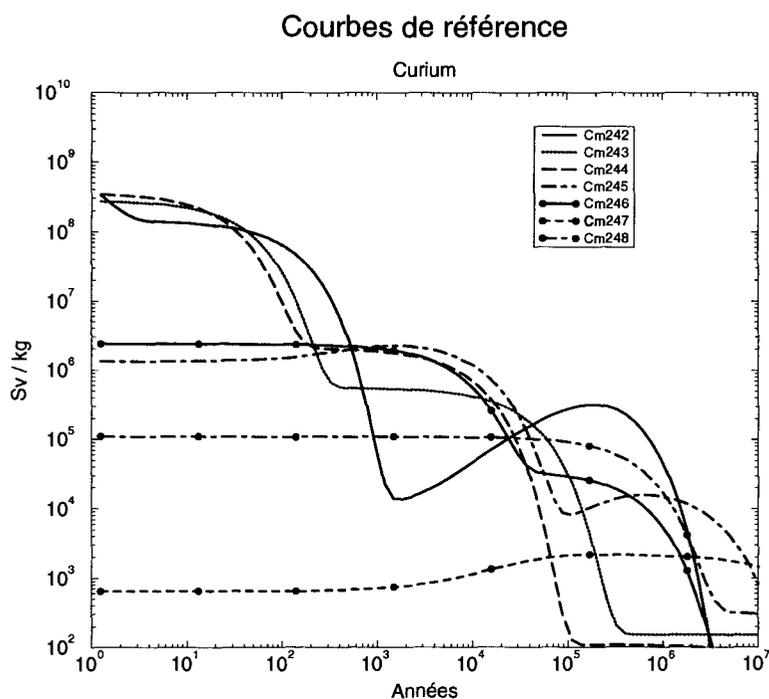


FIG. B.2: *Inventaire radiotoxique des isotopes du curium*

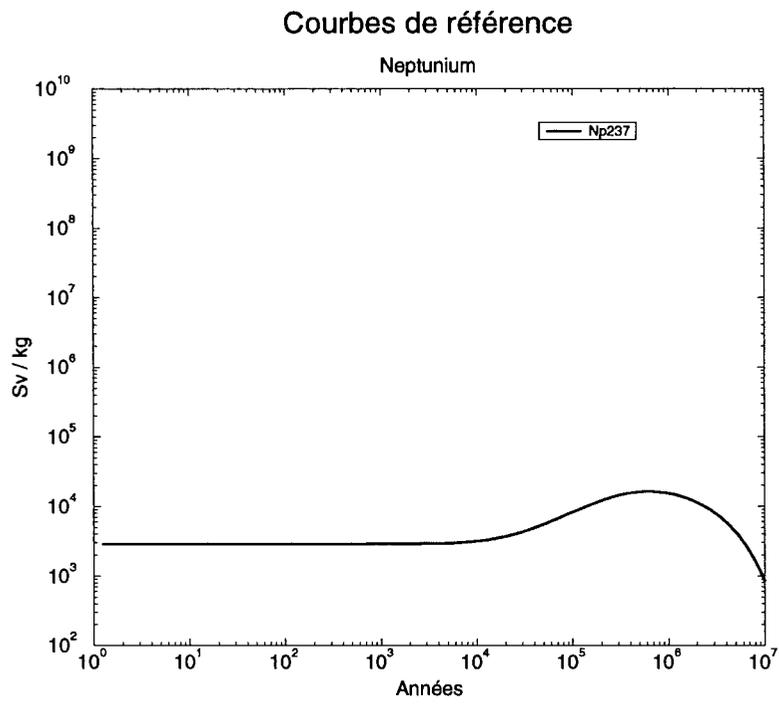


FIG. B.3: *Inventaire radiotoxique des isotopes du neptunium*

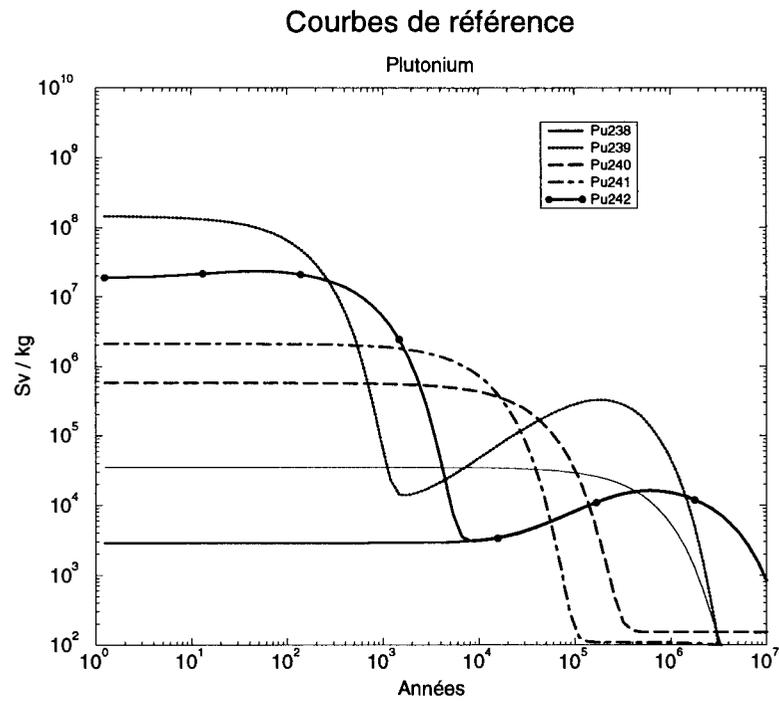


FIG. B.4: *Inventaire radiotoxique des isotopes du plutonium*

Watts par cm^3 de cœur pour les différentes filières sont [136, 137] :

UNGG	1
CANDU	5 ~ 10
HTR	5 ~ 10
BWR	50
REP	100

A titre d'indication pour les réacteurs à neutrons rapides, nous pouvons donner les principales caractéristiques du réacteur Phénix [68] :

Puissance thermique	580 MW
$\phi_{total}(r = 0)$	$7,2 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$
p_{max}	645 W/cm^3
β_{eff}	362 pcm

Table des figures

Chapitre I: Problèmes posés par les déchets des centrales nucléaires

1.1	Voies de décroissance radioactive de l' ^{238}U	24
1.2	Évolution de la radiotoxicité de l'américium	25
1.3	Radiotoxicité de la production annuelle de produits de fission	27

Chapitre II: Démarche

2.1	Schéma d'un réacteur hybride	34
2.2	Réacteur proposé par C. Rubbia.	40
2.3	Réacteur proposé par C. Bowman.	42
2.4	Scénario d'incinération des déchets proposés par Los Alamos pour traiter le stock américain	44
2.5	Réduction de l'inventaire grâce au scénario ATW	44
2.6	Bilan annuel des déchets du cycle ouvert	47
2.7	Radiotoxicité des déchets du parc dans le cas du cycle ouvert	48
2.8	Bilan annuel des déchets du scénario MOX1	49
2.9	Inventaire radiotoxique des actinides issus du scénario MOX1	50
2.10	Bilan annuel des déchets du scénario MOX2.	51
2.11	Inventaire radiotoxique des déchets issus du scénario MOX2	52
2.12	Bilan annuel des déchets du scénario de multirecyclage MOX	53
2.13	Radiotoxicité des déchets du parc dans le cas du multirecyclage MOX	54
2.14	Rapport des inventaires radiotoxiques du scénario MOX1, MOX2 ou multirecyclage, et de l'inventaire du cycle ouvert	57
2.15	Démarche conceptuelle	60
2.16	Spectre thermique	61
2.17	Spectre rapide	62
2.18	Configurations de réacteurs hybrides	65

Chapitre III – Modèles mathématiques

3.1	Arborescence sous irradiation	68
3.2	Arborescence du ^{237}Np	72
3.3	Exemple de calcul de D pour le ^{237}Np avec ou sans alimentation continue	73
3.4	Proportion de ^{239}Pu au cours de l'irradiation de ^{237}Np	74
3.5	Evolution de la puissance dissipée au cours de l'irradiation de ^{237}Np	75
3.6	Exemple d'évolution de D pour le ^{239}Pu	83
3.7	Exemple d'évolution de D pour le ^{244}Cm	85
3.8	Bilan neutronique en fonction du flux pour le ^{239}Pu et le ^{244}Cm	87
3.9	Distribution de D en spectre thermique pour 20% d'incertitudes sur les sections efficaces	88

3.10	Distribution de D en spectre rapide pour 20% d'incertitudes sur les sections efficaces	89
3.11	Courbe de D pour l' ^{241}Am en spectre thermique pour les deux bases de données	91
3.12	Exemple de masses à l'équilibre	93
3.13	Dynamique d'accumulation de la masse	93
3.14	Variation de la section efficace moyenne des PF avec la durée d'irradiation en spectre thermique	95
3.15	Esquisse du bilan neutronique complet d'un réacteur hybride	99
3.16	Modèle simple des flux de matières lors du recyclage des actinides	102
3.17	Relation pertes normalisées et taux d'incinération	105
3.18	Masse à retraiter	107
3.19	Volume à retraiter	108
3.20	Image d'un cœur de réacteur hybride	110
3.21	Exemple de flux dans le cœur	114
3.22	Schéma conceptuel pour la calcul complet d'un réacteur hybride	115
3.23	Variation du flux moyen en fonction de la taille du cœur, à masse d'actinides constante	117

Chapitre IV – Incinération sans recyclage: cas d'un combustible solide

4.1	Flux de matières pour l'incinération sans recyclage d'un combustible solide . . .	121
4.2	Domaine d'analyse du chapitre 4.	122
4.3	Inventaire radiotoxique après transmutation des déchets issus du cycle ouvert . .	123
4.4	Gains en radiotoxicité	124
4.5	Composition isotopique au cours de l'irradiation en thermique des déchets du cycle ouvert	126
4.6	Composition isotopique sous irradiation des déchets du cycle ouvert en rapide .	128
4.7	Réduction de l'inventaire radiotoxique des déchets du cycle ouvert en spectre rapide	129
4.8	Gains sur l'inventaire radiotoxique, scénario MOX2	131
4.9	Multirecyclage MOX en spectre thermique	133
4.10	Multirecyclage MOX en spectre rapide	135
4.11	Relation durée d'irradiation – taux d'incinération en spectre thermique	137
4.12	Relation durée d'irradiation – taux d'incinération en spectre rapide	138
4.13	Evolution de la puissance dissipée en fonction du taux d'incinération pour un spectre thermique	140
4.14	Evolution de la puissance dissipée en fonction du taux d'incinération pour un spectre rapide	142
4.15	Bilan neutronique des déchets du cycle ouvert en spectre thermique	143
4.16	Consommation de neutrons en spectre thermique	144
4.17	Bilan neutronique en spectre rapide	145
4.18	Bilan neutronique avec alimentation continue en spectre thermique	149
4.19	Consommation de neutrons avec alimentation continue en spectre thermique des déchets du multirecyclage MOX	151
4.20	Bilan neutronique avec alimentation continue en spectre rapide	152

Chapitre V – Incinération sans recyclage: cas d'un combustible liquide

5.1	Domaine d'analyse du chapitre 5.	156
-----	--	-----

5.2	Flux de matières pour l'incinération sans recyclage d'un combustible liquide . . .	156
5.3	Relation taux d'incinération – temps caractéristique en cœur en spectre thermique	159
5.4	Relation taux d'incinération – temps caractéristique en cœur en spectre rapide . .	160
5.5	Masse d'actinides aux déchets en fonction du taux d'incinération dans le cas du cycle ouvert	161
5.6	Puissance dissipée en fonction du taux d'incinération dans le cas du cycle ouvert	162
5.7	Inventaire radiotoxique après incinération sous un flux thermique de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm ² s des déchets issus du cycle ouvert	164
5.8	Inventaire radiotoxique après incinération sous un flux rapide de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm ² s des déchets issus du cycle ouvert	165
5.9	Inventaire radiotoxique après incinération sous un flux thermique de 10^{15} n/cm ² s et un flux rapide de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm ² s des déchets issus du scénario MOX 2	166
5.10	Inventaire radiotoxique après incinération sous un flux thermique de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm ² s des déchets issus du multirecyclage MOX	168
5.11	Inventaire en actinides après incinération sous un flux thermique de 10^{15} n/cm ² s et un flux rapide de 10^{15} n/cm ² s	169
5.12	Bilan neutronique en fonction du taux d'incinération en spectre thermique . . .	171
5.13	Bilan neutronique en fonction du taux d'incinération pour le spectre rapide . . .	172
5.14	Relation entre les taux d'incinération en combustible solide B_{max} et en combustible liquide $\langle B \rangle$	173

Chapitre VI: Incinération avec recyclages

6.1	Flux de matières pour l'incinération d'un combustible liquide avec une retraite-ment en ligne	176
6.2	Domaine d'analyse du chapitre 6.	177
6.3	Inventaire radiotoxique en sieverts par kilogramme à l'équilibre, lors de l'incinération des déchets du cycle ouvert sous un spectre thermique	178
6.4	Comparaisons des inventaires radiotoxiques massiques pour les différents scénarios en spectre thermique	180
6.5	Relation entre le taux d'incinération et l'efficacité nécessaire au retraitement . .	181
6.6	Inventaire radiotoxique des actinides à l'équilibre dans le cas du scénario de cycle ouvert en spectre rapide sous un flux de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm ² s	183
6.7	Inventaire radiotoxique des actinides à l'équilibre dans le cas du scénario de multirecyclage MOX en spectre rapide sous un flux de $5 \cdot 10^{15}$ n/cm ² s	185
6.8	Comparaison des inventaires radiotoxiques entre spectre thermique et spectre rapide	186
6.9	Inventaire d'actinides à l'équilibre en spectre thermique	187
6.10	Inventaire d'actinides à l'équilibre en spectre rapide	188
6.11	Bilan neutronique à l'équilibre en spectre thermique	190
6.12	Bilan neutronique à l'équilibre en spectre rapide	191
6.13	Consommation de neutrons par les PF	193
6.14	Dynamique de convergence en spectre thermique pour les déchets du cycle ouvert	200
6.15	Convergence du cycle ouvert en spectre thermique pour une charge initiale variable	202
6.16	Dynamique de convergence des déchets du multirecyclage en spectre thermique .	203
6.17	Convergence du cycle ouvert en spectre rapide	205
6.18	Effet du chargement initial sur le régime transitoire en spectre rapide	206
6.19	Dynamique de convergence du multirecyclage MOX en spectre rapide	207

6.20	Rayon des cœurs pour l'incinération du cycle ouvert en spectre thermique	210
6.21	Puissance volumique maximale et puissance volumique moyenne lors de l'incinération des déchets du cycle ouvert en spectre thermique	211
6.22	Domaine autorisé (i, ϕ_0) pour un parc de 10 incinérateurs	213
6.23	Concentration des actinides en spectre thermique	214
6.24	Influence de la taille de la cible de spallation et de l'albédo du réflecteur	215
6.25	Comparaison des configurations à 8 et 10 unités pour détruire les déchets du clye ouvert en spectre thermique	216
6.26	Incinération du scénario MOX1 en spectre thermique avec 10 unités	218
6.27	Incinération du scénario MOX1 en spectre thermique avec 19 unités: transition des contraintes	219
6.28	Domaine autorisé pour l'incinération en spectre thermique des déchets du scénario MOX2	221
6.29	Domaine autorisé pour l'incinération en spectre thermique des déchets du multirecyclage MOX	222
6.30	Domaine autorisé pour l'incinération en spectre thermique des déchets du multirecyclage MOX à haute intensité	223
6.31	Domaine autorisé pour l'incinération en spectre rapide des déchets du cycle ouvert	225
6.32	Domaine autorisé pour l'incinération en spectre rapide des déchets des scénarios MOX1 et MOX2	227
6.33	Domaine autorisé pour l'incinération en spectre rapide des déchets du multirecyclage MOX	228
6.34	Evolution du spectre en fonction de la concentration en ^{244}Cm	232
6.35	Sections efficaces typiques d'isotopes fertiles et fissiles	234
6.36	Convergence vers une solution d'incinération en spectre thermique	237
6.37	Evolution du spectre en fonction de la concentration en ^{240}Pu	239
6.38	Sections efficaces de fission typiques fertiles	240
6.39	Spectre neutronique voisin de l'équilibre	242
6.40	Simulation dynamique de l'incinération du cycle ouvert	243
6.41	Evolution de la composition isotopique	244

Publication associée A : Dommages dans une fenêtre de réacteur hybride

A.1	LSS electronic and nuclear stopping powers	253
A.2	Displacements in Fe and W matrix	254
A.3	Comparison of LSS theory and DIANE code	257
A.4	Spallation reaction	258
A.5	Products of spallation of tungsten by 1 GeV protons	259
A.6	Products of spallation of iron by 1 GeV protons	260
A.7	Average recoil momentum of residual nuclei	262
A.8	Distribution of the displacements for spallation	264
A.9	Distribution of dpa for spallation with LSS theory	265
A.10	Distribution of dpa for spallation with DIANE code	266
A.11	Angular distribution in the center of mass for elastic scattering of 1 GeV protons	267
A.12	Angular distribution in the center of mass for elastic scattering of 1 GeV protons	268
A.13	Distribution of displacements for iron	269
A.14	Distribution of displacements for tungstene	270

Publication associée B : Mesure de $\sigma_{capture}({}^{242g}Am)$ à l'ILL

B.1	Neutron economy of ${}^{241}Am$	277
B.2	Isotopic chains formed during the irradiation of ${}^{241}Am$ in a thermal neutron flux of $2 \cdot 10^{15}$ n/cm ² s	278
B.3	Average thermal neutron flux at the H9 position of the ILL reactor	280
B.4	Schematic view of the first steps of the ${}^{241}Am$ transmutation chain.	281
B.5	X and γ -spectra after a cooling time of 1.9 and 273 days.	282
B.6	Isotopic ratio ${}^{243}Am/{}^{241}Am$ plotted as a function of the irradiation time	283

Publication associée C : Code Monte-Carlo MCAP

C.1	Principle of an accelerator driven hybrid system.	286
C.2	Possible outcomes of the interaction generator	289
C.3	Single and double stack calculation (see text).	290
C.4	Propagation of a neutron and its descendants in a nearly critical hybrid system.	291
C.5	Example of neutronics calculation in a super-thermal hybrid system	292
C.6	Complexity of the evolution by spontaneous and induced transmutation	293
C.7	Iterative structure of a simulation	295
C.8	Example of evolution calculation	296
C.9	Examples of windows presented by the graphical user interface.	298
C.10	Comparison between an analytical calculation and a simulation	299
C.11	Allowed domain for a thermal hybrid system	300
C.12	Example of study of the dynamics of an hybrid system	302

Annexe A : Développements mathématiques**Annexe B : Données physiques**

B.1	Inventaire radiotoxique des isotopes de l'américium	318
B.2	Inventaire radiotoxique des isotopes du curium	318
B.3	Inventaire radiotoxique des isotopes du neptunium	319
B.4	Inventaire radiotoxique des isotopes du plutonium	319

Liste des tableaux

Chapitre I: Problèmes posés par les déchets des centrales nucléaires

1.1	Classification des déchets adoptée en France	18
1.2	Options retenues pour la gestion des déchets nucléaires en France	18
1.3	Facteurs de pondération des rayonnements W_R	20
1.4	Facteurs de pondération des tissus W_T	21
1.5	Facteurs de dose des principaux fils de l' ^{241}Am	23
1.6	Produits de fission à vie longue	26

Chapitre II: Démarche

2.1	Coefficient β_{eff} de quelques isotopes	32
2.2	Composition isotopique des déchets pour un parc en cycle ouvert.	47
2.3	Composition isotopique des déchets pour un parc comprenant 1 passage MOX	49
2.4	Composition isotopique des déchets pour un parc comprenant deux passages MOX.	52
2.5	Déchets du multirecyclage MOX	53
2.6	Vecteur isotopique du plutonium à l'équilibre	55
2.7	Evolution de la masse des isotopes fissiles contenus dans les déchets	55
2.8	Contraintes imposées pour l'étude des configurations d'incinération.	63
2.9	Albédo de quelques matériaux	64

Chapitre III – Modèles mathématiques

3.1	Nombre de neutrons consommés lors de la transmutation $j \rightarrow k$	69
3.2	Coefficients d'arborescence pour le calcul de $\bar{\nu}$	79
3.3	Correspondance entre G et k_{eff} pour $\bar{\nu} \approx 3$	81
3.4	Nombre de neutrons nécessaires pour la transmutation des PFVL	97
3.5	Correspondance entre G , la puissance de l'ensemble des incinérateurs et l'intensité de l'ensemble des accélérateurs	100

Chapitre IV – Incinération sans recyclage: cas d'un combustible solide

4.1	Masse par isotope pour chaque scénario après 200 jours d'irradiation en spectre thermique	132
4.2	Caractéristiques des parcs d'incinérateurs en spectre thermique	148
4.3	Caractéristiques des parcs de réacteurs hybrides en spectre rapide	153

Chapitre V – Incinération sans recyclage: cas d'un combustible liquide

5.1	Bilan neutronique pour des taux de prélèvement particuliers.	158
5.2	Isotopes principaux à l'équilibre lors de l'incinération des déchets du cycle ouvert sous un flux thermique de 10^{15} n/cm ²	163

Chapitre VI: Incinération avec recyclages

6.1	Composition isotopique d'équilibre en spectre thermique	179
6.2	Taux d'incinération à réalisé pour chaque scénario	182
6.3	Composition isotopique à l'équilibre en spectre rapide	184
6.4	Taux d'incinération en spectre rapide	189
6.5	Taux d'incinération pour un retour au niveau de l'uranium naturel après 500 ans de stockage	189
6.6	Bilan neutronique pour un flux de 10^{15} n/cm ² s	192
6.7	Consommation de neutrons pour la transmutation des trois principaux produits de fission à vie longue	194
6.8	Paramètres des incinérateurs en spectre thermique	229
6.9	Répartition des neutrons pour les incinérateurs à spectre thermique	230
6.10	Paramètres des incinérateurs en spectre rapide	231
6.11	Répartition des neutrons pour les incinérateurs à spectre rapide	232
6.12	Sections efficaces moyennes des principaux isotopes pour différentes concentrations	233
6.13	Sections efficaces à 1/40 eV et intégrales de résonance	235
6.14	Conditions d'incinération de déchets nucléaires et gain radiotoxique pour chaque spectre suivant le cycle retenu.	248

Publication associée A : Dommages dans une fenêtre de réacteur hybride

Publication associée B : Mesure de $\sigma_{capture}({}^{242g}Am)$ à l'ILL

B.1	Details of the irradiation programme	279
-----	--	-----

Publication associée C : Code Monte-Carlo MCAP

Annexe A : Développements mathématiques

Annexe B : Données physiques

B.1	Sections efficaces moyennes utilisées pour les calculs d'irradiation	314
B.2	Chaîne 4n retenue pour le calcul avec la valeur des branchements	316
B.3	Chaîne 4n+1 retenue pour le calcul avec la valeur des branchements	316
B.4	Chaîne 4n+2 retenue pour le calcul avec la valeur des branchements	317
B.5	Chaîne 4n+3 retenue pour le calcul avec la valeur des branchements	317

Bibliographie

- [1] Loi n° 91-1381 du 30 décembre 1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs, Journal officiel de la République française, 1^{er} janvier 1992, pp 10-12.
- [2] J.P. Lemonnier et A. Sémary, *Notions de système. Spécifications. Analyse fonctionnelle*, Ecole thématique du CNRS : Conduite des grands projets en sciences de l'univers, Cargèse, 21-27 septembre 1994.
- [3] *ELECNUC, les centrales nucléaires dans le monde 1997*, CEA, 1997.
- [4] H. Mouney, *Cycles associés aux principales filières de réacteurs. Combustibles. Bilan en radionucléides*, Cours du DEA-3R, Université Paris XI, 1996.
- [5] M. Gauthron, *Introduction au génie nucléaire*, INSTN-CEA Collection Enseignement (1986).
- [6] H. Nickel, *Irradiation behavior of advanced fuel elements for the helium-cooled high temperature reactor (HTR)*, 7th CIMTEC World Ceramic Congress à Montecatini Terme, Italy, 24-30 juin 1990.
- [7] J.P. Schapira, *Les différents aspects du cycle actuel, de l'extraction de l'uranium au stockage des déchets*, Ecole Joliot-Curie de Physique Nucléaire, 1996.
- [8] J.L. Ricaud, *National and International efforts for safe and secured management of plutonium*, Conférence Global'97, Yokohama, Japon, octobre 1997.
- [9] CEA Direction de la Communication, *Livret Informations Utiles*, 1992.
- [10] R. Guillaumont, *Conditionnement des déchets radioactifs de l'aval du cycle*, Cours du DEA-3R, Université de Paris-Sud, 1996.
- [11] J.C. Niel, *Legislative and Regulatory Aspects of Radioactive Waste Management in France*, Nuclear Technology, vol. 115, aug. 1995.
- [12] Annals of the ICRP, ICRP Publication 72, Ed. Pergamon, **26** 1996.
- [13] H. Métivier, Cours de DEA 3R, Université Paris XI, édition 1995.
- [14] J.P. Schapira, *Transmutation des radionucléides à vie longue : Méthodes, Réacteurs, Accélérateurs*, Cours de DEA 3R, 1996-1997.
- [15] S. Sala, Thèse soutenue le 26 juin 1995, Université de Provence.

- [16] F. Marie, *Les produits de fission dans INCA*, Note Interne CEA DSM/DAPNIA/SPhN, 20/11/97.
- [17] Y. Kaluzny, *Research in France of disposing of long-lived highly radioactive waste in deep geological formations*, International Conference on future nuclear systems Global'97, Yokohama, Japan, 1997, pp 42.
- [18] P. Toulhoat, *Stockage des déchets nucléaires*, Cours du DEA-3R, Université Paris XI, 1996.
- [19] J.M. Peres, *Synthèse des évaluations d'impact des stockages profonds de déchets*, Atelier Gédéon du 12 novembre 1997 à Cadarache.
- [20] J.P. Lempert, *National and international views on radioactive waste disposal. The German perspective*, International Conference on future nuclear systems Global'97, Yokohama, Japan, 1997, pp 47.
- [21] J. Williams, *Geologic repository program in the United States*, International Conference on future nuclear systems Global'97, Yokohama, Japan, 1997, pp 34.
- [22] C.J. Allan et P. Baumgartner, *Back-end of the nuclear fuel cycle: a comparison of the direct disposal and reprocessing options*, International Conference on future nuclear systems Global'97, Yokohama, Japan, 1997, pp 51.
- [23] S. Leray, *Transmutation des déchets: les perspectives*, Ecole Joliot-Curie de Physique Nucléaire, 1996.
- [24] Thèse de Mlle. Huang Shio-Ling, *Concepts de cœur à neutrons thermiques pour la réduction des inventaires en actinides mineurs*, 25 octobre 1996.
- [25] Messaoudi Nadia, *Etude d'un réacteur à neutrons rapides (RNR) dédié à l'incinération des actinides mineurs*, Thèse soutenue le 27 février 1996, Université de Provence.
- [26] M. Salvatores et al, *Transmutation des déchets radioactifs à vie longue. Résultats des études à la DRN 1993-1995*, Note CEA, DRN/PP/CA/96/029, 1996.
- [27] J. Bussac, P. Reuss, *Traité de neutronique*, Collection Enseignements et Sciences, Ed. Hermann, 1985.
- [28] J. Blachot et al, *Status of delayed neutron data*, OECD/NEA, 1990.
- [29] Ravetto et al, *Neutron Dynamics of fluid-core source-injected sub-critical systems*, Reactor Physics Group, Politecnico di Torino, présentation à Rome, 1997.
- [30] *Séparation et Transmutation*, rapport de la Commission pour les questions scientifiques et techniques relatives à la gestion des déchets nucléaire, septembre 1996.
- [31] G. Youinou, *Etude conceptuelle de reacteurs nucléaires sous-critiques couplé à un accélérateur de protons destiné à la transmutation des transuraniens ou à la production d'énergie*, Thèse soutenue le 20 novembre 1997, Université de Provence.
- [32] Paul Scherrer Institut, Annual Report 1995.

- [33] P.Y. Beauvais *et al*, *The Saclay High Current Proton and Deuteron ECR Source*, LINAC 96, Geneva, Switzerland, 1996.
- [34] J.M. Lagniel *et al*, *IPHI, The Saclay High Intensity Proton Injector Project*, PAC 97, Vancouver, USA, 1997.
- [35] J.M. Lagniel *et al*, *High Intensity Linac Studies in France*, LINAC 98, Chicago, USA, August 1998.
- [36] G.P. Lawrence, *Critical design Issues of High intensity proton linacs*, Proceedings of the 4th European Particule Accelerator Conference, Vol. 1, 236, London, England, 1994.
- [37] J. Cugnon, *Spallation Reactions*, Ecole Joliot-Curie de physique nucléaire, 1996.
- [38] S. Leray *et al*, paper to be submitted to Phys. Rev. Letters.
- [39] S. Leray *et al*, *Spallation neutron studies at Saturne*, International conference on Physics of Nuclear Science and Technology, Long Island, october 1998.
- [40] W.B. Amian *et al*, Nucl. Scien. Eng. **112**, 78, 1992.
- [41] T. Nakamoto *et al*, Journ. Nucl. Scien. Tech. **32-9**, 827, 1992.
- [42] R. Michel *et al*, Nucl. Inst. Meth. **B113**, 429 et 434, 1996.
- [43] F. Farget *et al*, Proceedings of the 2nd International workshop on Nuclear Fission and Spectroscopy, Seyssin, France, 1998.
- [44] G. Ritter *et al.*, *Cible de spallation: Aperçu des contraintes technologiques*, Note Technique CEA NT-SPRC-LEDC-97/400 (1997).
- [45] H. Lengeler, *The European Spallation Source study (ESS)*, Proceedings of the 13th international collaboration on advanced neutrons sources conference, 819, Villigen, PSI, 1995.
- [46] J. I. Orlov *et al*, *Experimental investigation of hydrodynamics of liquid lead-bismuth target without window*, Proceedings of the Second International Conference on Accelerator-driven transmutation technologies and applications, Vol 2, 917, Kalmar, Sweden, 1996.
- [47] C. Rubbia *et al.*, *Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier*, CERN/AT/95-44(ET), 1995.
- [48] Uematsu, *Etude physique du couplage d'un accélérateur et d'un réacteur sous-critique pour la transmutation des déchets nucléaires*, Thèse soutenue le 28 novembre 1994, Université de Provence Aix-Marseille I.
- [49] Y. I. Chang, *The Integral Fast Reactor*, Nuclear Technology, 129, 1989.
- [50] P. Bardelle *et al*, *European collaboration on mixed nitride fuel*, Proceedings of the international conference on fast reactors and related fuels, Kyoto, Japan, 1991.
- [51] Y. Arai *et al*, *Research on actinide mononitride fuel*, Proceedings of the GLOBAL'95 conference, Versailles, France, 1995.

- [52] C.D. Bowman *et al.*, *Nuclear energy generation and waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source*, Nuclear Instruments and Methods A320 (1992) 336-367.
- [53] *Molten Salt Reactors*, Nuclear Applications and Technology, Vol 8, 102, 1970.
- [54] H.G. MacPherson, *The molten salt reactor adventure*, Nuclear Science and Engineering, 90, 1985.
- [55] C. Madic, *Aspects chimiques des cycles des combustibles irradiés*, Cours du DEA-3R, Université de Paris-Sud, 1996.
- [56] C. Rubbia *et al.*, *Fast neutrons incineration in the Energy Amplifier as alternative to geologic storage: the case of Spain*, CERN/LHC/97-01(EET), 1997.
- [57] A. Leudet, *Avantages/inconvénients des procédés pyrochimiques*, Atelier Gédéon "Procédés pyrochimiques", 16-18 septembre 1998, Paris.
- [58] A. Lecocq, K. Furukawa, *Utilisation of molten salt technologies and of thorium for the solution of global energy problems*, "White Lands" International conference, St. Petersburg, Russia, février 1996.
- [59] F. Venneri *et al.*, *Disposition of nuclear waste using subcritical accelerator-driven systems: technology choices and implementation scenario*, 6th International conference on nuclear engineering, INCOE-6, 1998.
- [60] F. Carminati *et al.*, *An energy amplifier for cleaner and inexhaustible nuclear energy production driven by a particle beam accelerator*, CERN/AT/93-47(ET), 1993.
- [61] C. Bowman, *Once-through Thermal-Spectrum Accelerator-Driven System for LWR Waste Destruction Without Reprocessing: Average Fission Product Capture Cross Sections*, Report ADNA/98-03.
- [62] J. C. Browne *et al.*, *Accelerator-driven transmutation of waste*, Los Alamos National Laboratory.
- [63] T. Takizuka *et al.*, *Conceptual design study of accelerator-driven systems for nuclear waste transmutation*, Proceedings of the 2nd international conference on accelerator-driven transmutation technologies and applications, Kalmar, Sweden, Vol. 1, 179, 1996.
- [64] T. Nishida *et al.*, *Conceptual study of accelerator-based transmutation plant*, Proceedings of the 2nd international conference on accelerator-driven transmutation technologies and applications, Kalmar, Sweden, Vol. 1, p 210, 1996.
- [65] G. Ritter *et al.*, *Réacteur hybride expérimental: Configuration envisageable*, Note Technique CEA DER/SPRC/LEDC 96/4133.
- [66] M. Salvatores *et al.*, *Les Incas dans ISAAC: des hybrides au service du cycle du plutonium à double strate*, Note Technique CEA DRN/P/97-001, 1997.
- [67] G. Ritter, note technique à paraître et communication privée.

- [68] A. Tchistiakov, *Etude du potentiel de transmutation et des caractéristiques de sûreté d'un système hybride : accélérateur - réacteur sous-critique*, Thèse soutenue le 7 avril 1998, Université de Provence Aix-Marseille I.
- [69] M. Delpéch *et al.*, *Multirecyclage de Plutonium en REP et RNR - Impact réacteur et scénarios*, Note Technique CEA DRN/DER/SRPC/LEDC/96-461, 1996.
- [70] Rapport Castaing
- [71] M. Viala, Note Interne CEA DCC/DIR/97/812 (1997).
- [72] P. Reuss, communication privée.
- [73] M. Salvatores *et al.*, *A Global Physics Approach to Transmutation of Radioactive Nuclei*, Nuclear Science and Engineering, **116**, 1-18 (1994).
- [74] F. Doneddu, *Le code neutronique ACTIN : calcul de transmutation et d'incinération de noyaux*, Note Technique CEA DCC/DPE/SPEA/SEPC/95-NT-30, 1995.
- [75] T. Iwasaki and N. Hirakawa, *Neutron Economy and Transmutation performance of coupling system of fast reactor and A-burner*, Global'95, 1708 (1995).
- [76] M. Salvatores *et al.*, *Analysis of Nuclear Power Transmutation Potential at Equilibrium*, Nuclear Science and Engineering, **116**, 1-18 (1994).
- [77] F. Lelièvre, *Calcul de la section efficace moyenne des produits de fission*, Note Interne CEA DSM/DAPNIA/SPP, 4/7/96.
- [78] M. Segev *et al.*, *Transmutation of Neptunium, Americium, Technetium, and Iodine in Fast Spectrum Cores driven by Accelerated Protons*, Nuclear Science and Engineering, **122**, 105-120 (1996).
- [79] H. Sekimoto and K. Kanai, *Trade-off between neutron balance and LLFP incineration*, Global'97 conference, p. 236 (1997).
- [80] M. Salvatores *et al.*, *On transmutation of long-lived fission products*, Note Technique CEA DRN/PP/CAD/97/279 - MS/BLF
- [81] G. Ritter *et al.*, *Evaluation neutronique d'un système hybride refroidi au plomb et utilisant le cycle Thorium 232 - Uranium 233*, CEA-Report, DER/SRPC/LEDC/4194 (1996).
- [82] F. Doneddu, *Modèle dynamique de réacteur hybride sphérique homogène*, Note Technique CEA DCC/DPE/SPEA/SEPC/97-NT-03, 1997
- [83] F. Lelièvre, *New tools to dimension hybrid reactors in view of transmutation*, Note Technique CEA-DAPNIA SPP/98.05, submitted to Nuclear Science and Engineering.
- [84] P. Germain-Lacour, *Mathématiques et CAO 3 : Calcul scientifique*, Ed. Hermès, 1987
- [85] D. Landel, *Réacteurs industriels à eau lourde*, Techniques de l'Ingénieur.
- [86] J. Fréhaut, *Domages dans les Matériaux Irradiés*, Note Interne CEA.

- [87] W.J. Pythian *et al.*, *A comparison of displacement cascades in copper and iron by molecular dynamics and its application to microstructural evolution*, Journal of Nuclear Materials 223 (1995) 245-261.
- [88] M. Robinson, *Basic Physics of radiation damage production*, Journal of Nuclear Materials 216(1994)1-28.
- [89] L.R. Greenwood, *Neutron interactions and atomic recoil spectra*, Journal of Nuclear Materials 216 (1994) 29-44.
- [90] A. Barbu, G. Martin, *Radiation Effets in Metals and Alloys*, Solid State Phenomena Vol 30-31 (1993), pp.179-228.
- [91] J.L. Flament, *Calculation of Radiation Damages induced by high energy light particles. Application to spallation*. Private Communication.
- [92] M.J. Norgett *et al.* Nucl. Eng. Des 33 (1975) 50.
- [93] J. Lindhard *et al.*, Mat. Fys. Medd. 33 (14) 1963.
- [94] P.Cuendet, *Les dpa*, Private Communication CEA.
- [95] D. Simeone, *Une méthode de calcul des dpa dans les solides polyatomiques*, CEA DMT 96/401.
- [96] A. Alberman, D. Lesieur, American Society for Testing and Materials, Philadelphia 19103 1989, p. 560.
- [97] R. Serber, Phys. Rev 72 (1947) 1114.
- [98] J. Cugnon, Nuclear Physics A462, 751-780 (1987).
- [99] J. Cugnon *et al.*, Nuclear Physics A620 (1997), **475**.
- [100] D. Durand, Nuclear Physics A541, 266-294 (1992).
- [101] X. Blanchard *et al.*, Proceedings of the 2nd International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, Kalmar, July 1996, p. 543.
- [102] W.R. Webber *et al.*, Phys. Rev C **41** (1990) 520.
- [103] D.J. Morrissey, *Systematics of momentum distributions from reactions with relativistic ions*, Physical Review C 39,2 (1989).
- [104] A.S. Goldhaber, *Statistical Models of Fragmentation Processes*, Physics Letters 53B, 4 (1994).
- [105] E.J. Moniz *et al.*, Phys. Rev. Lett. 26 (1971) 445.
- [106] S. Green, *Calculated Radiation Damage Effects of High Energy Proton Beams*, Journal of Nuclear Materials 126(1984)30-37.
- [107] T.W. Armstrong and K.CX. Chandler, Nucl. Sci. Eng. **49** (1972) 110.

- [108] A. Chaumeaux *et al.*, *Proton Scattering at 1 GeV*, Annals of Physics 116, 247-357(1978).
- [109] J. Raynal, notes on ECIS94, unpublished.
- [110] S. Hama *et al.*, Phys. Rev. C **41** (1990) 2737.
- [111] E.D. Cooper *et al.*, Phys. Rev. C **47** (1993) 297.
- [112] M. Cribier, G. Fioni, R. Legrain, F. Lelievre, S. Leray, A. Pluquet, H. Safa, M. Spiro, Y. Terrien, Ch. Veyssiere, *INCA: Incineration par accélérateur*, CEA-report, DAPNIA (1997) 97-01;
- [113] JEF-2.2, The evaluated neutron nuclear data library of the NEA Data Bank, IAEA-Vienna, IAEA-NDS-120 Rev. 3 (1996)
- [114] ENDF/B-VI, The US evaluated nuclear data library for neutron reaction data, IAEA-Vienna, IAEA-NDS-100 Rev. 6 (1995)
- [115] JENDL-3.2, The Japanese Evaluated Nuclear Data Library, IAEA-Vienna, IAEA-NDS-110 Rev. 5 (1994)
- [116] T. Nakagawa and S. Igarasi, *Evaluation of neutron nuclear data for ^{242m}Am and $^{242gs}\text{Am}$* , JAERI report, M8903 (1980)
- [117] Y. Terrien, CEA report, DSM/DAPNIA/SPhN 98-56 (1998)
- [118] F. Gunsing, G. Fioni, *Neutron flux determination from iron monitors for the ^{241}Am transmutation experiment*, CEA-report, DAPNIA/SPhN (1998) 98-07.
- [119] F. Marie, T. Bolognese, M. Cribier, G. Fioni, F. Gunsing, , J. Martino, A. Pluquet, M. Spiro, *Gamma spectroscopy of neutron irradiated ^{241}Am samples*, G. Fioni et al. Editors, American Institute of Physics Conference Series, in press.
- [120] N. Shinohara, Y. Hatsukawa, K. Hata, N. Kohno, Journal of Nucl. Sci. and Technology, Vol. 34, No. 7. P.613-621 (July 1997).
- [121] V.M. Maslov, IAEA- Vienna, INDC(BLR) - 007 (January 1997).
- [122] R.E. Prael and M.B. Chadwick, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste, Italy.
- [123] Joseph Cugnon, *Spallation reactions*. Proceedings of the *Ecole Joliot Curie de physique nucléaire*, Maubuisson, France (1996).
- [124] Joël Fréhaut, *Physique des cibles de spallation: les codes et leur validation*. Proceedings of the *Ecole Joliot Curie de physique nucléaire*, Maubuisson, France (1996).
- [125] Jean Bussac, Paul Reuss, *Traité de neutronique*, Paris (1985).
- [126] Emilio Segre, *Nuclei and Particles*. New York, (1965).
- [127] Terrell *Phys. Rev.*, **108**,783 (1957).

- [128] J.P. Shapira, *Transmutation des Radionucléides à vie longue: Méthodes, Réacteurs, Accélérateurs*. Cours de DEA 3R, (1995-1996).
- [129] http://www.nea.fr/html/dbdata/nds_evaluated.htm
<http://t2.lanl.gov/data/data.html>
- [130] Frédéric Lelièvre, *Stratégies pour l'incinération de déchets nucléaires dans des réacteurs hybrides*. PhD thesis, Paris XI, (1998).
- [131] Publication NEA/NSC/DOC(95)03/I (PU-MET-FAST-001) of the ICSBEP (International Safety Benchmark Evaluation Project).
- [132] <http://www.nea.fr/html/dbprog/>
- [133] – Atelier GEDEON *Méthodes et outils numériques pour les systèmes hybrides*. ISN Grenoble, France, 5 juin 1997.
– Workshop on *Physics of Accelerator Driven Systems for Nuclear Transmutation and Clean Energy Production*. Trento, Italy, 29 September - 3 October 1997
– Fourth International Conference on *Dynamical Aspects of Nuclear Fission*. October 19 - 23, 1998, Casta-Papiernicka, Slovak Republic
- [134] J. Planchard, *Méthodes mathématiques en neutronique*, Collection de la Direction des études et recherches d'Electricité de France, Eyrolles, 1995.
- [135] D. Landel, *Réacteurs industriels à eau lourde*, Techniques de l'Ingénieur **B 3 210**, 1989.
- [136] R. Durand-Smet, *Réacteur à eau sous pression*, Techniques de l'Ingénieur **B 3 100**, 1997.
- [137] A. Guyader, *Réacteur à eau ordinaire bouillante*, Techniques de l'Ingénieur **B 3 130**, 1972.

Résumé

Le potentiel des réacteurs hybrides pour l'incinération des déchets nucléaires est indéniable. Mais avant de se lancer dans une étude détaillée d'un projet, il convient (i) d'examiner leur domaine d'application et (ii) de comparer les différentes configurations possibles pour orienter les choix technologiques.

Les réacteurs hybrides sont une solution attrayante pour transmuter les déchets nucléaires. Il convient (i) de vérifier que ces réacteurs ont bien un intérêt, et ce dans quelles conditions, et (ii) d'étudier les différentes configurations possibles pour orienter les choix technologiques.

Nous proposons une démarche déductive répondant à ces objectifs, fondée sur la description explicite d'un parc de réacteurs hybrides. Il est possible, en effet, à partir uniquement de l'objectif de transmutation et de quelques contraintes technologiques que l'on peut prendre *a posteriori*, de déterminer de manière précise les paramètres essentiels de ce parc : nombre de réacteurs, intensité par unité, taille des cœurs, sous-criticité ... Cette démarche fait clairement apparaître les choix stratégiques, qui ne sont plus du ressort exclusif du scientifique ou de l'ingénieur.

Cette approche est appliquée à trois cycles de combustible distincts : l'incinération avec un combustible solide sans recyclage, l'incinération avec un combustible liquide sans recyclage, l'incinération avec un combustible liquide et un retraitement en ligne ; et ce pour deux spectres, l'un thermique, l'autre rapide. La réduction de l'inventaire radiotoxique pour un combustible solide n'est significative qu'en spectre rapide, mais les durées d'irradiation sont de l'ordre de 20 à 30 ans. Le combustible liquide, quant à lui, n'est approprié que dans le cadre d'un retraitement "en ligne", avec une mise à l'équilibre. Les gains peuvent alors être très importants et nous avons décrit les parcs de réacteurs hybrides qui peuvent les réaliser.

L'intérêt des réacteurs hybrides pour l'incinération des déchets nucléaires est ainsi confirmé, mais il convient de dénombrer et d'analyser précisément les configurations susceptibles de remplir au mieux le cahier des charges.

Abstract

The transmutation of nuclear wastes in accelerator-driven nuclear reactors offers undeniable advantages. But before going into the detailed study of a particular project, we should (i) examine the possible applications of such systems and (ii) compare the different configurations, in order to guide technological decisions.

We propose an approach, answering both concerns, based on the complete description of hybrid reactors. It is possible, with only the transmutation objective and a few technological constraints chosen *a posteriori*, to determine precisely the essential parameters of such reactors : number of reactors, beam current, size of the core, sub-criticality ... The approach also clearly pinpoints the strategic decisions, for which the scientist or engineer is not competent.

This global scheme is applied to three distinct nuclear cycles : incineration of solid fuel without recycling, incineration of liquid fuel without recycling and incineration of liquid fuel with on-line recycling ; and for two spectra, either thermal or fast. We show that the radiotoxicity reduction with a solid fuel is significant only with a fast spectrum, but the incineration times range from 20 to 30 years. The liquid fuel is appropriate only with on-line recycling, at equilibrium. The gain on the radiotoxicity can be considerable and we describe a number of such systems.

The potential of ADS for the transmutation of nuclear wastes is confirmed, but we should continue the description of specific systems obtained through this approach.

Mots-Clés

déchets nucléaires, transmutation, réacteurs hybrides, optimisation, inventaire radiotoxique, bilan neutronique, fenêtre, capture de l' ^{242g}Am , solution analytique, Monte-Carlo

Keywords

nuclear waste, transmutation, hybrid reactors, optimisation, radiotoxicity, neutron economy, window, ^{242g}Am capture, analytical resolution, Monte-Carlo