REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE FERHAT ABBAS- SETIF

THESE

Présentée à la Faculté des Sciences
Département de Physique
Pour l'obtention du diplôme de

DOCTORAT EN SCIENCES

OPTION : Génie Nucléaire

Par

Naima AMRANI

THEME

DESTRUCTION (TRANSMUTATION)DES PRODUITS DE FISSIONS A VIES LONGUES DANS LES REACTEURS THERMIQUES: APPLICATION TECHNETIUM-99

Soutenue le :…./…./….

Devant le jury

M. MAAMACHE	Professeur	Université de Sétif	Président
A. BOUCENNA	Professeur	Université de Sétif	Rapporteur
M. RAMDHANE	Professeur	Université Mentouri Constantine	Examinateur
A. BELFRITES	Maître de Conférences	Université de Jijel	Examinateur
H. AIT ABDERRAHIM	Directeur de Recherche	SCKCEN Belgique	Invité
H. BOECK	Professeur	ATI Vienne Autriche	Invité

A la mémoire de ma mère

Remerciements

Le présent travail a été effectué au Laboratoire DAC, Département de Physique, Faculté des Sciences, Université Ferhat Abbas – Sétif.

Que Monsieur Ahmed BOUCENNA, Professeur à l'Université Ferhat Abbas – Sétif, reçoive toute l'expression de ma reconnaissance pour m'avoir proposé ce sujet de recherche, et, pour tout son dynamisme et ses compétences scientifiques qui m'ont permis de mener à bien cette thèse.

Je tiens tout particulièrement à remercier Monsieur M. MAAMACHE, Professeur à l'Université Ferhat Abbas – Sétif, de me faire l'honneur de présider ce jury.

Je remercie également Monsieur D. RAMDHANE, Professeur à l'Université Mentouri – Constantine, Monsieur A. BELFRITES, Maître de Conférences à l'Université de Jijel, Monsieur H. AIT ABDERRAHIM, Directeur de Recherches au centre SCKCEN- Belgique et Monsieur H. BOECK Professeur à l'université ATI, Vienne- Autriche qui ont bien voulu juger ce travail.

Je tiens aussi à remercier tous les Enseignants et le Personnel de la faculté des sciences, qui m'ont aidé durant la réalisation de ce travail.

Enfin je voudrai témoigner mes sincères remerciements à tous mes amis qui m'on encouragés et soutenus pour réaliser ce travail.

Résumé

L'une des voies envisagées pour le traitement des déchets nucléaires est la transmutation dont le principe est basé sur la transformation de l'élément radiotoxique à vie longue par une réaction nucléaire vers un autre élément moins radioactif ou stable. Le technétium 99 (^{99}Tc) de vie moyenne très longue 2.1 10^5 ans est présent avec une quantité significatif dans les déchets nucléaires. Par capture neutronique, il donne le technétium -100 (^{100}Tc) de vie moyenne 15.8 s et qui décroît par émission d'une particule bêta (β^-) pour donner le ruthénium-100 (^{100}Ru) stable. La transmutation du ^{99}Tc dans les réacteurs thermiques est possible mais le taux de transmutation évalué par le code de calcule ChainSolver est faible autour de 15.92% pour une période à plein puissance de 579.3 jours. En nous Basant sur ces résultats on propose le concept d'un réacteur de recherches à neutrons rapide destiné à la transmutation du Technétium-99, avec un taux qui peut atteindre les 83%.

Abstract

The transmutation is one of the famous modes for the nuclear wastes management. It is based on the transformation of the radiotoxic element to the stable one by nuclear reaction. The technetium 99 (^{99}Tc) with half life of 2.1 10^5 year is present with a significantly amount in the nuclear waste inventory. After neutronic capture, it became technetium -100 (^{100}Tc) with half life of 15.8 s witch decay by emission of beta particle (β^-) to the ruthénium-100 (^{100}Ru) stable. The transmutation of ^{99}Tc in the thermal fission reactors is possible but the evaluated transmutation rate with chainSolver code is about 15.92% for an irradiation period of 579.3 full powers days. Based on this estimation a conceptual high flux researches reactor for transmutation of Technetium-99 is proposed with a transmutation rate of 83%.

ملخص:

تعد الأكسرة من بين السبل الأكثر نجاعة في معالجة البقايا المشعة السامة. مبدؤها الأساسي يرتكز على تحويل العنصر المشع ذو الأمد الطويل إلى عنصر آخر اقل إشعاعا و أمدا و في أحسن الخروف إلى عنصر مستقر بواسطة تفاعلات نووية خاصة. التكنيسيوم-99 (^{99}Tc) نصف مدة تواجده تحل إلى 2.1×10^5 سنة و هو متواجد بكميات معتبرة في الوقود النووي المستنفذ. التقاطه لنترون ينجم عنه التكنيسيوم- 100 (^{100}Tc) نصف مدة تواجده تحل إلى 15.8 ثانية و الذي يتهافت بإرسال جسيم β^- ليعطي الريثينيوم- 100 (^{100}Ru) المستقر. أكسرة التكنيسيوم- 99 ممكنة في مفاعلات الإنشطار المبطئة لكن بمردود ضعيف تم حسابه بواسطة البرنامج الحسابي chainSolver قدر بـ 15.92% . اعتمادا على هذه التقديرات نقترح مفاعل سريع افتراضي لأكسرة التكنيسيوم بمردود يحل 83 %.

Sommaire

Introduction 1

Chapitre 1
Gestion des déchets nucléaires

1. Energie nucléaire ……..…….……3

2. L'histoire du nucléaire…….…..……4

3. La transmutation des déchets nucléaires…….…….……6

3.1.Origine des déchets nucléaires ...…….....6

3.2.Classification des déchets nucléaires…….……..9

4. La gestion des déchets nucléaires ……...……11

5. Impact de la transmutation sur la stratégie de gestion des déchets nucléaires……...……12

6. L'intérêt international de la transmutation ……...…15

Chapitre 2
La Transmutation Nucléaire

1. Gestion du combustible nucléaire irradié …….17

2. Radiotoxicité du combustible usé …….……..18

2.1. Quantification de la toxicité des déchets radioactifs…….…. 18

2.2. Radiotoxicité……. 19

2.3. L'avantage des opérations de séparation et transmutation sur la gestion des déchets …… 20

3. La Transmutation nucléaire ……..….24

3.1. Concepts de base ……..……24

3.2. Séparation chimique ……..…….24

.

3.3. Le processus de transmutation …….……....26

a. La transmutation des actinides mineurs ……..….27

b. La transmutation des produits de fission …… ..……...29

4. Les systèmes de transmutation ……...…….31

5 Conséquences de la transmutation sur les paramètres de sûreté ……...… .33

Chapitre 3
Code de calcul ChaineSolver

1. Base théorique du code ……35

1.1. Equation Différentiel Ordinaire (DOE)……...…36

1.2. Résolution de l'équation différentielle ordinaire (Equation de Batteman) ……..…38

2. Présentation du code de calcule ChainSolver ……...…41

2.1. La page des Chaînes «Chain» …….……42

2.2. Page des "conditions"……..……45

2.3. La page des temps d'irradiations « Time » …….……46

2.5. La page du calcule "Calc" ……..……...48

2.6. La page des réponses "Answers" ……...…50

Chapitre 4
Transmutation du Technétium-99

1. Le Technétium 99 ……....52

1.1. Caractéristiques…….....52

1.2. Séparation chimique du Technétium 99 par procédé PUREX……...53

1.3. Fabrication du technétium métal …….…...53

1.4. Réaction de transmutation……...…55

2. Transmutation du Technétium-99 dans le Réacteur de recherches thermique (HFR) ...57

2.1. Le réacteur de recherches thermique (HFR)……...…57

2.2. Les tests d'irradiations du Technétium-99……... 59

2.3. Evaluation du taux de transmutation du Technétium-99 :
Résultats et Interprétation……..……60

3. Transmutation du technétium-99 dans le Réacteur de recherches à neutrons rapides JOYO……...……60

3.1. Le réacteur JOYO……...….60

.

3.2. Evaluation du taux de transmutation ……..63

3.3. Résultats et Interprétations ……65

4. Le réacteur conceptuel à haut flux rapide de transmutation……...66

4.1. Présentation du réacteur conceptuel …….…..... .66

4.2. Résultats et interprétation …… ……. 66

Conclusion ….…..…..…..

Références ……..……70

Introduction

L'énergie nucléaire telle qu'on l'utilise aujourd'hui provient de la fission des noyaux lourds ; lorsqu'un tel noyau fissionne, il libère une énergie d'environ 200 MeV [1]. La production de déchets est le prix à payer pour la production d'énergie à partir du phénomène de fission nucléaire. Toute matière contenant des noyaux radioactifs (radionucléides) en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles, est considérée comme déchets nucléaires [2]. Cette introduction a simplement pour objet de situer la thèse dans un contexte plus général.

Le traitement des combustibles usés, a pour fonction l'extraction de l'Uranium et le Plutonium et de conditionner les autres radioéléments à vies longues restant dans une matrice de verre. Ce tri sélectif, effectué selon plusieurs types de procédés chimiques, conduit à un volume et une toxicité ultimes des déchets significativement réduits par rapport à ceux du combustible avant traitement. Le concept de séparation chimique peut être appliqué à plusieurs radioéléments possédants une forte radiotoxicité et une durée de vie longue comme certains actinides mineurs (Américium, Neptunium et curium) et produits de fission (Technétium-99, Iode-129 et Césium-135). Ces radioéléments, une fois séparés, pourront être transmutés, c'est - à- dire transformés par une réaction nucléaire en éléments non radioactifs ou à durée de vie plus courte.

Dans ce travail nous avons étudié la transmutation des radioéléments à vie longue dans les réacteurs thermiques par évaluation du taux de transmutation avec le Code ChainSolver. Le technétium 99 (^{99}Tc) de vie moyenne très longue 2.1 10^5 ans est présent avec une quantité significatif dans le combustible nucléaire usé. Par capture neutronique, il donne le technétium-100 (^{100}Tc) de vie moyenne 15.8 s et qui décroît par émission d'une particule bêta (β^-) pour donner le ruthénium-100 (^{100}Ru) stable. La transmutation du ^{99}Tc dans les réacteurs thermiques est possible mais le taux de transmutation évalué par le code de calcul ChainSolver est faible autour de 15.92 % pour une période à plein puissance de 579.3 jours. En nous basant sur ces résultats on propose la conception d'un réacteur de recherches à neutrons rapide destiné à la transmutation du Technétium-99, avec un taux qui peut atteindre les 83 %.

Dans le premier chapitre est introduite la problématique de la gestion des déchets nucléaires. Le chapitre 2, présente les concepts de base liés à la transmutation et la radiotoxicité des déchets nucléaires. On donne aussi un aperçu des principales caractéristiques du cycle du combustible ainsi que les vois de gestion des déchets radioactifs.

Dans le troisième chapitre on décrit le code de calcul ChaiSolver utilisé pour l'évaluation de la concentration d'un radioélément sous irradiation au cours du temps c-à-d l'évaluation du taux de transmutation. La base théorique du code est présentée.

La première partie du quatrième chapitre est dédiée au calcul du taux de transmutation pour le technétium-99 dans le réacteur de recherches thermique à haut flux de Petten pour les comparer avec ceux les valeurs expérimentales. Dans la deuxième partie on calcule le taux de transmutation pour le Technétium-99 dans le réacteur de recherche à flux rapide 'JOYO'. Une comparaison entre les deux types de réacteurs nucléaires est réalisée. L'option d'un réacteur à neutrons rapide dédié à la transmutation des produits de fission à vie longue, spécialement le Tc-99 est proposée. Le taux de transmutation du Technétium-99 dans ce réacteur conventionnel est évalué.

Gestion des Déchets Nucléaires

1. L’énergie nucléaire

L'énergie est difficile à définir simplement autrement qu'à travers ses effets et ses variations. Son étude est à la base de la physique. La maîtrise de l'énergie est donc le moteur de l'activité humaine. L'homme doit la stocker, la transporter, ce que certaines formes d'énergie permettent mieux que d'autres. Pour ces raisons, il peut être conduit à transformer l'énergie. La découverte de l'électricité a constitué une révolution : toutes les formes connues d'énergie peuvent être transformées en énergie électrique. L'électricité peut ensuite être elle-même facilement transportée puis transformée en mouvement ou en chaleur pour l'utilisateur final.
Le charbon, le pétrole et le gaz naturel sont les énergies fossiles. Ils proviennent de la transformation de la biomasse (arbres, plantes, animaux, micro-organismes) enfouie depuis plusieurs milliers ou millions d'années. Ces énergies fossiles ne sont pas renouvelables. Au rythme actuel de leur consommation, le temps nécessaire à leur reconstitution dépasse largement le temps nécessaire aux hommes pour utiliser totalement les stocks existants [3].
Le pétrole fournit 37 % de l'énergie consommée dans le monde, 43 % en Europe (où il représente 98 % de l'énergie consommée par les transports). Le gaz fournit 24 % de l'énergie consommée dans le monde et en Europe. Cette part s'élève à 54 % dans l'ex-Union soviétique.
Le charbon fournit 25 % de l'énergie consommée dans le monde. Le charbon fournit 66 % de l'énergie consommée en Chine et 56 % de celle qui est consommée en Inde. La consommation de charbon augmente beaucoup plus vite en Chine que dans le reste du monde (27,9 % d'augmentation entre 2001 et 2002, contre 0,6 % d'augmentation en moyenne dans le reste du monde) [4].
L’autre forme d’énergie utilisée actuellement est l'énergie nucléaire. L’énergie nucléaire est l'énergie de liaison des constituants du noyau d'un atome. La fission de certains atomes lourds comme l'uranium ou le plutonium, et la fusion d'atomes légers, libère de la chaleur. Dans les centrales nucléaires, cette chaleur est utilisée pour produire de l'électricité [5]. La fission nucléaire est la source d'énergie la plus concentrée utilisable actuellement. L'Europe et l'ex-Union

Soviétique produisent 46 % de l'énergie nucléaire mondiale et l'Amérique du Nord produit 33,6 %. L'énergie nucléaire fournit 8 % de l'énergie consommée aux Etats-Unis, et 14 % en Europe, En France elle fournit 38 % de l'énergie produite (400 milliards de kWh d'électricité par an, 78 % de l'électricité produite). En Asie, l'énergie nucléaire est utilisée principalement au Japon (14 % de l'énergie consommée, en Corée du Sud (13 %) et à Taiwan (10 %). Elle fournit 1,4 % de l'énergie consommée en Inde, 0,9 % au Pakistan, 0,6 % en Chine, 2,4 % en Argentine et 1,9 % au Brésil [6].

Les réserves de minerai d'uranium exploitées actuellement sont dispersées dans de nombreux pays : 29 % dans l'ex-Union Soviétique, 20 % en Australie, 18 % en Amérique du Nord et 17 % en Afrique. Il est probable que de nombreux gisements restent à découvrir.
La durée de vie des réserves est difficile à préciser car la consommation d'uranium dépendra en grande partie de l'évolution technique des centrales nucléaires. La consommation de minerai peut être notablement diminuée en retraitant le combustible après son utilisation dans les centrales. En effet, 96 % du combustible usé est constitué d'éléments qui peuvent encore fournir de l'énergie. On obtient ainsi le MOX (Mélange d'Oxyde d'Uranium et du Plutonium), qui peut remplacer en partie le combustible initial. Dans tous les cas, les réserves sont largement suffisantes pour plus d'un siècle. Le prix du combustible ne représente que 10 à 20 % du coût du kWh fourni par une centrale nucléaire [7]. [8]

2. L'histoire du nucléaire

L'énergie nucléaire telle qu'on l'utilise aujourd'hui provient de la fission des noyaux lourds ; lorsqu'un tel noyau lourd fissionne, il libère une énergie d'environ 200 MeV sous forme de chaleur [1]. La chaleur dégagée au cours de la fission peut être utilisée pour générer de l'électricité. L'un des isotopes qui fissionne facilement c'est l'uranium-235. Durant la fission, l'atome d'uranium-235 absorbe un neutron ce qui le rend instable et par conséquent susceptible à se casser en deux ou en trois (dans certains cas) atomes plus légers appelés produits de fission. La somme des masses des produits de fission est inférieure à celle de l'atome initial de l'U-235. Cette diminution est due au fait que cette différence de masse s'est transformée en énergie qui sera dégagée sous forme de chaleur. Parallèlement deux ou trois neutrons sont aussi produits. Ces neutrons vont eux aussi provoqués d'autres réactions de fission appelées réaction en chaîne [9].

En 1934, à Rome, En bombardant une cible d'uranium avec des neutrons, Enrico Fermi n'a pas obtenu l'élément qu'il attendait. Les éléments résultants étaient plus légers que l'uranium. Ces expériences ont confirmé qu'un atome bombardé par un neutron peut fissionner en deux ou plusieurs autres atomes. Vers la fin de 1938, les Allemands Otto Hahn et Fritz Strassman ont utilisé une source de neutrons qui contenait le Radium et le Béryllium pour bombarder une cible d'uranium. Ils ont été surpris de trouver parmi les résidus des éléments plus légers tels que le Baryum (Z=56) dont la masse est presque égale à la moitié de la masse atomique de l'uranium. Dans plusieurs processus les atomes peuvent se casser pour dégager une grande quantité d'énergie, ceci peut être possible si une quantité suffisante d'uranium est traitée sous des conditions spécifiques. La masse d'uranium nécessaire pour avoir une réaction en chaîne auto entretenue est appelée masse critique. Fermi et son associé Léo Szilard ont proposé la configuration possible pour un réacteur à chaîne d'uranium en 1941. Au début de 1942 un groupe de scientifiques dirigé par Fermi développe les théories de la fission à l'université de Chicago. En novembre de la même année, ils étaient prêts à construire le premier réacteur dans le monde connu sous le nom de la pile de Chicago 1 [10].

Il existe dans la nature seulement trois noyaux qui sont susceptibles de fissionner. Il s'agit de deux isotopes de l'uranium (^{235}U et ^{238}U) et le thorium (^{232}Th). Parmi ces noyaux, seul l'^{235}U fissionne facilement lorsqu'il est bombardé par les neutrons, c'est donc lui qui est utilisé dans la quasi-totalité des réacteurs actuels [11]. Les premières recherches se sont focalisées sur le développement des armes effectives pour être utilisées dans la deuxième guère mondiale. Ce projet a été réalisé sous le code appelé projet de Manhattan. Apres la guère le gouvernement des Etats Unis a encouragé le développement de l'énergie nucléaire pour des fins pacifiques. La commission a autorisé la construction du premier réacteur expérimental de la première génération sur le site de Idaho. Le réacteur a généré la première énergie électrique d'origine nucléaire le 20 décembre 1951 [12]. Les sites de l'énergie nucléaire actuelle produisent de l'électricité comme n'importe quel autre site de production électrique. Le flux de l'eau chauffée fait tourner les turbines et génère ainsi l'électricité.

La plupart des réacteurs nucléaires utilisent un combustible enrichi en ^{235}U. Pour les filières de réacteurs électrogènes, on utilise un combustible enrichi à 4 % environ en ^{235}U. D'autres types de réacteurs, comme certains utilisés pour la recherche, brûlent un combustible très enrichi, pouvant aller jusqu'à 95 % en ^{235}U [13].

Un réacteur de 1 GW électrique, par exemple, contient environ 90 tonnes d'uranium enrichi, et chaque année on renouvelle le tiers du cœur du réacteur : il consomme donc une trentaine de tonnes de combustible par an. Si on prend comme référence la valeur de 17 millions de tonnes, on obtient un potentiel de production des filières actuelles de 300 ans environ au rythme actuel. Mais si le nucléaire est amené à ce développé massivement, ces réserves seront épuisées avant la fin du siècle [13]. L'évolution dans la production d'énergie nucléaire dépendra des décisions de la société. Le grand inconvénient de l'énergie nucléaire c'est la génération des déchets radioactifs. Le nucléaire devra répondre aux problèmes de la gestion des déchets, de la sûreté des centrales, de la prolifération des matières radioactives et de l'optimisation des ressources en Uranium et en Thorium.

3. La transmutation des déchets nucléaires

3.1. **Origine des déchets nucléaires**

La production de déchets est le prix à payer pour la production d'énergie à partir du phénomène de fission nucléaire. Toute matière contenant des noyaux radioactifs (radionucléides) en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles, est considérée comme déchets nucléaires [2].

Un déchet nucléaire est caractérisé par l'activité de ses radioéléments exprimée en Becquerel ou nombre de désintégration par seconde, qui permet d'évaluer le nombre d'éléments radioactifs contenus dans le déchet. Chaque radioélément est caractérisé par sa période de décroissance qui est le temps nécessaire pour diminuer l'activité d'un facteur deux. La principale source de déchets nucléaires est bien le combustible nucléaire usé [14]. Le T**ableau 1** donne les différents composants de l'inventaire au déchargement d'un réacteur à eau sous pression en France par an [15].

	Radionucléides	Période (ans)	Déchargement (Kg/ans)	Total (Kg/ans)
uranium	^{235}U	$7{,}1.10^{8}$	220	20 500
	^{236}U	$2{,}3\ 10^{7}$	90	
	^{238}U	$4{,}5\ 10^{9}$	20200	
plutonium	^{238}Pu	88	3,3	210
	^{239}Pu	24120	123,1	
	^{240}Pu	6570	47,5	
	^{241}Pu	14,4	25,4	
	^{242}Pu	$3{,}7.10^{5}$	10,5	
Actinides mineurs	^{237}Np	$2{,}1.10^{6}$	8,8	16
	^{241}Am	432,2	4,4	
	^{243}Am	7380	2,2	
	^{244}Cm	18,1	0,5	
Produits de Fission (P.F.) vie moyenne	^{90}Sr	28	10,5	35
	^{137}Cs	30	24,3	
Produits de Fission (P.F.) vie longue	^{93}Zr	$1{,}5.10^{6}$	15,5	50
	^{99}Tc	$2{,}1.10^{5}$	17,7	
	^{107}Pd	$6{,}5.10^{6}$	4,4	
	^{129}I	$1{,}6.10^{7}$	3,9	
	^{151}Sm	93	7,7	

Tableau 1. Les composants de l'inventaire au déchargement d'un réacteur à eau sous pression en France par an

L'uranium est à la base de tous les combustibles nucléaires. Il est extrait, raffiné, enrichi avant d'être utilisé comme combustible nucléaire.

Les déchets issus du cycle du combustible ont plusieurs sources :

- L'uranium non extrait et ces descendants radioactifs se trouvant dans les résidus solides de la solubilisation du minerai et provenant du traitement des effluents liquides. Ce sont des déchets à faible activité, mais à vie longue.
- L'uranium dit « de rejet », appauvri en ^{235}U, dû à l'enrichissement (pour produire une tonne d'uranium enrichi à 3.5%, on rejette 5 tonnes d'uranium appauvris).

- Le combustible nucléaire usé qui constitue la grande quantité des déchets nucléaires. Il s'agit d'une part des Produits de Fission de l'uranium (PF) et d'autre part de corps plus lourds que l'uranium ou les transuraniens [16].

Le combustible usé contient trois types de radioéléments (**Tableau 1**) :

- Les transuraniens sont classés en deux catégories : les actinides majeurs (uranium et plutonium) et les actinides mineurs (neptunium, américium, curium),
- Les produits de fission qui comprennent en particulier le césium 137 (^{137}Cs), le strontium 90 (^{90}Sr) de périodes environ 30 ans, et les radionucléides à vie longue, comme le technétium 99 (^{99}Tc), de 2.1 10^5 ans de période ou l'iode 129 (^{129}I) de 1.57 10^7 ans de période,
- Les produits d'activation telle que le zirconium et le niobium qui ont des durées de vies faibles.

Le Tableau.2 donne les principaux éléments présents dans le combustible nucléaire usé [17].

Nature	Elément	Isotopes (A)	Période
Actinides mineurs	Np	237	2140000 ans
	Am	241	432 ans
		243	7380 ans
	Cm	243	28,5 ans
		244	18,1 ans
		245	8530 ans
Produits de fission	Se	79	6.5 10^4 ans
	Zr	93	1.5 10^6 ans
	Tc	99	2.1 10^5 ans
	Pd	107	6.5 10^6 ans
	Sn	126	10^5 ans
	I	129	1.57 10^7 ans
	Cs	135	2.3 10^6 ans

Tableau 2. **Principaux éléments a vie longues présents dans le combustible usé**

Le combustible nucléaire usé est la principale source de déchets nucléaires. Il est retraité de manière à :

- Récupérer les matières énergétiques volatilisables
- Séparer ces matières des autres éléments radioactifs qui constituent les déchets
- Conditionner les déchets sous une forme inerte et sûre en les incorporant dans du verre, c'est le procédé de vitrification.

Le combustible nucléaire usé est composé de :

- 94% d'uranium et 1% de plutonium, éléments de fort potentiel énergétique qui sont valorisables et, en partie, recyclés.
- 5% d'autres éléments radioactifs, qui représentent aujourd'hui les déchets de la production d'énergie. Une part importante de ces éléments (4.6 %) à une période de décroissance inférieure à 30 ans et il n'est pas considéré util d'essayer de diminuer la quantité de ces éléments. Reste donc 0.4 % de déchets à vie longue : 0.1 % « d'actinides mineurs » notamment le neptunium, l'américium et le curium et 0.3 % de produits de fission. Leurs périodes de décroissance radioactive vont de plusieurs milliers d'années (américium) à plusieurs millions d'années (neptunium). Ils sont responsables d'une radioactivité et d'un dégagement de chaleur résiduel sur des durées très longues. Leurs radioactivités entraînent l'émission de différents types de rayonnement (alpha, bêta et gamma) qui auraient des effets biologiques dangereux s'ils entraient en contact avec l'organisme humain [18].

Le problème se pose pour les déchets à vie longue, ayant des périodes supérieures à 30 ans et pouvant aller jusqu'à des centaines de millions d'années, pour lesquels il est indispensable de se préoccuper de leur devenir. Ce sont donc ces éléments radioactifs à vie longue dont il faut viser à diminuer la quantité dans les déchets. Pour y parvenir, il faut :

- Extraire ces éléments du combustible usé, c'est l'étape de la séparation.

- Les éliminer en les transformant en éléments non radioactifs ou à vie courte, c'est l'étape de la transmutation.

3.2. **Classification des déchets nucléaires**

La question de la gestion des déchets nucléaires actuels est indispensable dans la problématique plus générale du futur du nucléaire. Les études menées, souvent éloignées des considérations industrielles plus axées sur le court ou moyen terme, proposent des alternatives innovantes, permettant de répondre aux nombreuses contraintes des prochaines décennies : réduction de la quantité des déchets actuels et à venir, et mise à disposition d'une source d'énergie massive au niveau mondial.

Pour simplifier la gestion des déchets nucléaires on doit adopter une stratégie de classification appropriée selon leurs caractéristiques physiques, chimiques et radioactives. Les déchets radioactifs sont classés en différentes catégories, suivant leurs niveaux de radioactivité et la période radioactive des radionucléides qu'ils contiennent. Ils sont dits à vie longue lorsque leurs périodes dépassent trente ans, à vie courte dans le cas contraire.

Les déchets nucléaires peuvent être classés selon : [19]

- La nature des éléments qu'ils contiennent,
- Leurs activités,
- Le type de rayonnement émis (α, β, γ ou neutrons) et son énergie.

Ou bien selon leur radioactivité:

- Des déchets de très faible activité (TFA),
- Des déchets de moyenne et faible activité (MA, FA),
- Des déchets de haute activité (HA).

Les déchets de **Très Faibles Activités** (TFA) contiennent une quantité très faible de radionucléides, de l'ordre de 10 à 100 Bq/g qui empêche de les considérer comme des déchets conventionnels.

Les déchets de **Faible et Moyenne Activité à Vie Courte** (FAMA -VC) ; leur niveau de radioactivité se situe entre quelques centaines et un million de Bq/g. Leurs radioactivités deviennent comparables à la radioactivité naturelle après trois cent ans.

Les déchets de **Moyenne Activité à Vie Longue** (MA -VL) sont très divers, que se soit par leurs origines ou par leurs natures. Issus principalement des structures de combustible usé (coques et

embouts) ou de l'exploitation et de la maintenance des installations, ils comprennent notamment des déchets conditionnés lors des opérations de traitement du combustible usé. La plus grande partie de ces déchets dégagent peu de chaleur mais certains d'entre eux sont susceptibles de relâcher des gaz.

Les déchets de **Haute Activité** (HA) qui contiennent les produits de fission et les actinides mineurs séparés lors du traitement des combustibles usés et incorporés à chaud dans une matrice vitreuse. Ces déchets contiennent l'essentiel de la radioactivité (plus de 95%) et sont le siège d'un fort dégagement de chaleur qui demeure significatif à l'échelle de plusieurs siècles.

Les déchets nucléaires peuvent être répartis en catégories [20] :

- la Catégorie A
- la Catégorie B
- la Catégorie C

La Catégorie A inclut les déchets de faible activité et certains déchets d'activité moyenne. Elle contient des radioéléments émetteurs de rayonnements (β) et (γ) de périodes inférieures à 30 ans qui deviennent négligeables au bout de 300 ans (10 fois la période) et des émetteurs α à vie longue d'activité inférieure ou égale à 3 700 Bq/g après 300 ans. Ces déchets proviennent des installations nucléaires, des laboratoires de recherches, des utilisateurs médicaux et industriels.

La Catégorie B inclut des déchets de moyenne activité et des déchets de faible activité contenant des radioéléments (généralement des actinides mineurs : le neptunium Np, l'américium Am et le curium Cm) émetteurs de rayonnement α d'activité supérieure à 3 700 Bq/g et de périodes supérieures à 30 ans et pouvant aller jusqu'à plusieurs dizaines d'années mais sans dégagement important de chaleur. Ces déchets de Moyenne Activité à Vie Longue (MAVL) proviennent essentiellement des usines du combustible (fabrication et traitement) et des centres de recherches.

La Catégorie C inclut des déches de haute activité contenants des radioéléments émetteurs des rayonnements : α, β et γ de période supérieure à 30 ans. Ils sont constitués de solutions de produits de fission et d'activation qui sont issues du traitement du combustible nucléaire usé.

4. La gestion des déchets nucléaires

L'énergie nucléaire possède de vrai atout pour l'avenir : des ressources sur le long terme (plusieurs millier d'années en optimisant l'utilisation du combustible), et sans émission de gaz toxique. Dans ce contexte, pour un développement et une utilisation harmonieux de l'énergie

nucléaire, il faut répondre aux préoccupations concernant l'impact sanitaire et environnemental des déchets nucléaires. La grande majorité de ces déchets (90 %) sont de faibles activités et à vie courte d'où ils sont stockés dans des sites de surface. En moins de 300 ans, leur radioactivité sera revenue au niveau de la radioactivité naturelle. Les 10 % restants ont une durée de vie longue, allant jusqu'à plusieurs dizaines de milliers d'années [21]. Ces déchets peuvent être entreposés provisoirement en toute sureté. Les solutions techniques sûres et efficaces développées pour gérer les déchets radioactifs sont : réduire leurs quantités et leurs nocivités par leur séparation et transmutation, par leurs conditionnements, leurs entreposages ou stockage en formation géologique.

Le traitement des combustibles usés, a pour fonction d'extraire l'Uranium et le Plutonium et de conditionner les autres radioéléments à vies longues restant dans une matrice de verre. Ce tri sélectif, effectué selon plusieurs types de procédés chimiques, conduit à un volume et une toxicité des déchets ultimes significativement réduits par rapport à ceux du combustible avant traitement.

Le concept de séparation chimique peut être appliqué à plusieurs radioéléments possédants une forte radiotoxicité et une durée de vie longue comme certains actinides mineurs (Américium, Neptunium et curium) et produits de fission (Technétium-99, Iode-129 et Césium-135). Ces radioéléments une fois séparés, ils pourront être transmutés, c'est à dire transformés en éléments non radioactifs ou à durée de vie plus courte. La faisabilité scientifique de la transmutation de ces déchets afin de réduire au maximum leur quantité est démontrée.

Une autre voie de gestion des déchets radioactifs à vie longue est de les entreposer ou stocker dans des locaux spécifiques ou bien dans des plaques géologiques stables et profondes. La première étape de cette phase, c'est le conditionnement qui a pour but d'immobiliser les déchets et de confiner la radioactivité.

Le conditionnement à long terme des déchets nucléaires de haute activité est basé sur leurs vitrifications par incorporation à du verre en fusion. Le procédé de vitrification est le meilleur procédé de qualité pour l'ensemble des déchets de hautes activités extraites par processus de séparation. Pour sa structure amorphe le verre peut être l'hôte d'une grande diversité d'éléments.

La règle d'or de l'entreposage est que les colis (conteneurs de déchets) doivent rester parfaitement intègres pour pouvoir être repris à tout moment pour retraitement, reconditionnement et éventuellement transfert vers un stockage en profondeur pouvant être lui définitif [22].

5. Impact de la transmutation sur la stratégie de gestion des déchets nucléaires

L'objective de la gestion des déchets nucléaires et de les traiter de telle manière à ce que la santé des gens et l'environnement soit protégée, maintenant et dans le futur sans imposer aucune responsabilité de gestion pour les générations futures. Les déchets radioactifs doivent être managés de telle sorte qu'un niveau acceptable de sécurité de la santé publique et de la protection de l'environnement soit possible.

La séparation suivie par la transmutation peut réduire la radiotoxicité du combustible usé par un facteur 100 à 1000. Pour atteindre cet objectif, une stratégie de séparation, des actinides majeurs et mineurs et de certains produits de fission à vie longue, doit être mis en œuvre et intégrer dans le cycle de combustible. Une telle stratégie permettrait une diminution dans le temps nécessaire pour que la radioactivité, de la quantité des déchets de haute activité, qui doivent être stocker dans des formations géologiques profondes, atteint en 1 000 à 5 000 ans les niveaux de la radioactivité des matières premières, (l'uranium). Un facteur de séparation très élevé pour le plutonium et les actinides mineurs (MA = Np, Am, Cm) doit être atteint [23].

La mise en œuvre de plusieurs étapes de recyclage d'actinides mineurs ou des transuraniens (Pu + MA_S), nécessite la conception et l'exploitation d'une nouvelle technologie de recyclage et des dispositifs d'irradiation neutroniques au-delà de notre technologie nucléaire actuelle.

L'application de la séparation et de la transmutation pourra diminuer à long terme la source radiotoxique résiduelle des TRUs et de certains produits de fission pour devenir similaire à celle de l'uranium ou du thorium dans la nature. Le retraitement aqueux et la séparation chimique du plutonium et des AM_S ont atteint un très haut niveau de développement. Toutefois, la conception des installations du cycle du combustible capables de manipuler le flux de déchets nucléaires très chaud (1,6 tonnes de Np et de 1,7 tonnes – Am et Cm) est une tâche qui peut prendre plusieurs décennies. Le traitement Pyrochimique des TRUs est à l'heure actuelle au niveau du laboratoire et nécessite de nombreuses années pour atteindre le même niveau technique que celui atteint par le traitement aqueux. Toutefois, son importance à long terme dans la stratégie globale de la séparation suivie par la transmutation est cruciale.

La transmutation des transuraniens requiert un effort remarquable de la part de toute l'industrie nucléaire en terme de ressources économiques, de recherche et de développement de nouvelles technologies. Un tel programme peut être justifié seulement par des objectifs ambitieux en terme

de réduction de l'inventaire toxique des déchets nucléaires. Dans ce contexte on a fixé comme objectif minimal du programme de transmutation la réduction d'un facteur 100 de la masse et de la toxicité à moyen - long terme des transuraniens.

L'identification d'un tel objectif a des conséquences fondamentales sur les stratégies qui peuvent être appliquées à la transmutation. La transmutation du plutonium seul réduit la toxicité des déchets d'un facteur inférieur à 10 et, par conséquent, la transmutation des actinides mineurs s'avère indispensable. Le bilan neutronique des réacteurs à spectre thermique est beaucoup plus défavorable à la transmutation par rapport à celui des systèmes à spectre rapide. En effet, à cause des conséquences sur la réactivité initiale et sur les paramètres de sûreté du réacteur, la fraction de Np ou de Am qui peut être chargé dans un Réacteur à Eau sous Pression REP est très limitée. Le multi recyclage du plutonium est, au contraire, faisable dans les systèmes thermiques (assemblages MOX) [24].

Une dernière considération préliminaire touche le temps nécessaire à la mise en oeuvre d'une stratégie viable pour la transmutation des déchets nucléaires. Les nombreuses difficultés techniques qui restent encore à résoudre, et la nécessité de programmes expérimentaux préalables à la construction d'un système dédié à la transmutation, montrent que le départ concret d'un tel projet se situe dans le moyen terme (30-50 ans). En plus on peut estimer à 100 ans la période de temps minimale pour qu'un programme de transmutation puisse porter des bénéfices réels du point de vue de la réduction de la toxicité des déchets. Pour être efficace, une stratégie de transmutation requiert donc un temps minimal d'utilisation de l'énergie nucléaire d'au moins 150 ans, ce qui est très long à l'échelle humaine.

La séparation des actinides mineurs par voie aqueuse a été démontrée en laboratoire. Des améliorations sont attendues en vue de réaliser des projets industriels, ce qui réduit fortement le contenu des transuraniens vitrifiés dans les déchets de haut niveau. Leurs séparations suivies par leurs conditionnements dans une matrice très stable est dans un avenir proche. C'est la technologie la plus recommandable, qui permettrait le mieux l'option d'élimination et de réduction du risque à long terme. Dans un cadre de réduction du volume des déchets, la séparation des TRUs du combustible usé par des techniques pyrochimiques est une nouvelle technologie, qui doit être encore développée. Cette évolution est un effort à long terme, qui pourrait être rédigée dans une relance et d'expansion mondiale de l'énergie nucléaire.

Le recyclage du plutonium dans les réacteurs LWR-MOX est une stratégie intermédiaire pour réduire les stocks de plutonium séparés. Puisque la transmutation des actinides mineurs ne peut être encore envisagée à grande échelle, il serait prudent de poursuivre cette option au niveau de la recherche pour maintenir ouverte l'évolution des différents types de réacteurs dédiés à la transmutation. La recherche fondamentale sur la transmutation pourrait peut être ouvrir de nouveaux horizons pour le rôle de transmutation dans la gestion des déchets.

6. L'intérêt international de la transmutation

Les premières études sur la séparation et la transmutation des isotopes radioactifs à vie longue ont commencées dans les années 70 au Japon, aux Etats-Unis et dans la Communauté Européenne et se sont terminées au début des années 80 sans aboutir à un consensus international sur les bénéfices et la faisabilité d'une telle technologie. Ce n'est qu'après une décennie, suite aux difficultés croissantes pour la concession et l'exploitation des dépôts souterrains pour les déchets nucléaires, que deux ambitieux programmes de recherche ont été approuvés au Japon et en France. En 1988 le gouvernement japonais, avec le soutient de JAERI (Japan Atomic Energy Research Institute), JNC (Japan Nuclear Cycle Development Institute) et CRIEPI (Central Research Institute of Electric Power Industry), a lancé le programme de recherche OMEGA (Options Making Extra Gains from Actinides and fission products) pour évaluer différents concepts de réacteurs et pour développer de nouvelles technologies pour l'aval du cycle du combustible. En 1992, suite à l'approbation par le parlement français de la loi Bataille, le CEA (Commissariat à l'Energie Atomique), EDF (Electricité De France) et COGEMA (Compagnie GEnérale des MAtières nucléaires) ont commencé un ample programme de recherche et développement qui a pour but d'analyser en détail les options possibles de gestion des déchets nucléaires [25].

En particulier le CEA a lancé le programme SPIN (SéParation et INcinération) qui étudie la possibilité de transmuter les actinides mineurs dans des réacteurs classiques ou dans des systèmes innovants. A l'heure actuelle la plupart des nations industrialisées se sont engagées dans des projets communs sur la séparation et la transmutation et, en particulier, sur les systèmes sous critiques dédiés à l'incinération des transuraniens. Dans ce cadre il est utile de souligner l'importance des organisations de coopération internationale, telles que l'Agence Internationale

de l'Energie Atomique (AIEA) et l'Agence de l'Energie Nucléaire (AEN), qui coordonnent les activités de recherche des états membres et organisent des projets communs pour échanger et améliorer les connaissances dans le domaine de l'énergie nucléaire. Actuellement deux comités d'experts, le Nuclear Development Committee (NDC) et le Nuclear Science Committee (NSC), sont impliqués dans ces projets et un groupe de travail dédié exclusivement à la séparation et à la transmutation (WPPT - Working Party on Partitioning and Transmutation) a été créé en 2000 [25].

Les principaux objectifs de la transmutation sont à priori la réduction du danger associé au combustible usé à moyen et à long terme (> 300 ans) par une importante réduction de l'inventaire de Plutonium et des Actinides Mineurs.

La séparation suivie par la transmutation est une stratégie alternative de gestion des déchets, qui vise à réduire l'effet radiologique à long terme de l'énergie nucléaire. Elle s'appuie sur les recyclages quantitatifs des nucléides radiotoxiques à vies longues. La transmutation des déchets nucléaires est intéressante à différents points de vue : économique (potentiel énergétique du plutonium), environnemental (réduction du risque associés avec le combustible usé) et de sécurité du cycle du combustible (risque de prolifération allégé).

Actuellement, il est estimé que l'inventaire et la radiotoxicité peuvent être réduits par un facteur 100 à 200, et que les délais nécessaires à la radiotoxicité pour atteindre des niveaux de référence (l'uranium naturel) sera réduite de plus de 100 000 ans à 1 000 à 5 000 années [26]. Aussi, selon le cycle du combustible et les scénarios de séparation, différents types de réacteurs doivent être pris en compte pour les fins de la transmutation tels que: les REO dédiée, les FR et l'ADS. L'application de la séparation suivie par la transmutation, si elle est pleinement mise en œuvre, devrait diminuer considérablement l'inventaire des transuraniens qui nécessiterait d'être stocké dans des dépôts géologiques. De nouvelles conceptions de cible et de combustible seront étudiées en fonction de la stratégie du cycle du combustible choisie par chaque pays. Il existe une grande variété de types de combustibles solides avec une large gamme de composants chimiques tels que les oxydes, les nitrures, les carbures ou les alliages métalliques avec différentes densités, formes, avec des phases et matériaux homogènes ou hétérogènes. Pour atteindre ces résultats, il est actuellement estimé que le plutonium et le neptunium devraient être multi recyclé et que l'américium et le curium devrait être incinéré dans une unique profonde étape.

La Transmutation Nucléaire

L'augmentation constante de l'inventaire de combustible usé et son stockage à long terme est à l'origine des recherches menées par la communauté nucléaire dans de nombreux pays pour réduire l'inventaire radiotoxiques du au stockage géologique. Ces études sont menées sur la séparation (qui implique plusieurs étapes de retraitement) et la transmutation des actinides et des produits de fissions à vie longue.

1. Gestion du combustible nucléaire irradié

La majorité des réacteurs actuellement en fonction sont du type REP, refroidi avec de l'eau ordinaire sous pression et utilisent comme combustible de l'uranium enrichi en ^{235}U. Le combustible usé déchargé du réacteur est entreposé dans une piscine de refroidissement afin d'en réduire l'activité et la puissance résiduelle. A présent l'industrie nucléaire a implémenté deux options différentes pour la gestion du combustible irradié: (a) le stockage direct en couches géologiques profondes et (b) le retraitement, où on sépare l'uranium et le plutonium du reste des déchets [27].

La première stratégie prévoit le stockage direct des éléments de combustible dans un dépôt de stockage définitif après une adéquate période de décroissance dans un entrepôt provisoire. La deuxième stratégie, prévoit la séparation du combustible irradié après une période de décroissance plus courte, de l'ordre de 4 -7 ans, et la réutilisation du plutonium qui est mélangé à de l'uranium appauvri pour fabriquer du combustible MOX (Mixed OXide). Ce combustible peut être utilisé soit dans des réacteurs à spectre rapide soit dans certains REP [28].

Le risque radiologique associé au combustible nucléaire irradié est principalement dû à quelques éléments chimiques : le plutonium, le neptunium, l'américium, le curium et quelques produits de fission à vies longues, comme l'iode et le technétium. Ces sous produits radioactifs constituent un danger pour les différents types de vie lorsqu'ils sont libérés dans l'environnement. Leur stockage exige leur isolement de la biosphère dans des formations géologiques profondes et stables sur des longues périodes. Pour parvenir à une réduction assez importante, il faut éliminer

la quasi-totalité des actinides par fission, ce qui nécessite un multi recyclage. La stratégie de séparation – transmutation permet, en principe, de réduire à la fois la masse des radionucléides à stocker et leur chaleur résiduelle et par extension possible, le volume et le coût du dépôt.

De point de vue de la radiotoxicité des déchets, la transmutation des produits de fission présente peu d'intérêt. Apres 250 ans la majorité d'entre eux a disparu par décroissance radioactive, et leur contribution à la radiotoxicité du combustible usé devient faible. Cependant certain d'entre eux tels le technétium-99 et l'iode-129, sont très mobiles dans certains environnements géologiques et sont responsables d'une fraction importante des effets radiologiques souterrains.

Tous les scénarios de séparation – transmutation impliquent un retraitement du combustible et un recyclage des actinides et, éventuellement, des produits de fission. La séparation – transmutation est un moyen de réduire la charge pesant sur le dépôt géologique. Le plutonium et les actinides mineurs sont principalement responsables de la radiotoxicité à long terme, une fois ces nucléides extraits du combustible irradié (séparation), puis transformés par fission (transmutation), les déchets restants perdent une grande partie de leur radiotoxicité à long terme.

2. Radiotoxicité du combustible usé

2.1. Quantification de la toxicité des déchets radioactifs

L'estimation de la nocivité des déchets radioactifs est cruciale pour évaluer le risque radiologique associé à la production de l'énergie nucléaire et pour comparer l'efficacité des différentes stratégies de gestions des déchets. L'évaluation d'une telle grandeur peut être faite selon deux approches différentes. La première approche constitue simplement à évaluer le danger associé à l'assimilation directe d'isotopes radioactifs, par ingestion ou inhalation, sans tenir compte des barrières successives qui isolent les déchets de la biosphère. La deuxième approche mène à calculer plus précisément le risque radiologique à long terme des déchets nucléaires. Un tel calcul peut se décomposer en deux étapes successives:

a- Il faut estimer la probabilité que chaque isotope puisse s'échapper de son conteneur, migrer dans la biosphère et être assimilé par l'homme, généralement par ingestion ou par inhalation.

b- Il faut calculer les dommages que chaque isotope radioactif et ses descendants peuvent statistiquement causer aux êtres humains en cas d'assimilation.

Si l'évaluation du danger associé à l'assimilation directe d'isotopes radioactifs peut être calculée avec une bonne approximation par l'introduction du concept de radiotoxicité, le calcul de la migration des isotopes radioactifs dans la biosphère dépend considérablement de la qualité du confinement des déchets et des caractéristiques individuelles des sites de stockage.

Le choix d'utiliser la radiotoxicité comme mesure de la nocivité des déchets nucléaires a de nombreux avantages pour toute étude qui a pour but de comparer les performances de différentes stratégies de transmutation: la radiotoxicité est conceptuellement simple, bien connue et acceptée par la communauté scientifique et surtout permet d'obtenir des résultats toujours valables, indépendamment de la méthode de stockage des déchets.

2.2. Radiotoxicité

Le danger des isotopes radioactifs dérive essentiellement de l'absorption par les tissus des radiations émises lors d'une désintégration radioactive. Le danger lié à la toxicité chimique des isotopes est généralement négligeable par rapport à l'effet des radiations et, par conséquent, n'est pas pris en compte dans un calcul de radiotoxicité. La quantité d'énergie absorbée par le corps humain lors de l'exposition à des radiations, définie comme dose D est, en principe, facilement mesurable et dépend de la particule émise, de son énergie et de l'organe où a eu lieu l'absorption. L'unité de mesure de la dose est le Gray (1Gy = 1 J/kg) [29].

En cas d'exposition aiguë limitée à une courte période de temps, les effets sur l'homme sont de nature déterministe et apparaissent uniquement au-dessus d'une valeur de seuil. Au contraire, l'exposition à de faibles doses ou à une exposition très étendue dans le temps a des effets statistiques sur l'homme, en induisant des cancers ou des modifications génétiques qui peuvent apparaître très longtemps après l'irradiation. Les effets probabilistes de l'exposition à des doses inférieures à la valeur de seuil, définis comme dose effective à l'organisme (E), sont mesurés en Sievert (Sv) et dépendent de la dose absorbée D, du type de radiation R et de l'organe irradié T.

$$E_R(Sv) = \sum_T w_T . \sum_R w_R . D_{RT}(Gy)$$

w_R est un facteur de qualité qui tient compte de la nocivité du rayonnement R (1 pour les rayons β et γ, 20 pour les rayons α et de 5 à 20 pour les neutrons, selon leur énergie).

w_T représente la vulnérabilité des tissus irradiés.

D_{RT} est la dose moyenne de la radiation R absorbée par le tissu T.

Pour évaluer les conséquences radiologiques de l'ingestion ou de l'inhalation à $t = t_0$ de l'unité de masse de l'isotope radioactif N, on doit calculer la dose effective absorbée (Sv/g) intégrée sur la vie de la personne exposée.

$$E_N(\tau) = \int_{t_0}^{t_0+\tau} \dot{E}_N(t)dt$$

$\dot{E}_N(t)$ est calculée sur la base de modèles bio-cinétiques complexes qui tiennent compte de la mobilité de l'isotope radioactif et de ses descendants à l'intérieur du corps humain. La dose effective absorbée dépend du temps t après l'introduction de l'isotope radioactif. Pour le calcul de la radiotoxicité, on considère une valeur de 50 ans pour les adultes [30]. On peut donc définir la radiotoxicité d'un mélange M d'isotopes radioactifs comme :

$$RTOX_M(t) = \sum_{N=1}^{Isotope} A_N(t) \cdot E_N$$

A_N est la masse de l'isotope N dans le mélange M considéré.

La radiotoxicité est fonction du temps à cause des décroissances. La composition du mélange se modifie et, par conséquent, sa toxicité varie. Normalement elle décroît avec le temps car les isotopes radioactifs se transforment en isotopes stables. Il est tout de même possible que la radiotoxicité d'un mélange augmente si les noyaux fils sont plus toxiques que leurs progéniteurs. La radiotoxicité est donc l'expression de la dose collective qui serait reçue par de nombreux individus s'ils absorbaient l'activité du mélange d'isotopes considérés sans que des effets déterministes puissent se révéler. La radiotoxicité peut être exprimée en Sievert par Becquerel (Sv/Bq)[31]

2.3. L'avantage des opérations de séparation et transmutation sur la gestion des déchets

L'énergie nucléaire produit régulièrement une quantité de combustible usé qui contient des produits de fission à vie courte et une grande quantité d'actinides mineurs et de produits de fission radiotoxiques à vie longue. Ces nucléides constituent à long terme un inventaire radiotoxique qui reste un danger bien au-delà de la perception humaine. Le retraitement permet le recyclage de la

plupart des actinides majeurs (uranium et plutonium), tandis que les actinides mineurs (MA) (neptunium: Np, américium: Am et curium: Cm) et les produits de fission (PF) seront vitrifier avant d'être enterrés dans des dépôts profonds. La séparation des actinides mineurs et quelques-uns des produits de fission est une méthode efficace pour réduire la radiotoxicité de ces radioéléments à long terme. Le recyclage des actinides mineurs doit être intégré dans le cycle du combustible afin de les mélanger avec les combustibles standards pour être transmutés vers des éléments moins radiotoxiques et à vie courte. Progressivement, les AM et une partie des produits de fission à vie longue (LLFP) devraient être incinérés à l'extérieur. Cette option permettrait de réduire la contamination à long terme des risques des déchets de haut niveau et de réduire l'intervalle de temps nécessaire pour maintenir les déchets contenant des actinides confinés dans un dépôt géologique profond. La séparation suivie par la transmutation est, en principe, capable de réduire la période de radiotoxicité, alors qu'un certain nombre de pratiques restent difficiles à surmonter. La radiotoxicité de l'inventaire à long terme dépend de sa source qui est déterminée par le type du combustible utilisé (REP-UO_2, REP-MOX, RR-MOX), l'incinération et la durée de stockage (peut atteindre un million d'années). Ce combustible usé contient les actinides et les produits de fission à vies longues comme principaux constituants radiotoxiques. Les coefficients de dose efficace (FDRN) pour les actinides sont indiqués dans le Tableau 2.1 [32], ceux pour les produits de fission sont donnés dans le Tableau 2.2 [33]. La radiotoxicité à court- terme de certains produits de fission est comparable à celle des actinides dans un intervalle de temps allant jusqu'à 100 ans. Après 300 ans seulement les produits de fission à vie longue dominent le potentiel radioactif (^{99}Tc, ^{93}Zr et ^{135}Cs) et constituent un inventaire radiotoxique qui est environ 1 000 fois inférieur à celui des actinides [34].

Elément	**Nuclide**	**Sv/Bq**
Uranium	^{235}U	4.6×10^{-8}
	^{238}U	4.4×10^{-7}
Neptunium	^{237}Np	1.1×10^{-7}
Plutonium	^{238}Pu	2.3×10^{-7}
	^{239}Pu, ^{240}Pu	2.5×10^{-7}
Américium	^{241}Am, ^{243}Am	2.0×10^{-7}
Curium	^{243}Cm	1.5×10^{-7}
	^{244}Cm	1.2×10^{-7}
	^{245}Cm, ^{246}Cm	2.1×10^{-7}

Tableau 2.1. Coefficients de dose efficace des actinides FDRN

Elément	**Nuclide**	**Sv/Bq**
Strontium	^{90}Sr	3.4×10^{-10}
Zirconium	^{93}Zr	8.6×10^{-10}
Technetium	^{99}Tc	6.4×10^{-10}
Iodine	^{129}I	1.1×10^{-7}
Cesium	^{135}Cs	2.0×10^{-9}
	^{137}Cs	1.3×10^{-8}

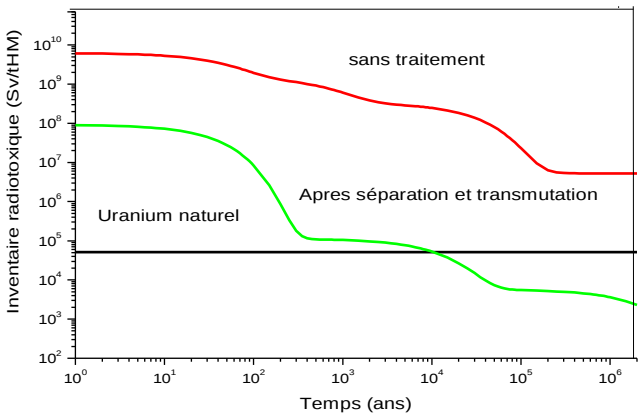
Tableau II.2. Coefficients de dose efficace des produits de fission FDRN

L'opération du conditionnement peut présenter des obstacles artificiels qui sont potentiellement capables de confiner les radionucléides dans leur paquet pendant des milliers d'années. Après cet intervalle de temps rien ne peut être prédit vue que la solubilité des actinides (sauf le Np) est généralement faible alors que les produits de fission à vie longue en particulier le ^{135}Cs, le ^{129}I et, dans certains cas le ^{99}Tc, présentent une haute mobilité dans la géosphère [35]

La gestion des déchets nucléaires dans le cas du cycle du combustible avancée qui adopte le scénario de séparation et transmutation est très différent de l'option précédente. L'impact du retraitement avancé sur l'inventaire radiotoxique des déchets de haut niveau solidifié (HLW) est tout à fait remarquable, depuis que les actinides (U, Pu, Np, Am et Cm) sont idéalement retirés des HLW avec un haut facteur de séparation. Le principal impact de cette stratégie adoptée est caractérisé par une importante réduction de la radiotoxicité de l'inventaire des déchets vitrifiés avec une séparation des actinides à vie longue pour être mélangés ensuite avec les combustibles standard du réacteur.

La radioactivité, bien que similaires au cours des premières années, diminue d'un facteur 10 à 50 après 300 à 1000 ans, respectivement. La chaleur résiduelle des HLW devient 3, 250 et 350 fois plus faible après 100, 1000 et 10 000 ans respectivement.

La séparation des actinides mineurs (Np, Am et Cm) et certains produits de fission est une méthode qui permettrait de réduire la radiotoxicité à long terme des déchets résiduels des composants avec un facteur proportionnel au rendement de la séparation Figure.2.1 [36].



Taux de separation (%)	
U	99.9
Np	99.9
Pu	99.99
Am	99.99
Tc	99.9
I	99
Cs	99

Figure.2.1. La radiotoxicité après séparation et transmutation

La récupération des actinides mineurs pour être recycler dans le cycle du combustible et les rendre à l'inventaire du réacteur comme étant des matières fissiles et fertiles pour leurs transmutations vers des isotopes à vie courte.

La séparation suivie par la transmutation est la plus importante option capable de réduire la période radiotoxique de l'inventaire des déchets nucléaires, bien que les techniques et les difficultés pratiques doivent encore être surmontées. La toxicité des Produits de Fission (PF), comparable à celle des noyaux lourds pour les premières deux décades, diminue brusquement pour devenir négligeable (moins de 0.01 % du total) 1000 ans après l'entreposage. Dans les premières 500 ans, la radiotoxicité des PF est dominée par le ^{90}Sr et le ^{137}Cs, qui ont un temps de demi-vie de l'ordre de 30 ans; ensuite la contribution des PF à vie longue, comme le ^{99}Tc, ^{129}I, ^{93}Zr, ^{135}Cs, ^{127}Pd et ^{126}Sn devient dominante. Après environ 500 ans la radiotoxicité des PF est de deux ou trois ordres de grandeurs inférieures à celle de l'uranium naturel de référence. La contribution du ^{238}Pu et de l'^{241}Am, qui s'accumule à cause de la décroissance β du ^{241}Pu, est dominante dans les premières trois décades ensuite, pour la période qui va de 2 000 à 100 000 ans, la toxicité est due principalement au ^{239}Pu et au ^{240}Pu. A très long terme, la radiotoxicité est dominée par les isotopes à vie longue, créés lors de la décroissance des noyaux lourds (comme le ^{229}Th, le ^{226}Rn et leurs descendants) ou déjà présents dans le combustible en fin d'irradiation (comme le ^{237}Np) [36].

3. La transmutation nucléaire

3.1. Concepts de base

La transmutation peut être définie comme la transformation des noyaux toxiques à vie longue en noyaux stables ou en noyaux moins toxiques ou à vie plus courte. Le but essentiel de la transmutation est donc de réduire le niveau de toxicité que les actinides et les produits de fission auront à partir de 1 000 ans après leur entreposage.

La transmutation a été mise en évidence par Rut Herford en 1919. Il a bombardé l'azote 14 (^{14}N) avec des particules α hautement énergétiques pour le transmuter vers l'oxygène 17 (^{17}O). Les premiers éléments radioactifs artificiels ont été produits en 1933 par I. Curie et F. Juliot [37]. La transmutation des déchets nucléaires est l'une des voies technologiques les plus prometteuses.

Au cours de l'irradiation en réacteur, les noyaux lourds sont soumis à un flux de neutrons qui Provoque deux types de réactions:

- La réaction de fission qui transforme le noyau lourd en produits de fission, moins radiotoxiques et généralement à vie plus courte.
- La réaction de capture (n, γ) ou la réaction (n, 2n) qui conduisent à la formation d'un autre actinide sans garantir, à priori, une réduction de la radiotoxicité ou du temps de demi-vie.

Ces réactions ne modifient pas directement la toxicité du mélange d'une façon significative, mais transforment des isotopes fertiles en isotopes fissiles, en augmentant considérablement la probabilité de fission.

Sur le plan de la réduction de la nocivité à long terme des déchets, la destruction des actinides par fission, dite incinération, est la seule façon de diminuer l'inventaire des noyaux lourds et est donc préférable à la transformation en d'autres actinides par réactions de capture ou (n, 2n). Dans le cas des produits de fission à vie longue, la seule voie de transmutation possible est la capture neutronique qui transforme l'isotope initial en un noyau stable ou avec une demi-vie beaucoup plus courte.

3.2. **Séparation chimique**

Les éléments formés dans le combustible nucléaire usé présentent une grande diversité de propriétés chimiques, d'états physiques (oxyde, métal, gaz) et de propriétés radioactives (stables ou radioactifs, émetteurs alpha, bêta, gamma, de périodes très courtes à très longue). Cette

diversité multiple implique une complexité dans la gestion du combustible usé formé à prés de 99% de matière présentant un grand potentiel énergétique (uranium résiduel U et plutonium Pu). La stratégie de traitement du combustible usé consiste à séparer l'uranium et le plutonium des autres radionucléides (actinides mineurs et produits de fission). La présence de radioéléments de longues périodes dans les déchets nucléaires pose des questions de sûreté sur leur gestion à long terme. Un concept de gestion plus avancé avec la possibilité d'un traitement différent des radioéléments à vie longue a été mis au point. Les radionucléides à vie longue présents dans le déchet sont d'abord triés suivant un concept de séparation poussée puis une gestion spécifique, qui consiste à transformer un noyau de longue période en un noyau de période plus courte est entreprise pour chaque élément [38].

Il y a plusieurs voies possibles pour la séparation poussée (procédés physiques, procédés chimiques). Il convient de mener les recherches avec une double préoccupation. La première englobe l'ensemble des critères qui doivent s'appliquer pour procéder à la séparation moderne tenant compte des exigences en matière de performance, de sûreté, de fiabilité, de coût et de minimisation des déchets secondaires. La seconde s'occupe de l'étude d'options basées sur la réalité industrielle aujourd'hui.

Pour le combustible nucléaire usé une fois, écarté l'uranium et le plutonium par une stratégie de gestion particulière, l'intérêt est porté sur les actinides mineurs et certains produits de fission ou d'activation. Ces derniers sont très nombreux et variés par leur niveau d'abondance et par leurs propriétés chimiques. Il est difficile de concevoir un procédé de séparation « en bloc » de l'ensemble des nucléides. Une approche « élément par élément » s'avère indispensable ce qui implique une identification préalable des principaux éléments à considérer en fonction des objectifs fixés. Le principal contribuant à la radiotoxicité dans le combustible nucléaire usé est le plutonium. Une stratégie de sa gestion est d'abord envisagée avant d'élaborer toute stratégie de gestion des radionucléides à vie longue. Après le plutonium, les actinides mineurs représentent la composante radiotoxique la plus importante de l'inventaire radiotoxique du combustible nucléaire usé. Une des priorités des recherches menées sur la gestion à long terme des déchets nucléaires est orientée vers la séparation de ses trois constituants essentiels : neptunium, américium et curium.

La séparation des actinides mineurs et de certains produits de fission est une méthode qui permettrait de réduire la radiotoxicité à long terme des déchets résiduels d'un facteur

proportionnel au rendement de la séparation. Cette technique permettrait d'atténuer le risque de contamination à long terme que présentent les déchets de haute activité et de raccourcir le temps de séjour nécessaire des déchets contenant des actinides et produits de fission à vie longue dans les dépôts de déchets en formation géologique. La séparation et transmutation sont donc a priori capables d'écourter la période de radiotoxicité, bien qu'il reste un certain nombre de difficultés pratiques à surmonter avant d'y parvenir [38].

3.3. Le processus de transmutation

Après séparation les éléments radioactifs à vie longue présents dans les combustibles usés, la transmutation vise à les transformer, sous un flux de particules vers des éléments de durée de vie plus courte ou même stable. Sous l'effet de rayonnement gamma incident, des neutrons sont éjectés des noyaux. L'application de ce phénomène sur les éléments riches en neutrons tels que certains produits de fission : Strontium 90, le césium 137 aboutit généralement à des corps stables. Il est possible après le bombardement d'une cible par un faisceau d'électrons fournis par un accélérateur, d'obtenir par le bremsstrahlung des photons pouvant donner naissance à des réactions (γ, xn). Le rendement de ce type de réactions est très faible et le niveau du courant électronique nécessaire reste très élevé et hors de portée de nos jours, c'est pour cela que cette voie n'est pas retenue [39].

La spallation est une réaction nucléaire entre un noyau et une particule, souvent un proton, accéléré jusqu'à une énergie de l'ordre du GeV. Durant cette réaction plusieurs particules, essentiellement des neutrons, sont éjectées. Certaines de ces particules peuvent avoir des énergies suffisamment grandes pour provoquer d'autres réactions avec un noyau voisin. La spallation permet de produire des flux intenses de neutrons qui peuvent servir à la réalisation des systèmes hybrides pour transmuter les déchets nucléaires. Pour la conception d'une cible de spallation, on a besoin de logiciel de simulation basé sur des modèles de physique nucléaire permettant d'évaluer les contraintes sur les matériaux de la cible et les structures environnantes. Il est nécessaire de connaître les différents noyaux produits par la spallation dans la cible et dans l'interface qui la sépare du vide de l'accélérateur [40].

L'absence de charge électrique et sa disponibilité en grande quantité dans les réacteurs nucléaires font du neutron la particule qui satisfait le mieux les critères recherchés par les physiciens pour la transmutation. L'interaction neutron - noyau aboutit à deux types de réactions : la réaction de capture du neutron par le noyau cible et la réaction de fission du noyau.

Pour les produits de fission la première permet, en général, de donner après transformations successives un corps stable (exemple du technétium 99). Par contre, avec ce type de réaction, les actinides mineurs génèrent d'autres actinides et donc on ne fait que déplacer le problème. Pour le traitement des actinides il faut favoriser la réaction de fission. Elle conduit généralement à des résidus à vie courte, moins radiotoxiques à long terme et produit des neutrons supplémentaires utilisables pour maintenir la réaction en chaîne tout en produisant de l'énergie. La section efficace de fission varie énormément d'un noyau à un autre, plus encore, d'un isotope à un autre pour le même élément.

a. La transmutation des actinides mineurs

Pour les actinides mineurs, la réaction de capture neutronique est à minimiser car elle conduit à générer d'autres actinides presque toujours à vie longue et donc ne ferait que déplacer le problème. La voie qu'il faut favoriser pour la destruction des actinides mineurs est celle de leurs fissions. La fission des actinides mineurs conduit généralement à des résidus moins radiotoxiques à long terme, en plus la fission produit des neutrons supplémentaires utilisables pour détruire d'autres déchets ou participer au maintien de la réaction en chaîne tout en produisant de l'énergie. Le processus d'incinération d'un noyau lourd, qui conduit à une fission après une série de réactions de capture neutroniques ou de décroissances, peut être décrit par un paramètre, le "neutron balance" D_J qui quantifie le nombre de neutrons statistiquement produits (ou consommés si négatif) lors de l'incinération de l'isotope J et de ses descendants éventuels. Les valeurs de D_J dépendent des sections efficaces microscopiques et des constantes de décroissance de l'isotope J et de ses descendants, et des caractéristiques, spectre et niveau de flux, du système dans lequel il est incinéré. Une valeur positive de D_J indique que la transmutation de cet isotope est théoriquement possible dans un système idéal, c'est à dire sans fuites ni absorptions parasites de neutrons. A partir des valeurs D_J des isotopes, on peut calculer le potentiel de transmutation pour n'importe quel mélange d'isotopes [41]:

$$D_{Comb} = \sum_J \alpha_J \cdot D_J$$

où α_J est la fraction de l'isotope J dans le mélange combustible "Comb".

On rappelle que, compte tenu des fuites de neutrons et des captures parasites dans le coeur (estimées à environ 0.3 neutrons par fission pour des réacteurs “classiques”, le potentiel de transmutation du combustible doit être supérieur à 0.3 pour avoir un réacteur critique. Dans le Tableau 2.3 on montre les valeurs du potentiel de transmutation pour des systèmes à spectre thermique ou rapide pour le plutonium et les actinides mineurs [42]. Les valeurs de D montrent que du point de vue du bilan neutronique les systèmes à spectre rapide ont un avantage évident par rapport à ceux à spectre thermique; dans ces derniers, le recyclage des transuraniens ou, à plus forte raison, des actinides mineurs, n’est pas possible sans un apport externe de neutrons, soit par une source externe, soit par un enrichissement additionnel en ^{235}U.

Flux neutronique (n/cm^2s) Isotope	Rapide RNR 10^{15}	REP (UOX) 10^{14}	CANDU 10^{16}
^{232}Th	0.36	0.17	-0.60
^{235}U	0.86	0.61	0.87
^{238}U	0.62	-0.09	0.02
^{238}Pu	1.33	-0.14	0.02
^{239}Pu	1.46	0.70	0.94
^{240}Pu	0.91	-0.39	0.01
^{241}Pu	1.21	0.59	1.00
^{242}Pu	0.49	-1.25	-0.61
^{237}Np	0.55	-1.09	-0.00
^{241}Am	0.54	-1.06	0.03
^{242m}Am	1.87	1.54	1.81
^{243}Am	0.67	-0.31	0.33
^{243}Cm	2.19	1.89	2.26
^{244}Cm	1.47	0.67	1.31
^{245}Cm	2.68	2.28	2.21
Plutonium	1.24	0.32	0.58
Actinide Mineurs	0.64	-0.90	0.41
Transuraniens (Pu+Am)	1.18	0.20	0.56

Tableau 2.3. Valeurs de D pour des noyaux isolés dans différents spectres et niveaux de flux.

b. La transmutation des produits de fission

La transmutation des produits de fission a donc un sens seulement pour les isotopes qui contribuent au risque radiologique, c'est à dire pour les isotopes qui ont une demi vie supérieure à 100 ans. Pour que la transmutation ait une utilité pratique, il est nécessaire que la disparition des PF en réacteur soit beaucoup plus rapide par rapport à la décroissance radioactive. Pour évaluer la rentabilité de ce processus, on introduit le concept de demi-vie de transmutation, la période nécessaire à transmuter la moitié du produit de fission J chargé dans un réacteur [43].

$$T_J^{Trans}(\text{sec}) = \frac{\ln 2}{\sigma_{n,\gamma}^J \cdot \Phi}$$

T_J^{Trans} Dépend de la section efficace de capture de l'isotope J et des caractéristiques, spectre neutronique et niveau de flux, du réacteur. Dans le Tableau 2.4, on montre les valeurs de $T_{½}$ et de T_J^{Trans} pour les produits de fission à vie longue en spectre thermique et en spectre rapide. Quoique pour tous ces isotopes à vie longue la demi-vie de transmutation soit inférieure à celle de la décroissance spontanée, la transmutation en réacteur semble être potentiellement prometteuse seulement pour le ^{93}Zr, ^{99}Tc, ^{129}I et ^{135}Cs [41].

	$T_{½}$ *(ans)*	T_J^{Trans} (ans)	
		Spectre rapide	*Spectre thermique*
^{79}Se	$6.5.10^4$	730	$2.2.10^3$
^{93}Zr	$1.5.10^6$	730	790
^{94}Nb	$2.0.10^4$	550	100
^{99}Tc	$2.1.10^5$	110	51
^{107}Pd	$6.5.10^6$	44	730
^{126}Sn	$1.0.10^5$	$4.4.10^3$	$4.4.10^3$
^{129}I	$1.6.10^7$	160	51
^{135}Cs	$2.3.10^6$	310	170

Tableau 2.4. Demi - vie de transmutation pour des produits de fission à vies longue

A côté des difficultés neutroniques qu'on vient de résumer, la transmutation des produits de fission à vie longue entraîne de remarquables difficultés technologiques qui en réduisent encore plus l'attractivité. Chaque produit de fission doit être séparé individuellement avec un degré

d'efficacité très élevé et, ensuite, les isotopes à vie longue doivent être isolés des isotopes stables ou à vie plus courte. La séparation des déchets du Zr et du Cs est à présent exclue à cause de la faible fraction isotopique du ^{93}Zr et du ^{135}Cs et de la haute activité du ^{137}Cs [44]. La transmutation du ^{135}Cs sans une séparation isotopique préalable est compromise à cause de la production du ^{135}Cs par captures neutroniques du ^{133}Cs et du ^{134}Cs. La transmutation de l'^{129}I présente aussi de grandes difficultés d'ordre chimique et métallurgique car la cible est chimiquement instable et que le gaz ^{130}Xe, produit par capture neutronique, doit être évacuer de la cible pendant l'irradiation. Jusqu'à présent, la faisabilité pratique du processus de séparation et de fabrication des cibles a été prouvée seulement pour le ^{99}Tc. Pour les autres isotopes un procédé de séparation et d'insolubilisation est probablement la seule solution réaliste pour réduire leur impact radiologique à long terme.

La capture neutronique est le principal procédé de transmutation pour les produits de fission. La transmutation pour les produits de fission à vie longue comme le technétium 99 et l'iode 129 est possible dans un réacteur thermique. Leurs produits de transmutation par capture neutronique le Ruthénium-100 et le Xénon-130 sont stables, suivant les réactions :

$$^{99}\text{T c} + \text{n} \longrightarrow {}^{100}\text{Tc} \longrightarrow {}^{100}\text{Ru}_{\text{stable}} + \text{n} \longrightarrow {}^{101}\text{Ru}_{\text{stable}} + \text{n} \longrightarrow {}^{102}\text{Ru}_{\text{stable}}$$

$$^{129}\text{I} + \text{n} \longrightarrow {}^{130}\text{I} \longrightarrow {}^{130}\text{Xe}_{\text{stable}} + \text{n} \longrightarrow {}^{131}\text{Xe}_{\text{stable}} + \text{n} \longrightarrow {}^{132}\text{Xe}_{\text{stable}}$$

Pour un réacteur à eau sous pression (REP), les sections efficaces du Technétium-99 et l'Iode-129 sont respectivement 13.8 barns et 3.2 barns ce qui nous donne un taux de transmutation de 11 % par ans pour le Technétium 99 et 3 % par ans pour l'Iode-129. La transmutation du produit de fission à vie longue, césium-135, est théoriquement possible mais difficile en pratique car il faudrait procéder à une séparation isotopique, ce qui est difficile à effectuer [45]

4. Les systèmes de transmutation

Il existe deux aspects possibles devant la transmutation des déchets radioactifs produits suite au traitement du combustible nucléaire usé. Le premier est relié à la sûreté du burn–up (incinération)

des actinides mineurs qui dominent le potentiel radiotoxique au cours des milliers d'années ou plus. Le second concerne la transmutation des produits de fission qui possèdent un effet radiologique significatif qui peut durer des siècles.

L'opération de transmutation des noyaux peut être réalisée en utilisant les neutrons disponibles en grandes quantités dans les cœurs des réacteurs nucléaires. Plusieurs options ont été envisagées pour sa mise en œuvre : faire intervenir les réacteurs du parc actuel, à spectre de neutrons thermiques, des réacteurs à spectre de neutrons rapides ou des réacteurs hybrides, basés sur le couplage d'un cœur rapide sous critique et d'un accélérateur de particules assurant un rapport extérieure neutrons. L'incorporation des actinides mineurs dans les cœurs des réacteurs peut avoir un impact important sur leurs caractéristiques physiques et en particulier les paramètres de sûreté. Il existe plusieurs types de réacteurs destinés à la transmutation tels que les réacteurs à eau sous pression (REP), les réacteurs à neutrons rapides (RNR), les réacteurs à caloporteur gaz (RCG) et les systèmes hybrides avec un cœur sous- critique piloté par un accélérateur (ADS) utilisant la réaction de spallation comme source de neutrons. La stratégie repose sur des scénarios à simple ou à double strate. Si les radionucléides à transmuter sont recyclés en une seule prise dans des réacteurs REP ou dans d'autres installations spécifiques telles que les RNR ou ADS, on parle de simple strate. Si le recyclage s'opère dans deux filières supplémentaires (REP et RNR) de la première strate, on parle de double strate. Pour la matière difficile à recycler (américium, curium et produits de fission à vie longue) la stratégie de transmutation envisagée est soit en double strate soit dans une composante additionnelle dans laquelle sont recyclés à la fois les actinides et les produits de fission à vie longue, c'est la transmutation en double composante [46].

Pour réaliser leur transmutation, les éléments à transmuter, actinides mineurs et produits de fission à vie longue, sont introduits selon deux modes. Le mode homogène où l'on mélange les produits à transmuter avec le combustible standard et le mode hétérogène où les produits à transmuter sont séparés du combustible et placés en totalité dans des capsules ou cibles, spécifiques.

Deux classes de réacteurs sont adoptées pour la transmutation, les réacteurs nucléaires critiques et les systèmes hybrides. Dans les réacteurs nucléaires critiques, le combustible contient des déchets nucléaires à transmuter et éventuellement un autre matériel fissible, avec un facteur multiplicatif de neutrons supérieur à l'unité. Cette classe inclut des réacteurs thermiques, comme les réacteurs à eau sous pression et les réacteurs à neutrons rapides. Plusieurs études ont été faites

sur la possibilité de transmuter le plutonium, le technétium 99, l'iode 129 et les actinides mineurs dans les réacteurs à eau sous pression (REP). Le combustible habituellement utilisé pour ce type de réacteur est l'uranium enrichi. Ils peuvent aussi fonctionner avec le combustible MOX (Mélange d'OXyde d'uranium naturel ou appauvri et du plutonium) [47]. D'autres types des REP plus élaborés sont à l'étude pour obtenir une meilleure adaptation à la transmutation. L'approche adaptée à la transmutation des actinides mineurs et de certains produits de fission consiste à mixer ces éléments avec le plutonium dans le combustible MOX. Seulement l'addition d'actinides mineurs, du Plutonium-238, du Plutonium 240 et du Plutonium-242 complique les problèmes de contrôles. En particulier, les isotopes Américium -241 et Plutonium-240 ont une grande section efficace de capture vis à vis des neutrons thermiques, ce qui affecte beaucoup la réactivité. Les travaux récents montrent que la transmutation des transuraniens serait faisable avec un cœur de centrale chargé au tiers (deux tiers de combustible d'uranium enrichi et un tiers de combustible MOX contenant les transuraniens concernés). D'autres REP ont été conçus de telle façon que l'on puisse ajouter suffisamment de barres de contrôle, pour pouvoir entièrement charger ces réacteurs avec du combustible MOX contenant de l'uranium naturel plutôt que l'uranium enrichi. Ces réacteurs peuvent être utilisés en vue de la transmutation des actinides et des produits de fission. Le changement de composition du combustible pose des Problèmes liés à la concentration du combustible en ses différents constituants, à la sécurité du réacteur et aux performances du combustible [47].

Les réacteurs critiques à neutrons rapides sont des réacteurs dont la majorité des réactions de fissions est provoquée par des neutrons rapides. Le réacteur ALMR (Advanced Liquid - Metal Reactor) est un type bien spécial de cette famille des réacteurs. Il a été développé pour produire plus de matériaux fissiles qu'il n'en consommait. Par la suite, il a été modifié pour fonctionner à un taux de conversion inférieur à 1 (c'est-à-dire pour consommer plus de plutonium qu'il n'en produit) et donc pour effectivement brûler les transuraniens [48]. Le spectre d'énergie des neutrons d'un réacteur à neutrons rapides (RNR) peut être adapté pour augmenter la capacité du réacteur à transmuter des produits de fission tout en gardant les bonnes caractéristiques pour transmuter les transuraniens.

Les systèmes hybrides sous critiques, fondés sur un concept récent, sont encore au stade expérimental. Le réacteur fonctionne avec un milieu dont le facteur multiplicatif de neutrons est inférieur à l'unité, c'est-à-dire sous critique. Les neutrons sont obtenus par une source externe.

Des protons de haute intensité (entre 10 mA et 100 mA) et d'énergie proche du GeV sont envoyés sur des cibles telles que le lithium, le tungstène, le thorium, le plomb fondu, … ou sur le combustible lui-même. Ceci génère un grand nombre de neutrons par spallation qui serviront à transmuter les déchets contenus dans le combustible ou entourant la cible. On pourrait transmuter des actinides mineurs, en les utilisant directement comme cible au faisceau de protons. Les neutrons rapides produits par un tel procédé seraient aussi capables, à priori, de transmuter le plutonium -240 et l'américium-241 [49].

5. Conséquences de la transmutation sur les paramètres de sûreté

Le multi-recyclage des TRU ou des AM seuls dans les réacteurs avancés et avec un cycle fermé du combustible génère un combustible très différent par rapport à celui typique des RNR traditionnels. La présence des transuraniens dans le combustible a des conséquences négatives sur les paramètres de sûreté du réacteur. D'une part la fraction de neutrons retardés des TRU et surtout des AM est considérablement plus faible que celle des isotopes de l'uranium (^{235}U et ^{238}U en particulier). La présence de fort taux de TRU dans le combustible diminue D'autre part la présence de TRU dans le combustible affecte aussi les coefficients de réactivité du cœur, tels que le coefficient Doppler et le coefficient de vidange. Le coefficient Doppler devient en particulier très faible, en limitant ainsi les contre-réactions sur la réactivité liées à l'augmentation de température du combustible. La détérioration des coefficients de sûreté du cœur limite, en particulier, la teneur maximale d'AM qui peut être chargée dans un réacteur critique à spectre rapide. La teneur maximale d'AM dans le combustible est limitée à quelques pour cent (2.5 %). Les réacteurs critiques ne peuvent pas être chargés uniquement avec des AM et sont donc inadaptés à l'incinération des Actinides Mineurs seuls en cycle fermé.

L'utilisation des Réacteurs à Neutrons Rapides critiques apparaît par contre envisageable pour l'incinération des Transuraniens (TRU) ou du plutonium seul, à condition d'optimiser le design du cœur et de mélanger les TRU avec un support fertile constitué par de l'uranium appauvri ou du thorium. Ceci permet de limiter la fraction de TRU dans le combustible à l'équilibre et d'avoir ainsi des paramètres de sûreté acceptables [50].

Les systèmes hybrides ou ADS (Accelerator Driven System) apparaissent particulièrement adaptés à accueillir du combustible très dégradé, tel que celui issu du multi-recyclage des AM ou des TRU. Dans le cadre d'une stratégie de transmutation des TRU, les ADS offrent ainsi

l'avantage de pouvoir incinérer des TRU purs, sans devoir les diluer dans du support fertile. Ceci permet ainsi de minimiser la fraction de systèmes avancés dans le cœur, mais les réacteurs hybrides sont technologiquement plus complexes et ont des désavantages opérationnels et économiques par rapport aux réacteurs critiques standards [51].

Code de Calcul ChainSolver

L'un des paramètres les plus importants pour la transmutation nucléaire est le taux de transmutation qui exprime la quantité transmutée du radioélément pendant la période d'irradiation. La détermination de ce paramètre est soit expérimentale soit par évaluation grâce à un code de calcul adapté. Dans ce chapitre nous présentons les bases théoriques et les différents constituants du Code de calcul ChainSolver que nous avons utilisé pour évaluer le taux de transmutation.

1. Bases théoriques du code

Le programme de simulation de la transmutation ChainSolver est basé sur la résolution de l'équation différentielle ordinaire, ou équation de Bateman, qui décrit l'évolution des états d'un isotope selon une décroissance spontanée ou par transmutation nucléaire induite par des neutrons selon l'équation suivante [52] :

$$\frac{dN_i}{dt} = -\,\mathrm{N_i}\,\mu_i + \sum \mathrm{K_{ji}}\; N_j$$

Avec :

N_i : densité nucléaire de l'état du i^{ème} isotope

K_{ji} : constante de transmutation du j^{ème} isotope au i^{ème} isotope

μ_i est la constante du i^{ème} état, elle est donnée comme suit :

$$\mu_i = \lambda_\mathrm{i} + \sum \sigma_\mathrm{g}\; \varphi_\mathrm{g}\; \mathrm{k_g}$$

Avec :

λ_i : constante de décroissance du i^{ème} état

σ_g : section efficace d'incinération

φ_g : le flux neutronique

k_g : le facteur d'auto protection

g : le groupe des énergies des neutrons (g = 1..3)

1.1. Equation Différentielle Ordinaire (DOE)

Les espèces radioactives décroissent selon la loi exponentielle suivante :

$$N = N_0 \, e^{-\lambda t}$$

ou :

$$A = A_0 \, e^{-\lambda t}$$

N et A sont le nombre d'atomes et l'activité mesurée respectivement à un temps t et N_0 et A_0 sont les quantités correspondantes à t = 0. λ est la constante de décroissance radioactive de l'élément radioactif [53].

La demi vie $T_{1/2}$ est le temps nécessaire pour N et A de décroitre à la moitié de leurs valeurs initiales on a :

$$T_{1/2} = \frac{\mathrm{Ln}\, 2}{\lambda} = \frac{0.693}{\lambda}$$

La vie moyenne τ est le temps total d'existence de tous les atomes divisés par le nombre initial :

$$\tau = \frac{1}{N_0}\int t dN = \frac{1}{N_0}\int \lambda t N dt$$

$$\tau = \lambda \int t e^{-\lambda t} dt = -\left[\frac{\lambda t + 1}{\lambda} e^{-\lambda t}\right]_0^{\infty} = \frac{1}{\lambda}$$

$$\tau = \frac{1}{\lambda}$$

Les substances radioactives filles sont formées directement par décroissance d'une substance radioactive mère. De façon générale la décroissance d'une espèce radioactive notée **substance 1**, produit une autre espèce radioactive notée **substance 2**. Le comportement des atomes radioactifs N_1 est régi par l'équation :

$$-\frac{dN_1}{dt} = \lambda_1 N_1$$

Avec

$$N_1 = N_{01}e^{-\lambda t}$$

N_{01} : nombre d'atomes à l'instant t = 0.

La seconde espèce est formée a partir du rapport de décroissance de la première espèce, $\lambda_1 N_1$ qui elle-même décroit selon son propre rapport $\lambda_2 N_2$ d'où :

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_{01} e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 N_2$$

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} e^{-\lambda_1 t}$$

$$e^{\lambda_2 t}\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 e^{\lambda_2 t} = \lambda_1 N_{01} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t}$$

$$\frac{d}{dt}\left(N_2 e^{\lambda_2 t}\right) = \lambda_1 N_{01} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t}$$

$$N_2 e^{\lambda_2 t} = \int \lambda_1 N_{01} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} dt$$

$$N_2 e^{\lambda_2 t} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} + C$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{(-\lambda_1)t} + Ce^{-\lambda_2 t}$$

Pour t = 0, $N_2 = N_{02}$

$$C = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} + N_{02}$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01}\left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}\right) + N_{02}e^{-\lambda_2 t}$$

A l'équilibre :

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1}$$

D'où

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2$$

Quand une cible est irradiée par des particules afin d'induire une réaction nucléaire l'état étudié est relié aux types de désintégration des produits radioactifs selon la manière dont ils se sont formés [54].

L'équation différentielle qui gouverne le nombre d'atomes N produits avec un taux de production R durant le temps d'irradiation est :

$$\frac{dN}{dt} = R - \lambda N$$

La solution est :

$$R = \frac{N\lambda}{1 - e^{-\lambda t}}$$

Pour $t >> \frac{1}{\lambda}$; $\lambda N \longrightarrow R$.

Le facteur $\left(1 - e^{-\lambda t}\right)$ est appelé facteur de saturation [54].

L'évolution des concentrations d'un nucléide selon une chaine de décroissance linéaire est gouvernée par un ensemble d'équations différentielles de premier ordre appelée : **Equation de Batteman**. La résolution analytique des équations de Batteman pour le cas d'une décroissance radioactive suivant une chaine linéaire a été donnée par Batteman (1910). Elle est aussi utilisée pour les chaines non linéaires qui peuvent être divisées à un ensemble de chaines linéaire. Cette méthode est dite méthode linéaire [55].

1.2. Résolution de l'équation différentielle ordinaire (Equation de Bateman)

L'équation de Bateman dans le cas d'une décroissance radioactive pour le $n^{ième}$ nucléide pour une chaine linéaire qui décrit la concentration du nucléide est donnée par [55]:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda N_1$$

$$\frac{dN_i}{dt} = \lambda_{i-1} N_{i-1} - \lambda_i N_i \qquad \text{(i=2,n)}$$

Avec λ_i est la constante de décroissance radioactive de l'i^{ème} nucléide.

Pour t = 0 $N_1(0) \neq 0$ et $N_i(0) = 0$ quand i >1.

La concentration de l'i^{ème} nucléide après un temps t est donnée par l'équation de Batteman comme suit :

$$N_n(t) = \frac{N_1(0)}{\lambda_n} \sum_{i=0}^{n} \lambda_i \alpha_i \exp(-\lambda_i t)$$

Avec

$$\alpha_i = \prod_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^{n} \frac{\lambda_j}{(\lambda_j - \lambda_i)}$$

Dans la plupart des cas de décroissance radioactive l'expression au dessus est suffisante. Il est clair que les coefficients α ne peuvent être calculés que dans le cas ou toutes les constantes de décroissance sont différentes. Dans un système de la transmutation nucléaire les nucléides vont être transmutés par interaction avec un flux de particules généralement des neutrons. Les concentrations de décroissance qui gouvernent l'équation de Bateman seront remplacées par les constantes de transmutation. La constante de transmutation λ_{ij} est donnée par :

$$\lambda_{ij} = b_{ij}^d \lambda_j^d + \sum_{x=n,p,\pi} \int \Phi^x(E) \sigma_{ij}^x(E) dt$$

Avec :

b_{ij}^d : Rapport de branchement de la décroissance du j^{ième} nuclide vers le i ^{ième} nuclide

λ_j^d : Constante de décroissance du j^{ième} nuclide

σ_{ij}^x : Section efficace de production du i^{ème} nuclide par l'interaction des particules x avec le j^{ième} nuclide

Φ^x : Flux neutronique (x= neutrons, protons, pions)

Les constantes de transmutation apparaissent comme des coefficients de l'équation de Batteman décrivant la chaine générale non linéaire de transmutation du nucléide w comme suit:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j=1,w} \lambda_{ij} N_j \qquad \text{(i=1,w)}$$

N_i : concentration de l'i^{ème} isotope. Les constantes λ_{ii} sont définies par:

$$\lambda_{i,i} = -\sum_{j \neq i}^{j=w} \lambda_{ij}$$

$\lambda_{i,i}$: Le rapport de désintégration du nucléide.

Le trajectoire de transmutation est définie comme étant l'ensemble des séquences de transition d'un nuclide à l'autre commençant par le premier nuclide et terminant par le i ^{ième}. le trajectoir de transmutation est équivalent à une chaine de décroissance mais due à l'occurrence du branchement des chaines non linéaire.

Pour les produits de fission l'équation de Batteman pour la trajectoire de transmutation aura cette forme [55]. :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1$$

$$\frac{dN_i}{dt} = b\lambda_{i-1} N_{i-1} - \lambda_i N_i \qquad \text{(i = 2, n)}$$

Avec

$$\lambda_i = \sum_{j \neq i}^{j=w} \lambda_{ij} \qquad \text{et} \qquad b_i = \frac{\lambda_{i,i+1}}{\lambda_i}$$

La trajectoire de transmutation pour l'évolution de la concentration est décrite par :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 + S_1$$

S_1 : le rapport de production du nucléide

Avec les conditions suivantes :

$$N_0(0) = S_1 t \quad \text{et} \quad N_i(0) = 0 \text{ avec } i > 1$$

Et

$$\lambda_0 = \frac{1}{t} \ln \frac{b_0}{b_0 - 1}$$

La loi qui décrit l'évolution des concentrations des radionucléides est bien connue. Il s'agit des équations différentielles couplées de premier ordre en temps et les équations généralisées de Batteman. Les processus physiques mettant en jeu un certain nombre d'isotopes sont décrits dans ce qui est appelé « chaine des filiations » [56].

2. Présentation du code de calcul ChainSolver

Le code ChainSolver est un code pour les calculs de transmutations. Le programme ChainSolver est destiné à la réalisation de calculs concrets pour la dernière étape avant une irradiation ou avant la livraison des isotopes au client. La dépression d'un flux de neutrons thermiques, la résonance d'auto- protection des isotopes au cours d'une irradiation et le calendrier de l'irradiation (le calendrier du fonctionnement du réacteur et de réorganisation des cibles irradiées dans les diverses positions) sont prises en considération. Le fait que chaque étape d'irradiation a des flux neutroniques spécifiques, des sections efficaces de réactions et des périodes d'irradiation et le fait que les structures initiales des produits doivent être comptées séparément rendent les calculs extrêmement fastidieux. Ces calculs permettent de spécifier les produits et les impuretés inévitables résultants ainsi que le mode choisi pour l'irradiation. Dans les calculs de transmutations on suppose que l'influence du changement dans la structure des matériaux irradiés sur les caractéristiques des modes du fonctionnement des réacteurs (le réacteur est considéré comme une source de neutrons) est insignifiant [57].

L'interface du programme ChainSolver est construite sur la base de la composante visuelle Delphi qui affiche plusieurs pages dans une seule forme. Chaque page est destinée à effectuer un ensemble de tâches nécessaires pour le calcul des quantités accumulées et/ou dérivées.

2.1. La page des Chaînes «Chain»

Cette page permet aux utilisateurs de créer, de modifier la structure et d'édité les chaînes de transmutations Figure 3.1 [58]. Les Modifications effectuées sur cette page sont comprises comme étant le changement des caractéristiques des états et des maillons des chaînes (entre les états des deux isotopes pour les différents nucléides). Il existe deux moyens pour la création d'une chaîne: la chaîne antérieure conservées dans un fichier chargé dans le programme ChainSolver par le biais du 'Load'. Le dossier d'une chaîne peut soit être créé et sauvegardé (bouton «Save»). La chaîne peut être également créé par l'ajout de nucléides (l'ajout à une chaîne vide est possible). Pour ajouter plus d'états d'un nucléide, l'utilisateur doit taper le nom du nucléide (le format est U-235 ou U-235g, U-235m ou U-235m1, HF-177m2) dans la fenêtre d'édition des états " state" et appuyer sur le bouton "Add". S'il est nécessaire d'ajouter d'autres nucléides il est possible d'utiliser les avantages de la fenêtre d'édition par le bouton d'expansion ("• • • "). Les liens d'addition des nucléides entre les isotopes qui appartiennent déjà à la chaîne et ceux ajoutés sont automatiquement construits.

Pour la construction automatique de liens, il est nécessaire de vérifier le lien "Build" et de choisir le type de liens: "Decay" -désintégrations radioactives, "Capture" -captures des neutrons thermiques et résonants, "Fission" -les neutrons induisant la fission, "Threshold" -les neutrons de seuil de réactions.

Tout lien entre les isotopes est construit sur la base des informations du programme complexe ORIP_XXI et le fichier de données d'information. Les données doivent être charger dans le programme ChainSolver par "charge PB". Si le fichier de données n'est pas chargé et l'état est ajouté à la chaîne sous édition, le programme donne un message d'alerte et demande les données de chargement [58].

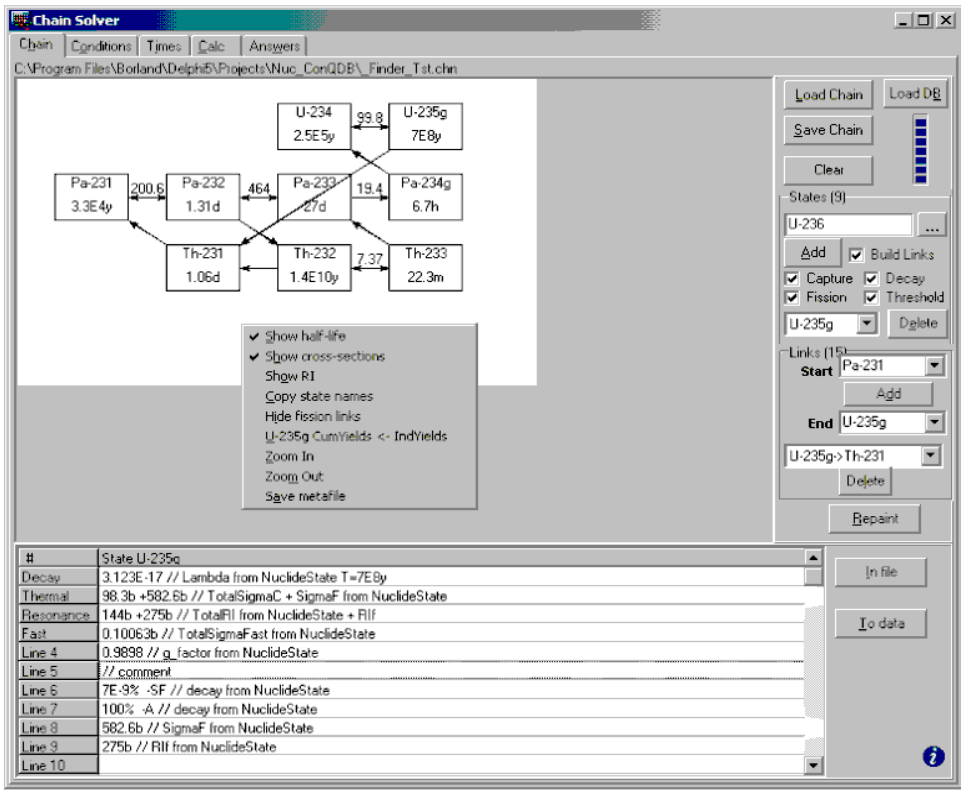


Figure 3.1. La page des chaines « Chain »

L'addition automatique des états du nucléide à l'intérieur des canaux de la chaîne de désintégration/réception des isotopes produits par fission spontanée des éléments lourds n'est pas prise en compte. Leurs contributions à des vitesses d'accumulation sont faibles par comparaison avec les vitesses des réactions induites par neutrons (le rendement pour la fission spontanée est très faible en comparaison avec d'autres chaînes en général en raison de la demi-vie énorme de l'isotope père).

S'il est nécessaire de tenir compte de l'accumulation des isotopes comme un produit de fission spontanée, il est possible de l'ajouter au lien correspondant pour modifier une disposition qui sera construite pour les réactions de fission induites par neutrons. Le "Branchement" des désintégrations radioactives et de capture neutronique est pris en compte: ainsi, par exemple, pour la décroissance bêta du ^{95}Zr l'isotope fils ^{95}Nb est formé dans deux états l'un stable et l'autre métastable avec des probabilités spécifiques.

Le panneau "Links" ou liens permet de travailler avec les liens de la chaîne (un lien est une liaison entre les isotopes ou les états déduits des réactions nucléaires de transmutation). Par le biais de la suppression des listes "Start" et "End", il est possible de choisir l'état initial et l'état

final prévu pour la chaîne, puis par le biais du bouton "Add" du panneau "Links" d' ajouter les liens entre les états. La liste d'abandon des liens permet de supprimer par le bouton "delete", un lien sélectionné ou de le modifier.

Le nom du lien est donné dans le format Start /élément père -> élément fils/ End .

Le choix de liens (sur le panneau de configuration des "Links") ou de l'état (sur le panneau de configuration des "States") est affiché dans la partie inférieure de l'écran. Le choix d'un lien ou d'un état est possible par le biais des listes déroulantes, ou tout simplement avec la souris, en cliquant dans l'image d'une chaîne (il est nécessaire de dire que les images de deux différents liens peuvent coïncider, par exemple, un lien de capture neutronique et celui de la réaction de seuil (n, 2n)).

Le tableau de la partie inférieure de la page des «Etats» affiche des informations détaillées sur le lien ou le nucléide et peut être édité. Pour ce faire, il suffit d'ajouter des informations sur la vitesse des réactions pour les neutrons thermiques et résonant Figure 3.2 [58].

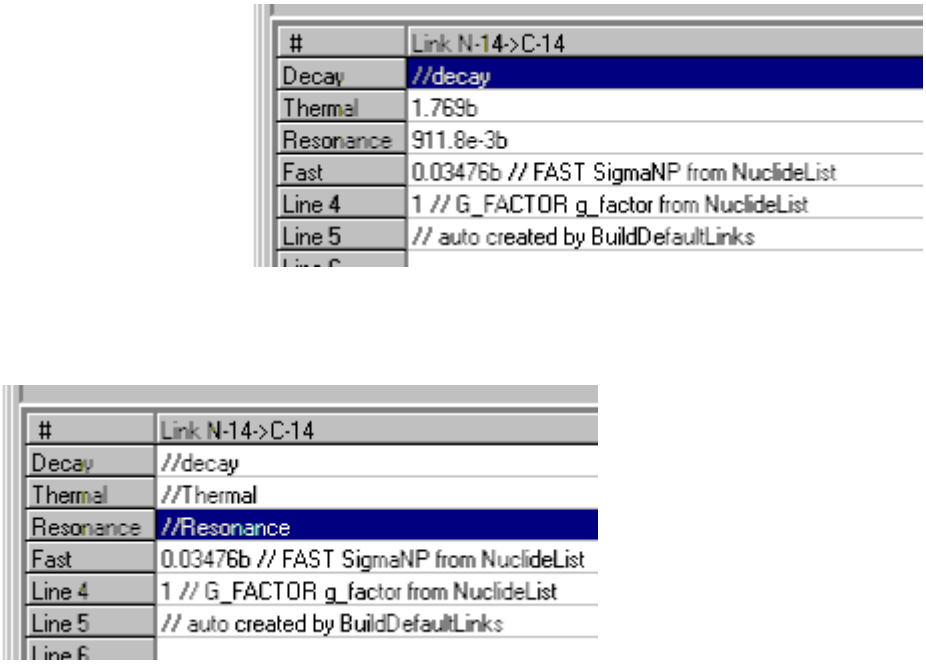


Figure 3.2. Le tableau de la page « Chain » avant et après l'édition des données

Le symbole double barre oblique ("//") marque les commentaires. En l'absence d'unité dans l'expression numérique des sections efficaces ou les intégrales de résonance le programme avertit

l'utilisateur. Le bouton "To data" est destiné à la modification ou l'annulation des données dans les chaînes avant d'être sauvegardée.

Le bouton "In file" permet de voir les informations disponibles dans le fichier des données ORIP_XXI concernant l'état ou le lien.

Il existe un menu pour l'image d'une chaîne (sur le bouton droit de la souris) qui donne accès aux opérations suivantes: "Show half- life" - pour afficher/cacher les demi vies des états, "Show cross section"- Pour afficher/cacher les sections efficaces de la capture neutronique, "Show RI" - pour afficher/cacher les valeurs des résonances.

Le menu "Copy state names" copie tous les noms des états des nucléides de la chaîne sur le presse-papiers, "Hide fission link" - pour cacher/montrer les liens causés par la fission, "Zoom In / Zoom Out" -pour changer l'échelle de l'image.

A l'addition d'un nucléide à l'intérieur de la chaîne, tous ses rendements (tel les produits de fission des atomes lourds) sont initiés par les valeurs du rendement cumulatif du fichier des données.

2.2. Page des "conditions"

La page des conditions est destinée à faire entrer les conditions initiales de l'irradiation: masse initiale du nucléide, les flux thermiques…etc. Figure 3.3 [58].

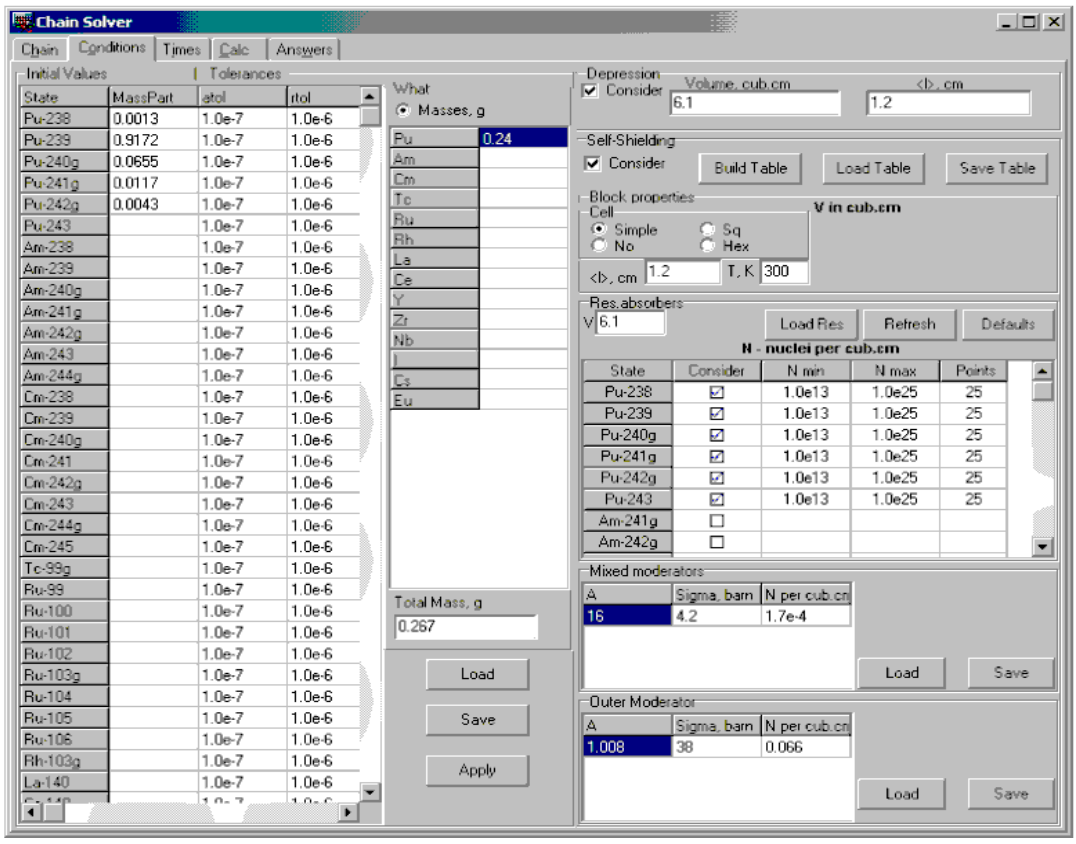


Figure 3.3. La page des conditions

Dans le tableau de la partie gauche de la page, est définie la portion du poids du nucléide initial de la chaîne, le poids des éléments est défini dans le tableau "Masses, g" (les masses sont données en gramme). La valeur de la masse totale de l'échantillon est placé dans la case "masse totale, g". Ces informations sont utilisées pour l'élaboration des résultats finaux (si la case « Total Mass, g » n'est pas remplie, le poids initial est déterminé comme la somme des masses de tous les éléments). Les paramètres des colonnes "atol" et "rtol" définissent l'écart maximal pour chaque variable pour le système d'équations différentielles ordinaires décrivant la transmutation nucléaire dans le temps. L'erreur locale d'intégration admissible pour la $i^{ème}$ variable y (i) sur chaque pas de temps est définie par: rtol * abs (y (i)) + atol (i)). Si les champs "atol" et "rtol" sont vides, des valeurs sont utilisées par défaut (environ 10^{-7}). Pour la dépression du flux thermique, il est nécessaire de vérifier si la case "Depression" est cochée et d'entrer les valeurs du volume de l'échantillon irradié et la moyenne accordée. Les calculs qui tiennent compte de la résonance

d'auto -protection sont extrêmement fastidieux et demandent un grand nombre de paramètres supplémentaires.

Les facteurs de calcul de la résonance d'auto- protection sont assez longs, il y a l'opportunité de sauvegarder ces facteurs dans un fichier pour être utilisés ultérieurement par l'utilisateur du programme. On utilise le bouton "Build Table" pour construire le tableau des facteurs de calcul de la résonance. Il est construit sur la base de l'approche décrite dans l'approximation des résonances intermédiaires avec l'élargissement Doppler [59].

2.3. La page des temps d'irradiations « Time » :

La page des temps permet d'introduire les paramètres d'entrée et les conditions d'irradiation Figure 3.4 [58]. Dans la ligne multiple d'édition on introduit des paires de valeurs: la période d'irradiation (jours) et de la puissance du réacteur (MW). La ligne vide est le terminateur de la liste des intervalles temporels d'irradiation.

Dans une seule ligne d'édition les valeurs suivantes sont introduites : dans la case "Tn.g" est donnée la température du gaz neutronique en degré Kelvin. Dans les cases "Th", "Res", "Fast" sont donnés les flux thermique, de résonance et rapides pour la puissance nominale du réacteur. Dans la case "Nominal" est donnée la valeur de la puissance nominale du réacteur.

Le programme donne la possibilité d'effectuer des irradiations multiples dans différents réacteurs avec différentes puissances et positions d'irradiations.

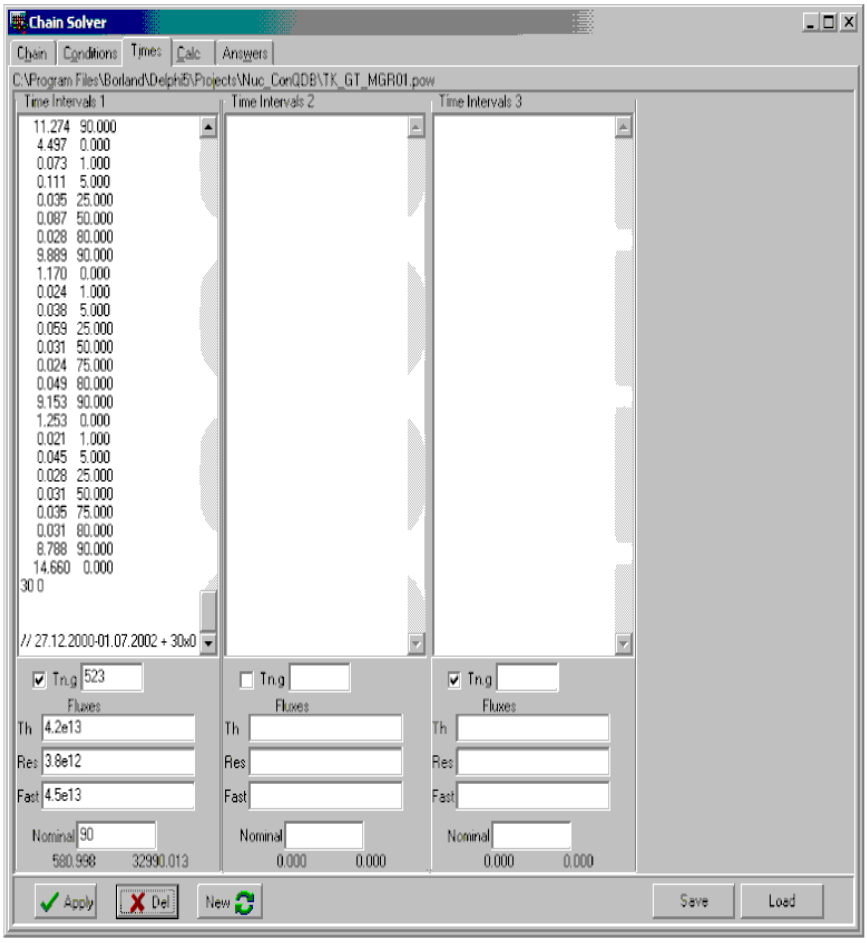


Figure 3.4. Page des temps d'irradiations

Il est nécessaire de terminer les périodes d'irradiation par une paire de valeurs qui définit la durée du stockage après irradiation avec une valeur de puissance nulle.

Parmi les avantages qu'offre ce programme, la possibilité d'effectuer plusieurs étapes d'irradiations. Pour cela deux boutons sont utilisés : le bouton "Add" permet d'ajouter une nouvelle étape d'irradiation, et le bouton "Del" permet de supprimer la dernière étape introduite **.**

Lors de l'addition d'une nouvelle phase d'irradiation, il y a un panneau avec le même ensemble d'informations saisies dans la phase d'avant, pour l'ajouter ou l'éliminer. Les boutons "Save" et "Load" sont destinés à enregistrer et à rappeler le fichier portant le calendrier des étapes multiples d'irradiations.

2.4. La page de calcul "Calc"

La Fig.6 donne l'interface de différentes méthodes utilisées pour résoudre le système des équations différentielles ordinaires (ODE) qui décrivent la chaîne de transmutation du nucléide Figure3.5 [58]. Généralement les coefficients de l'ODE dépendent du temps, en raison de la dépendance du flux neutronique de la période d'irradiation et de la dynamique des concentrations des nucléides, résultant des changements du flux thermique et de la dépression des facteurs de la résonance d'auto- protection.

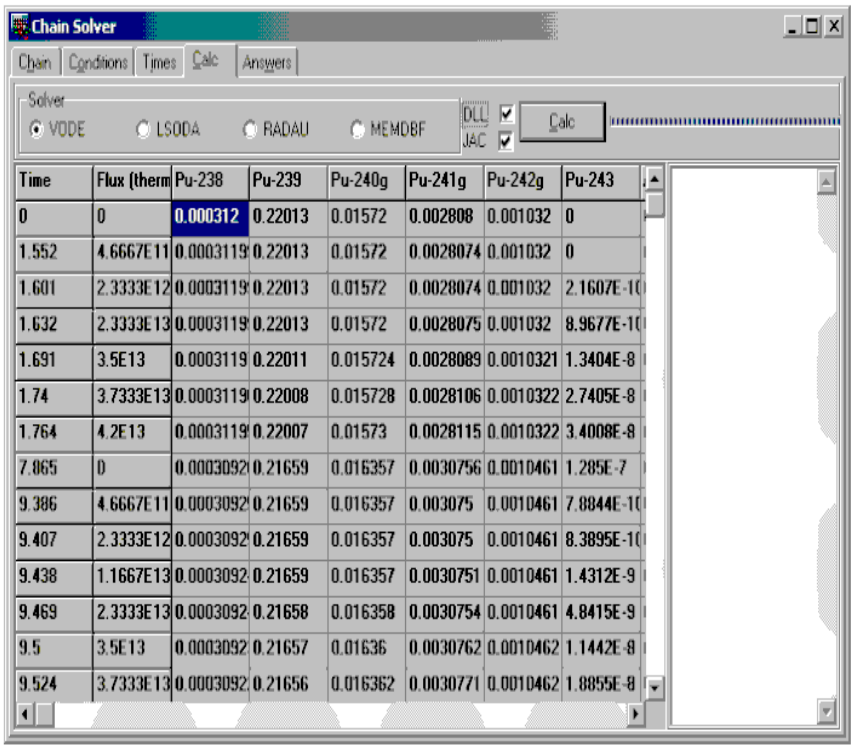


Figure 3.5. Page du calcul

L'utilisateur peut tirer un avantage de divers sous-programmes pour la résolution de l'ODE. Ces sous programmes sont : Vode, LSODA, RADAU et MEBDF. La présence de plusieurs sous-programmes est due fait qu'il n'y a pas qu'un seul programme capable de résoudre le système des équations ODE. Tous les solveurs peuvent être chargés de façon dynamique à partir des bibliothèques (DLL). Les sous programme LSODA et Vode peuvent être exécutés directement depuis le programme principal sans l'utilisation de la bibliothèque DLL (dans ce cas la case "DLL" ne devrait pas être cochée).

Ces sous- programmes utilisent des méthodes différentes pour calculer le Jacobien du système d'équations ODE. Le calcul commence en utilisant le bouton "Calc". Le remplissage complet des colonnes de progrès correspond à l'achèvement du calcul de la dernière étape d'irradiation. Dans le tableau, sont affichés les poids calculés des isotopes présents dans la chaîne pour chaque intervalle de temps. Pour l'utilisateur les deux premières colonnes à droite du tableau ont la signification suivante: intervalle temporel, flux thermique.

Le sous programme LSODE est le programme de base de la famille des codes de résolution de l'équation ODE: ODEPACK [60]. Ce sous programme résout le problème de la valeur initiale pour un système rigide ou non rigide de premier ordre des systèmes ODE . Le sous programme **LSOD**A, en comparaison avec Le sous programme **LSODE**, a une nouvelle fonctionnalité: il se termine automatiquement par "les formules de différenciation de recul" (BDF) utilisant la méthode d'Adams (pour un systèmes non rigide) sur l'algorithme de Petzold [61]. L'objectif fondamental de l'allumage automatique est de libérer l'utilisateur de la décision sur l'état que la rigidité peut assez souvent créer (en général la rigidité de l'ODE dépend de la longueur de l'intervalle temporaire adopté). Ainsi, par exemple, on peut utiliser l'algorithme non rigide LSODA dans domaines transitaire temporaire lorsqu'il y a des changements rapides dans les conditions d'irradiation.

Le **Vode** est un sous programme pour résoudre le système ODE pour un système rigide et non rigide, avec des valeurs initiales [62]. Le **Vode** utilise les coefficients variables de la méthode d'Adams-Moulton et les méthodes BDF de Nordsieck. Les auteurs du **Vode** ont formulé plusieurs algorithmiques d'améliorations. Le premier, c'est un changement dans la taille de l'étape et/ou on décide que la fin d'une étape n'est appliquée avec succès qu'après le commencement effectif de la prochaine étape, de sorte que des interpolations de performance entre ces étapes puissent utiliser le plus de données correctes. Le deuxième algorithme fixe la taille de l'étape initiale, ce qui permet d'estimer brièvement le second vecteur dérivateur nécessaire.

2.5. La page des réponses "Answers" :

Sur cette page sont présentées les diverses valeurs résultant du calcul figure 3.6 [58].

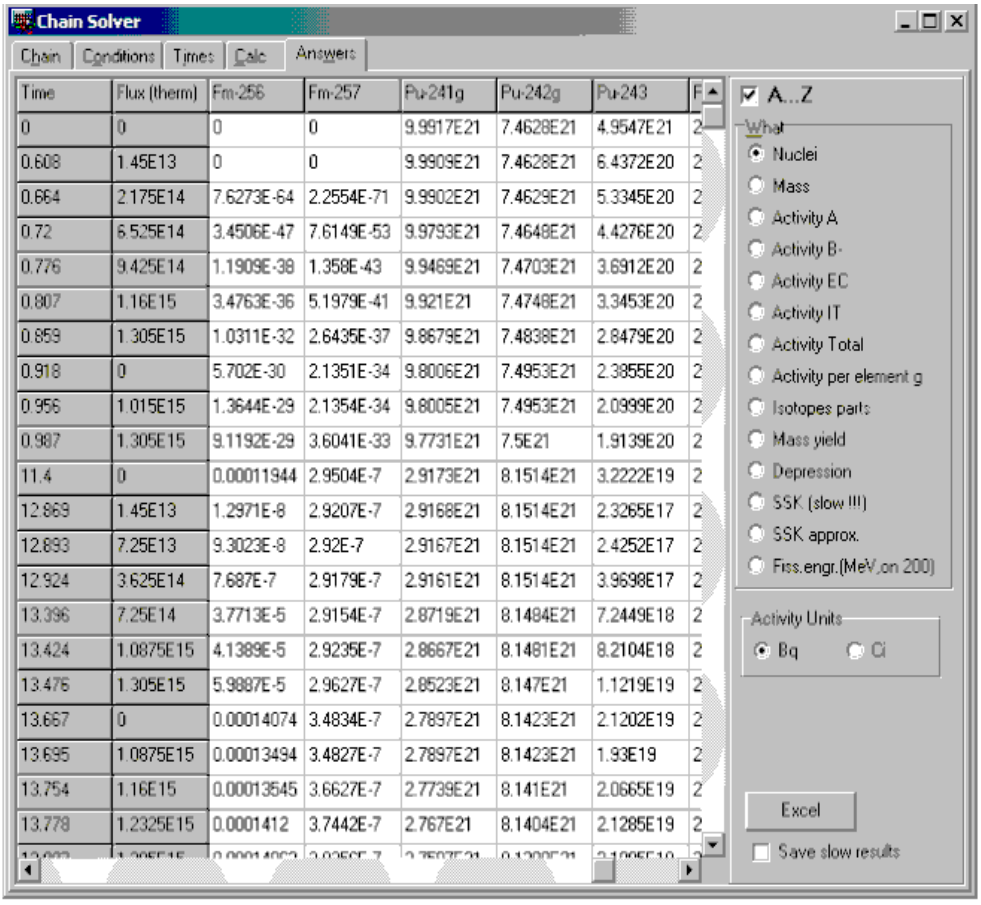


Figure 3.6. La page des réponses

La case à cocher "A_Z" permet le classement alphabétique des noms des états du nucléide. Le choix des unités d'activité est possible sur la case "Activity Units" : Ci – l'activité en curie, BQ - l'activité en becquerel. Le type de mesure sera affiché dans le tableau est déterminé à partir du choix effectué dans le groupe "What" :

"**Nuclei**" - le nombre de noyaux d'isotopes de la chaîne pour chaque intervalle temporel,

"**Mass**" - poids(en grammes),

"**Activity A**" - l'activité alpha,

"**Activity B**" - l'activité bêta,

"**Activity CE**" - activité mesuré sur la désintégration par capture électronique ou β+,
"**Activity IT**" - activité mesuré sur la désintégration par transition isomérique,
"**Activity Total**" - l'activité totale,
«**Activity per element g**" - l'activité totale pour un gramme de la masse de élément,
"**Isotope parts**" – la partition isotopique des éléments présents dans la chaîne (il est considéré que tous les isotopes d'un élément sont présentés dans une chaîne),
"**Masse yield**" - le rendement par gramme de masse des éléments initiaux,
"**Depression**" - facteur de dépression (une valeur pour chaque intervalle de temps),
"**SSK (slow!!!)** " - Facteurs d'auto- résonance de protection (valeurs exactes, le programme donne un message d'alerte pour prévenir de la durée probable de la procédure de calcul),
"**SSK approx**" - Facteurs d'auto- résonance de protection (estimé approximativement sur le tableau des valeurs qui ont été effectivement utilisées au calcul des transmutations).
"**Fiss.engr. (MeV, 200**)" - la valeur d'énergie déposées par (MeV).
La valeur des dépôts d'énergie est importante puisque l'irradiation d'une quantité d'actinides et des transuraniens conduit à d'importantes difficultés en raison d'une déposition thermique importante créée par la fission d'isotopes initiaux ou intermédiaires.
En appuyant sur le bouton "Excel" tous les résultats sont enregistrés dans un fichier de type feuilles de calcul **MS Excel**. La case à cocher "**Save slow result**" sauvegarde le fichier des résultats.

Transmutation du Technétium-99

Le Technétium-99 est l'un des produits de fission les plus importants. C'est un élément radiotoxique avec une grande durée de vie. Sa transmutation par capture neutronique est possible mais avec un rendement faible. Dans ce chapitre on calculera le taux de transmutation du Technétium-99 par le code de calcul ChainSolver dans deux types de réacteurs nucléaire : un réacteur thermique et un réacteur rapide, afin d'effectuer une comparaison entre les deux taux.

1. Le Technétium 99

1.1. Caractéristiques

Le Technétium 99 est un élément radioactif, gris argent de symbole chimique ^{99}Tc. Sa densité est de 11.5 g/cm^3 à 25 °C et sa température de fusion est de 2250 °C. Ses états d'oxydations courantes sont +7, +5 et +4. A une température inférieure à 11.2 K, le métal est supraconducteur [63]. Il se cristallise dans une structure hexagonale compacte avec a = 2,7409 ± 0,0035 Å et c = 4,3987 ± 0,0034 Å. Son moment magnétique, son spin et sa parité sont respectivement 5,7 μ_N et $9/2^+$. Son nom vient du mot grec technetos qui signifie artificiel. Il a été découvert en 1937 par le minéralogiste italien Carlo Perrier et le physicien américain Emilio Segre, sous sa forme ^{97}Tc sur un échantillon de molybdène qu'on a bombardé par des deutérons du cyclotron de Berkeley. C'est le premier élément qu'on a pu produire artificiellement. En 1962 on a pu isoler et identifier des traces du technétium dans les mines africaines d'uranium comme étant un produit de fission naturel de l'uranium 238 par B.T. Kenna et P.K. Kuroda. Tous ses isotopes sont radioactifs. Trois d'entre eux le ^{97}Tc, le ^{98}Tc et le ^{99}Tc ont des durées de vie très importantes: 2,6 10^6 ans, 4,2 10^6 ans et 2,1 10^5ans respectivement. Le technétium 99 (^{99}Tc) est le plus important car il est présent avec une quantité significative par rapport aux autres isotopes. Ce produit de fission provient des réacteurs nucléaires à fission. Pour 100 atomes d'uranium qui fissionnent on a 6 atomes du

technétium 99 qui sont produits. Le technétium 99 décroît par émission d'une particule bêta (β^-) pour donner le ruthénium stable. Il est le candidat de choix pour la transmutation. La forme chimique dominante pour le technétium est le pertechnitate TcO_4 dans l'état soluble et le TcO_2 dans la forme métallique. Le technétium 99m ($^{99}_{m}Tc$) est l'un des isotopes les plus utilisés dans la médecine nucléaire moderne. C'est un isomère du technétium 99 produit par décroissance bêta (β^-) du molybdène 99 (66 heures). Il émet un photon gamma unique de 140 keV. C'est pour cette raison et pour sa courte période de 6 heures qu'il est utilisé pour l'imagerie scintigraphie [45].

1.2. Séparation chimique du Technétium 99 par procédé PUREX

Le principe de base pour tout procédé chimique de séparation ou d'extraction est la dissolution suivie de l'extraction par échange ionique ou par solvant. La dissolution oxydante du technétium par HNO_3, conduit à l'acide fort pertechnétique ($HTcO_4$). Au cours du traitement les états d'oxydation Tc^{+5} et Tc^{+6} subissent la transformation en Tc^{+4} et TcO_4^-, l'état le plus stable est Tc^{+7}. Une partie du technétium présent dans l'alliage fissum (mélange de produits de fission difficilement solubles) passe en solution sous forme de pertechnétique (TcO_4^-) (valence +7). De 30 à 50 % du technétium sont co-extraits in-désirablement avec l'uranium et le plutonium au premier cycle (première extraction). Le technétium est présent sous la forme d'acide pertechnétique extractible où l'ion pertechnitate TcO_4^- remplacent l'ion nitrate. Il se présente après le retraitement en partie sous forme insoluble TcO_2 avec les autres métaux nobles (Ru, Rh, Pb) et en partie soluble sous la forme TcO_4-. Il est techniquement possible de séparer le technétium soluble moyennant quelques adaptations du procédé PUREX [63]. Il peut être séparé sous forme d'acide pertechnétique ($HTcO_4$) par des molécules extractantes du type mono amide ou par une méthode d'absorption sur du charbon actif. On arrive aussi à séparer par précipitation le technétium des déchets de haute activité liquide en réduisant la concentration de l'acide nitrique [63].

1.3 Fabrication du technétium métal

Au début de 1950, on a pu extraire quelques milligrammes ou grammes du Tc métal. Dans les années 70 et 80 cette technologie s'est beaucoup améliorée et une douzaine de kilogramme du

technétium métal a pu être séparée dans les sites de Oak Ridge, de Han Ford et de sibérie. Le technétium est un métal chimiquement inerte. On peut obtenir du technétium métal par réaction de l'un de ces composés avec l'hydrogène, par électrolysation de la solution du technétium ou par thermolysation du composant M_2TcHal_6 où M est un ion d'un métal alcalin ou l'ammoniaque, et Hal est l'un des halogènes: Cl, Br et I.

Le passage de l'hydrogène a travers TcS_7, TcO_2, NH_4TcO_4, $KTcO_4$ ou $[(C_6H_5)_4As]TcO_4$ à une température entre 400 - 1100°C, produit le technétium métal [64]. L'obtention d'un métal pur est possible à partir de l'ammonium pertechnetate (NH_4TcO_4) et du technétium dioxyde TcO_2. Ces processus sont très explosifs. A une température inférieure à celle exigée le technétium métal est obtenu par réduction du potassium pertechnétate $KTcO_4$ qui contient des impuretés d'oxyde de potassium. Le schéma à suivre pour la préparation du technétium métal pour sa transmutation développée en 1990 par l'association de production de Mayak commence par une conversion d'échange cation du potassium pertechnétate vers l'acide pertechnétate $HTcO_4$, suivie par neutralisation par l'ammoniaque et en fin par la séparation de l'ammonium pertechnétate sous forme cristalline. La cinétique de la décomposition thermique de l'ammonium pertechnétate vers le dioxyde suivi par la réduction vers le métal par l'hydrogène a été menée dans le but de déterminer les conditions expérimentales les plus sûres pour la synthèse du technétium métal. On trouve cette réaction dans toutes les études qui décrivent la décomposition de l'ammonium pertechnétate. La température de décomposition est différente selon l'environnement appliqué. Elle est de 325 °C pour un flux d'argon, 327 et 340 °C pour un flux de nitrogène et 550 °C pour le vide. Les divers ages des échantillons de l'ammonium pertechnétate et les différentes doses d'absorption peuvent aussi affecter la décomposition thermique. L'ammonium pertechnétate est caractérisé par une faible résistance aux radiations, comparé au pertechnétate alcalin. Cette réaction est une réaction exothermique, elle est accompagnée par un dégagement de chaleur de 141,5 kJ/mole de TcO_2. Elle se produit dans un temps très court (1 à 3 min) dans une température de 325 à 500 °C suivie par une libération de 2,5 moles de gaz N_2 et H_2O par mole de sel. Le volume initial de NH_4TcO_4 et le volume du produit ultime TcO_2, dans cette réaction, sont les mêmes [64].

La réduction du technétium dioxyde en métal par l'hydrogène a été utilisée depuis 1950, elle est la plus fréquemment utilisée pour la préparation du technétium métal. L'étude de la cinétique et le

mécanisme de cette réaction n'ont commencé que depuis 1990. La réduction du technétium dioxyde par un mélange d'argon- hydrogène à une température de 673 –1118 K est une réaction topo chimique.

Le rendement de cette réaction à une température fixe dépend du flux du mélange argon – hydrogène et du poids de l'échantillon du technétium dioxyde. L'augmentation de la température implique une augmentation du rendement de la réaction jusqu'à une température de 1000 K puis elle diminue [64].

1.4. Réaction de transmutation

L'étude de la transmutation du technétium a commencé en 1992 par les tests de radiation des cibles du ^{99}Tc au niveau des réacteurs à haut flux (HFR). La fabrication des cibles pour ces tests est à l'étude. Des techniques sont développées pour la fabrication des cylindres ou des capsules à transmutation [65]. Les produits de fission à vie longue peuvent être transmutés par un ou plusieurs processus de capture neutronique suivi d'une décroissanceβ. Le Technétium 99 est l'un des produits de fission à vie longue les plus importants, il est présent avec une grande quantité dans le combustible nucléaire usée. Le ^{99}Tc a une longue durée de vie 2.10^5 ans et avec sa grande habilité d'immigrer dans n'importe quel matériau y compris le verre de stockage, pourrait dans les pires des scénarios être libéré dans l'environnement après une longue durée de stockage.

Le technétium-99 est un élément radiotoxique à vie très longue ($2.1\ 10^5$ ans). Sa transmutation par neutrons est possible pour donner le ^{100}Tc dans un état excité (Figure 4.1) qui décroît rapidement par émission d'un β^- vers le ^{100}Ru stable selon la réaction suivante [66] :

$$^{99}\text{Tc} + n \longrightarrow {}^{100}\text{Tc}^{*} \xrightarrow{\beta^-} {}^{100}\text{Ru (stable)}$$

Le technétium-99 est donc un candidat de choix pour le processus prometteur de la transmutation des déchets nucléaires.

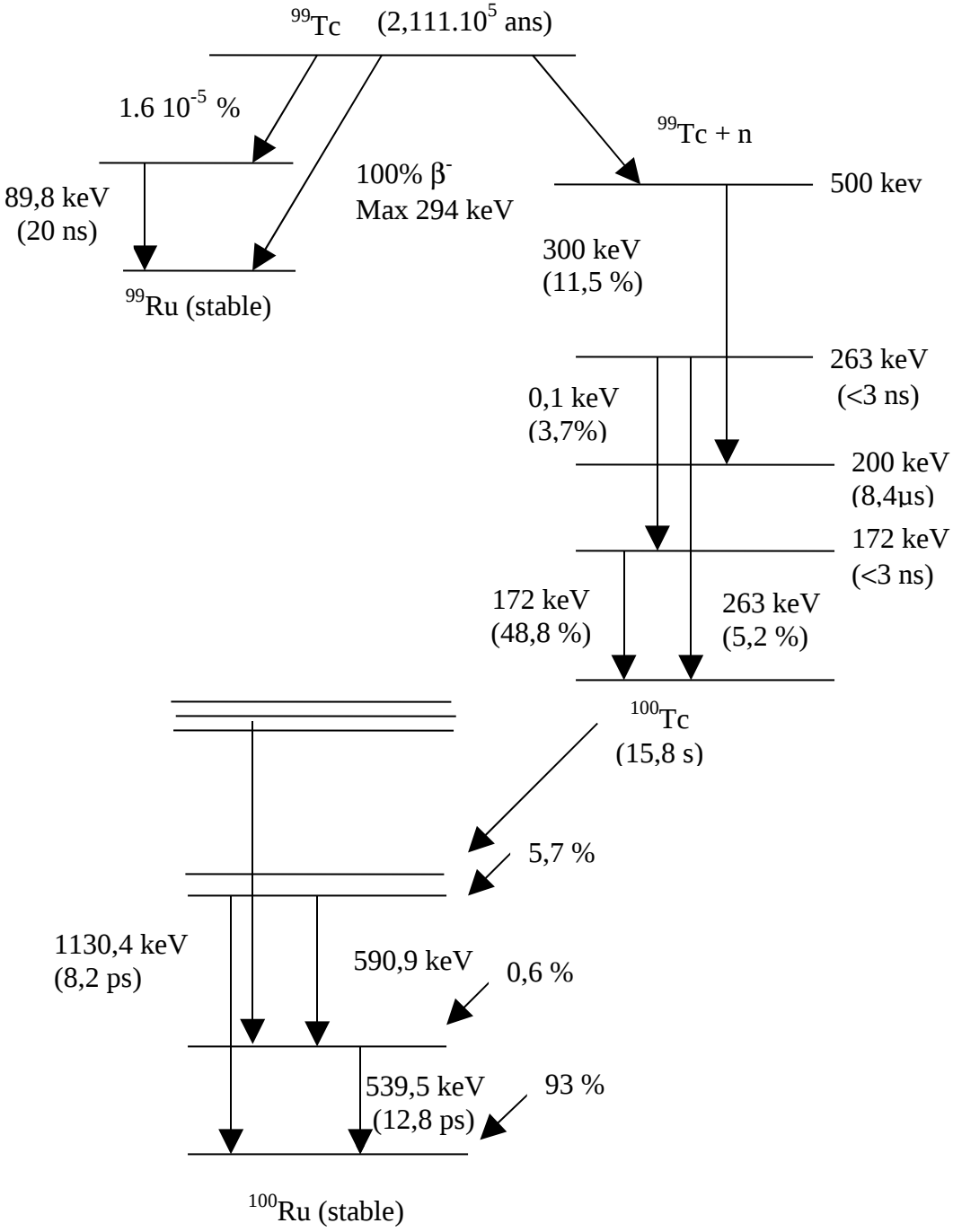


Figure4.1. Schéma simple du processus de transmutation du ^{99}Tc

2. Transmutation du Technétium-99 dans le Réacteur de recherches thermique (HFR)

2.1. Le réacteur de recherches thermique (HFR)

Le réacteur de recherches haut flux : High Flux Reactor (HFR) situé à Petten (Pays-Bas), appartient à l'institut des matériaux avancés de la division de recherches de commission européenne. Le HFR est un réacteur thermique à haut flux type piscine, il est refroidi et modéré avec l'eau légère. Sa puissance maximale de fonction est de 45 MW. Le HFR est opérationnel depuis l'année 1962 et il peut rester en fonction au delà de l'année 2015, c'est l'un des réacteurs de recherches les plus puissants et importants dans le monde [67].

Le réacteur offre plusieurs canaux d'irradiations en différentes positions : dans le cœur du réacteur, dans la région du réflecteur et au bord de la piscine. Les tubes du faisceau neutroniques sont destinés aux recherches et applications médicales basées sur les neutrons. Les installations pour les analyses avec rayonnement gamma sont aussi disponibles. La période de fonctionnement du réacteur se compose de 11 cycles de 28 jours chacun (24.7 jours de fonctionnement en plein puissance et 3.3 jours pour les procédés de rechargement ordinaire de base), avec 2 arrêts d'entretient de quatre semaines, ce qui nous donne 275 jours de fonctionnement en plein puissance par an.

Le cœur se compose de 9 × 9 rangés (729 mm × 750,4 mm) contenant 33 assemblages combustible, 6 barres de contrôles, 19 postes pour les testes d'irradiations et 25 éléments réflecteurs en Béryllium Figure 4.2. Les assemblages combustible (section horizontale de 81 mm × 77 mm ; hauteur 924 mm) contiennent 23 plaques composées chacune d'un alliage d'Aluminium – Uranium d'épaisseur 0.51 mm, entourée d'une gaine d'Aluminium d'épaisseur 0.38 mm pour les plaques placées à l'intérieur et de 0.57 mm pour celles placées à l'extérieur. La largeur de la zone active est de 600 mm. Le taux d'enrichissement du combustible en ^{235}U est de 89 % [67].

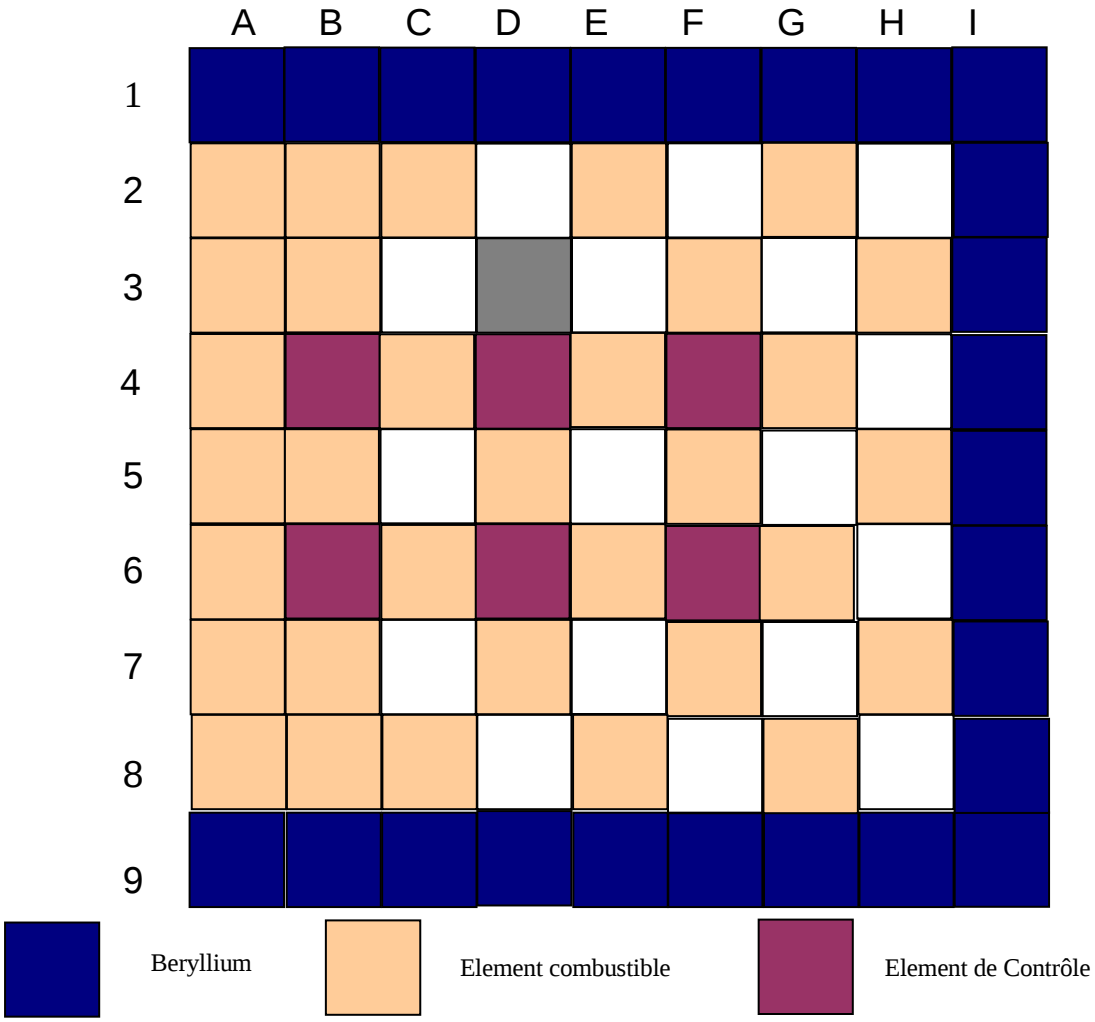


Figure 4. 2. Configuration du cœur pour le HFR

2.2. Les tests d'irradiations du Technétium 99

Le Technétium 99 est l'un des produits de fission à vie longue qui domine la radioactivité β du combustible usé pour les milliers d'années à venir. Après avoir absorbé un neutron, il donne le Tc-100 qui décroit rapidement vers le Ruthénium-100 qui est stable. Sa transmutation par capture neutronique est donc théoriquement possible.

En 1992, la collaboration EFTTRA (Experimental Fesabilty of Targets for TRAnsmutation), entre la Commissariat à l'énergie atomique CEA, la Fondation des recherches nucléaires (Netherlands), Electricité de France, Le Forschungszentrum karlsruhe, l'Institut pour les matériaux avancés et l'Institut des éléments transuraniens, a été fondée. Cette collaboration a pour but d'étudier expérimentalement le comportement des cibles pendant leurs irradiations dans les réacteurs thermiques et rapides pour démontrer la faisabilité de la transmutation des produits de fission à vie longue et des actinides mineurs [68].

Parmi les premières expériences effectuées par EFTTRA vient les éxperiences d'irradiation de Technétium-99 métal dans le réacteur de recherches à haut flux de Petten en 1992. Les cibles du Technétium été 6 pastilles de Technétium métal de 4.8mm de diamètre et de 25mm de hauteur avec une densité de purification supérieur à 99.9%.

Dans la première expérience d'irradiation EFTTRA-T1, trois cibles de Technétium sont irradiés, chacune contient 2 pastilles enfermées dans une capsule en acier inoxydable de Titane. Les cibles d'irradiation sont positionnées dans l'emplacement C5 du cœur du HFR de Petten. A cette position le flux totale excède 1×10^{15} n/cm^2.s et le flux thermique est supérieur à 2×10^{14} n/cm^2.s. La période d'irradiation est de 192.95 j à plein puissance. Le taux de transmutation obtenu dans ces conditions est entre (6.4 ± 0.2) % dans le bas de la barre et (6.1 ± 0.2) % dans le haut [69].

Les capsules d'irradiations pour le teste EFTTRA-T2 contient des barre de Technétium métal. Ces barres ont déjà été irradiées dans l'expérience EFTTRA-T1. La période cumulative d'irradiation pour T1 et T2 est de 579.3 j à plein puissance. Les résultats du teste d'irradiation T2 du Technétium-99 donne un taux de transmutation entre 15 et 18 % [70].

2.3. Evaluation du taux de transmutation du Technétium-99 : Résultats et Interprétations

Le taux de transmutation est l'un des paramètres les plus important dans les calculs de transmutation. Il nous permet d'avoir une idée sur la faisabilité du processus de transmutation. Dans nos calcul du taux de transmutation du Technétium-99 dans le réacteur thermique de Petten à l'aide du code ChainSolver, nous avons adopté les mêmes conditions d'irradiations utilisées lors des expériences T1 et T2, telles que les valeurs du flux thermique et total ainsi que la période d'irradiation.

Les taux de transmutation obtenus par évaluation à l'aide du code ChainSolver sont donnés dans le tableau 4.1 suivant :

Expérience	Flux thermique ($n/cm^2.s$)	Flux rapide ($n/cm^2.s$)	Période d'irradiation (jours)	Taux de transmutation (%)	
				Expérience	Evaluation
T1	2×10^{14}	8×10^{14}	192.95	6.1 ± 0.2	5.71
T2	2×10^{14}	8×10^{14}	579.3	15 -18	15.92

Tableau 4.1. Comparaison entres les taux de transmutation expérimentaux et évalués

Ces résultats obtenus par évaluation sont en parfait accord avec ceux obtenus expérimentalement. Ce ci nous permet de conclure que le code ChainSolver est un bon code de calcul qui peut être appliqué avec fiabilité pour évaluer le taux de transmutation. Ces résultats montrent que le taux de transmutation du Technétium dans les réacteurs thermiques est faible ce qui demande un long séjour dans le réacteur.

3. Transmutation du technétium-99 dans le Réacteur de recherches à neutrons rapides JOYO

3.1. Le réacteur JOYO

Le réacteur expérimental de recherches à neutrons rapides JOYO à été construit au Japon comme étant la première étape dans le développement des réacteurs rapides refroidis avec du sodium. La mission du réacteur JOYO consiste à effectuer des tests sur la sûreté, sur les opérations effectuées sur ce type de réacteurs et sur les matériaux envisagés à être utilisés comme combustible.

Le réacteur a atteint sa criticité initiale en 1977 avec le cœur à neutrons rapides type MKI et la puissance entre 50 et 70 MW. Entre 1983 et 2000, JOYO est devenu opérationnel avec le cœur type MKII et la puissance de 100 MW. En 2003, JOYO avec le cœur type MKIII, a atteint la puissance de 140 MW et le cœur a été complété pour augmenter sa capacité d'effectuer des tests d'irradiations.

En comparaison avec le cœur MKII le cœur MKIII incorpore des changements significatifs sur les dimensions, la configuration générale, le taux d'enrichissement du combustible et niveau de puissance Figure 4.3 [71].

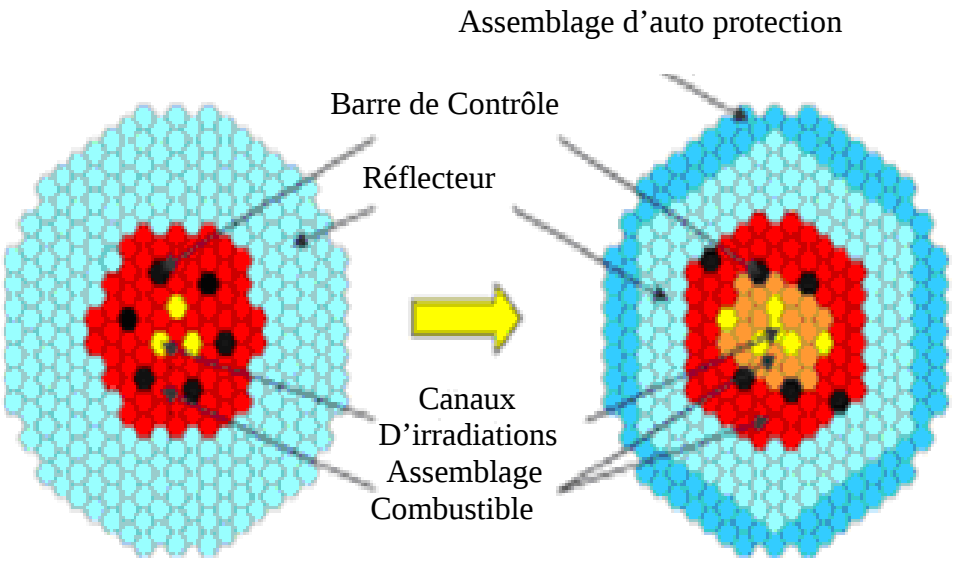


Figure 4.3. Comparaison entre le cœur JOYO MKII et MKIII

Les caractéristiques des deux cœurs MKII et MKIII sont données dans le Tableau 4.2 [72].

Specification		MKII	MKIII
Puissance maximal	(MWt)	100	140
nombre maximal d'assemblage combustibles *		67	85
Diameter du cœur	(cm)	73	80
Hauteur du cœur	(cm)	55	50
Enrichissement ^{235}U	(wt %)	18	18
Pu contenu: Pu/(Pu+U)	(wt %)	30	23/30**
Plutonium fissile contenu: (^{239}Pu+^{241}Pu)/ (Pu+U)	(wt %)	21	16/21**
Taux maximal de chaleur des barres combustible	(W/cm)	400	420
Taux d'incinération maximal du combustible	(GWj/t)	75	90
Flux total	(n/cm^2.s)	4.5×10^{15}	5.7×10^{15}
Flux rapide (n/cm^2.s)		3.2×10^{15}	4.0×10^{15}
Nombre des barres de contrôl dans la 3^{ième} rangée		6	4
Dans la 5^{ième} rangée		0	2
Réflecteur / Blindage		SUS/SUS	SUS/B_4C
Température du caloporteur (Intérieur/Extérieur)	(°C)	370/500	350/500
Période opérationnelle par cycle	(jours)	70	60
Cycles opérationnels par an	(Cycle)	4	5

* Nombre d'assemblage combustible d'irradiation d'essai inclu

** Cœur interne / cœur externe

Tableau 4.2. Les paramètres des cœurs JOYO MKII et MKIII

La région combustible dans le MK-III est divisée en deux zones radiales d'enrichissement afin d'aplatir la distribution du flux neutronique. Le cœur actif est cylindrique d'environ 80 cm de diamètre et de 50 cm en hauteur. Le réflecteur est une région radiale d'acier inoxydable de 25 à 30 cm d'épaisseur. Le blindage constitue les deux dernières rangées de la région réflectrice. Il est à base B_4C. Par conséquent, le flux de neutrons rapides dans le MKIII est jusqu'à 1,3 fois plus

élevé que celui du MK-II. En outre, le champ d'irradiation d'essai possible avec un haut flux de neutrons est d'environ le double que celui offert par le cœur MK-II. Le flux total est de 3 à 5 × 10^{15}n/cm^2.s et l'indice du spectre ($\varphi_{E> 0.1MeV}$ / φ_{total}) est d'environ 0,6 à 0,7 [73].

3.2. Evaluation du taux de transmutation

Afin d'obtenir un taux de transmutation plus élevé, on considère, dans cette étude, un sous-assemblage formé d'un modérateur de neutrons et d'une cible placé dans la région réflecteur. La configuration adoptée pour le cœur MKIII est présentée dans la Figure 4.4. Une partie de la région du réflecteur à été remplacée par un sous ensemble : modérateur - cible. Le modérateur choisi pour augmenter le taux de transmutation du Technétium est le béryllium (Be). Il a aussi une haute performance pour les processus de transmutation [73].

Six ensembles de béryllium ont été placées dans les lignes 7, 8 et 9 de la région réflectrice. Sa structure est similaire aux autres éléments de base. Ce sous ensemble entoure un assemblage qui contient la cible de ^{99}Tc métal. Cette configuration de base est fondée sur le fait que le volume d'un seul sous-ensemble n'est pas assez grand pour contenir suffisamment de matériau modérateur. Le concept de la séparation de sous- ensemble modérateur et cible ont un avantage pour le processus d'irradiation du Technétium. Le réflecteur radial entre le combustible et le sous assemblage du modérateur fonctionne comme un tampon qui divise la région de neutrons thermiques de la région des neutrons rapides. Cela évite la pointe thermique que se déroulent près de la frontière entre les différentes régions éventail des neutrons.

L'évaluation des flux de neutrons dans le sous assemblage cible et modérateur montre que les flux thermique et épithermique sont considérables en utilisant le béryllium comme modérateur, le Tableau 4.3 [73]. La contribution du flux épithermique aux processus de transmutation du Technétium est importante, parce que les principaux pics de la section efficace de la réaction ^{99}Tc (n, γ) ^{100}Tc sont dans le domaine de l'énergie transversale c'est çà dire dans l'intervalle entre 2 - 20 eV. La probabilité de la réaction est plus élevée que dans le domaine thermique Figure4.5 [45].

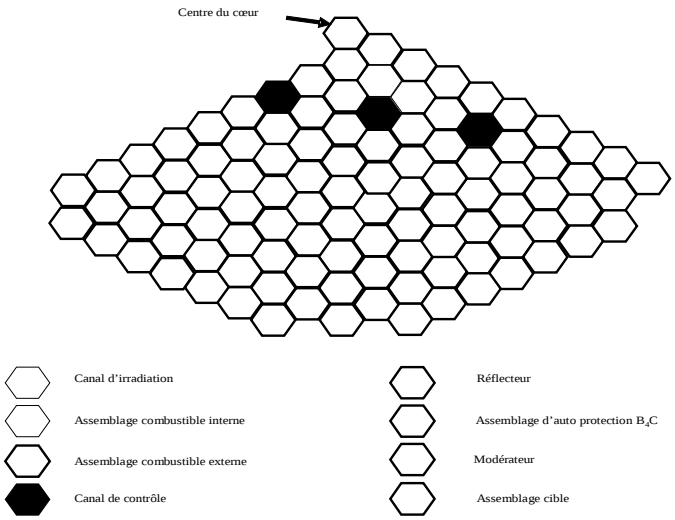


Figure 4.4. L'emplacement du sous assemblage Béryllium-cible

Flux neutronique (n/cm^2.s)	Totale	Rapide (E>0.1 MeV)	Epithermique (E<1KeV)	Thermique (E<0.312 eV)
Réflecteur radiale	8.71×10^{14}	4.33×10^{14}	8.6×10^{13}	0.0
Be (90 %)	9.95×10^{14}	1.67×10^{14}	4.84×10^{14}	6.34×10^{13}

Tableau 4.3. Dépendance Energie flux

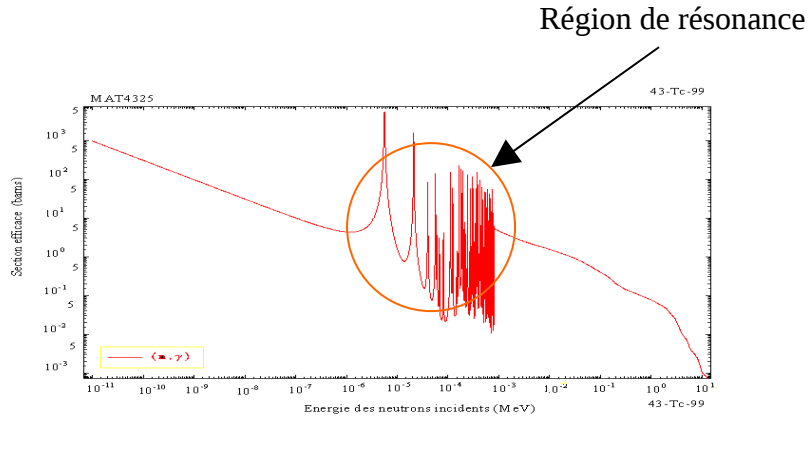


Figure 4.5. Section efficace de capture neutronique pour le ^{99}Tc à partir de la bibliothèque ENDF/B-6

Les taux de transmutation du technétium dans la région du réflecteur et dans l'assemblage modérateur-cible sont évalués avec le code de calcul ChainSolver utilisé pour les calculs de la transmutation dans les réacteurs nucléaires.

Le code ChainSolver est destiné à simuler le comportement de la cible au cours de son irradiation neutronique. Le code calcule l'évolution de la densité du nucléide en fonction du temps. La dépression du flux de neutrons thermiques, la résonance d'auto- protection des isotopes au cours de l'irradiation, la période d''irradiation (les divers positions de la cible irradiée dans le réacteur) sont pris en compte. Comme dans chaque étape d'irradiation les flux : thermique, epithermique et rapide, les sections efficaces de la réaction, la période de l'irradiation et la composition de la cible doivent être prises en considération, les calculs deviennent extrêmement fastidieux. Les principales approximations dans les calculs de transmutations sont dues seulement à l'hypothèse faites sur l'influence insignifiante des changements dans les caractéristiques des matériaux de structure du réacteur pendant l'irradiation.

3.3. Résultats et Interprétations

La masse de la cible du Technétium utilisé est d'environ 20 g. Pour 140 jours en plein puissance, les taux de transmutation dans la région du réflecteur et dans l'assemblage modérateur-cible sont estimés à ~ 30 % et 87 % respectivement. L'évolution de la concentration de Ruthénium sous irradiation dans le réacteur rapide expérimental JOYO est montrée dans la Figure 4.6 [74]. Sur la base de l'évaluation de la transmutation du Technétium, nous considérons que l'utilisation du sous assemblage Béryllium – cible a modifié la gamme d'énergie thermique et épithermique et a considérablement augmenté le taux de transmutation Figure 4.7 [74].

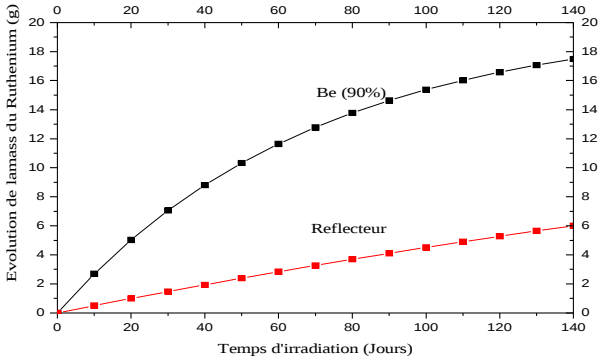


Figure 4.6. Evolution de la mass de Ruthénium pendant l'irradiation

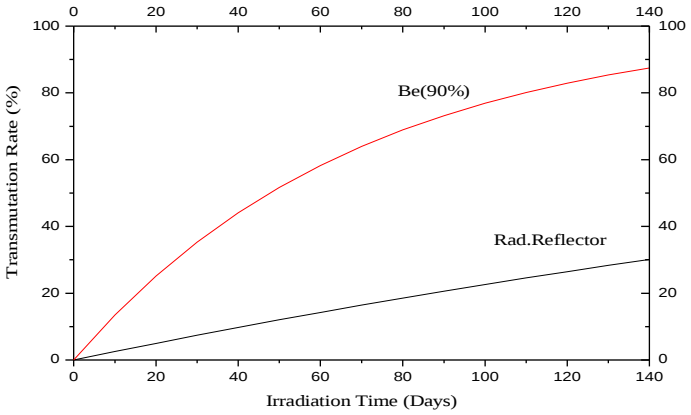


Figure 4.7. Taux de transmutation dans JOYO

4. Le réacteur conceptuel à haut flux rapide de transmutation

4.1. Présentation du réacteur conceptuel

On propose un réacteur de recherche conceptuel à haut flux pour transmutation (HFR_{TR}). Il est supposé que le HFR_{TR} est un réacteur de recherche de performance comparable aux réacteurs de recherches de 100 MW actuel. La taille et la géométrie du cœur ainsi que les caractéristiques du combustible sont tenues les mêmes pour ce réacteur conceptuel. Seulement on laisse l'un des canaux d'irradiation pour l'objectif de réaliser la transmutation ce canal est dit "Canal de transmutation". A cette position, le flux thermique dans la cible est supérieur à 1×10^{15} $n.cm^{-2}s^{-1}$ et un flux épithermique supérieur à 1×10^{14} $n.cm^{-2}s^{-1}$. La contribution du flux épithermique au processus de la transmutation du Technétium est très importante. L'évaluation de la concentration du Ruthénium sous irradiation a été estimée par le code calcul de transmutation ChainSolver 2.20. L'approximation dans ce calcul de transmutations est due seulement à l'hypothèse faite sur l'influence insignifiante des changements dans les caractéristiques des matériaux de structure de ce réacteur de recherche conceptuel pendant l'irradiation.

4.2. Résultats et interprétation

La masse de la cible de Technétium placé dans le canal de transmutation est d'environ 20g. La période d'irradiation à plein puissance est de 380 jours. Le taux de transmutation estimé est de ~ 83 % Figure.4.8 [75].

L'évolution de la concentration de ruthénium sous irradiation dans le HFR_{TR} est indiquée dans la Fig.4.9 [75]. L'évolution de la concentration de Ruthénium au cours de la première centaine de jours est très rapide, ~ 40 %, mais elle devient lente après : ~ 20 % pour la deuxième centaine de jours, ~ 14 % pour la troisième centaine de jours, et ainsi de suite. Cela est dû à l'impact des processus d'activation du Ruthénium sur la transmutation par la formation d'isotopes ^{101}Ru, ^{102}Ru et ^{103}Ru, Figure 4.10 [75]. Pour cette raison, nous suggérons que la cible de Technétium soit déchargée après cette période.

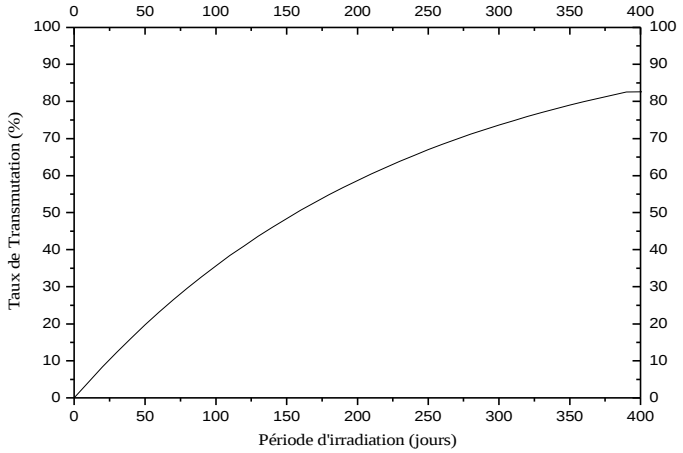


Figure 4.8. Taux de transmutation du Technétium dans le réacteur conceptuel HFR_{TR}

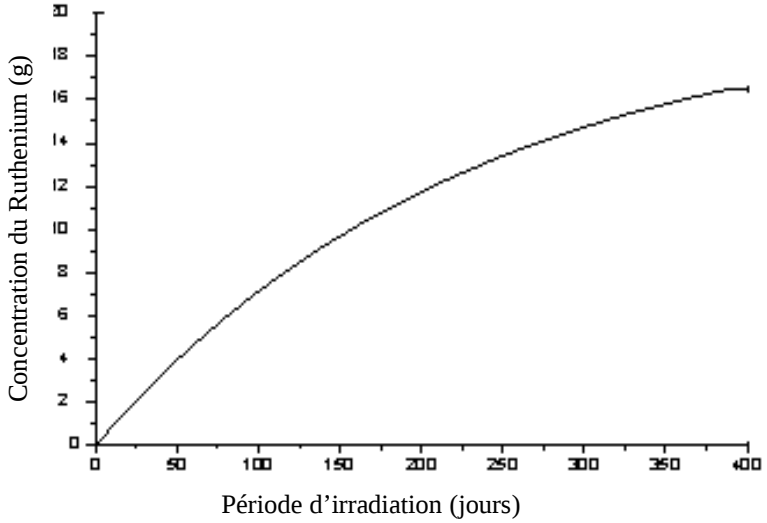


Figure 4.9. Evolution de la concentration de ruthénium sous irradiation dans le HFR_{TR}

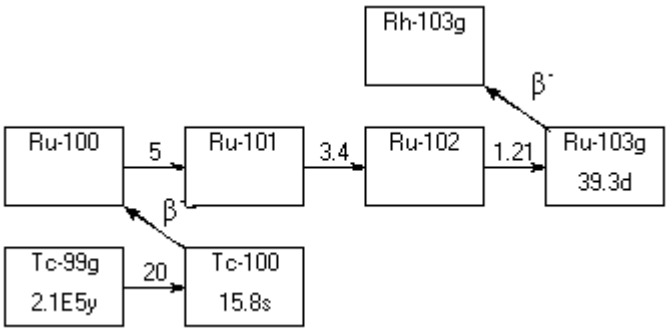


Figure 4.10. Chaine de transmutation du Technétium sous irradiation

Sur la base du taux de transmutation évalué de la transmutation du Technétium dans le HFR_{TR}, le concept de réacteur de recherche de transmutation comme étant un système de multi-recyclage de transmutation pour le Technétium dans les réacteurs de recherches à haut flux HFR rapide est proposé. Le rendement de formation du Ruthénium par transmutation du Technétium sous irradiation est satisfaisant, mais il a besoin d'une séparation chimique avancée de Ruthénium noble des cibles de Technétium irradiées.

Available online at www.sciencedirect.com
ScienceDirect
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 266 (2008) 926–928
NIM B
Beam Interactions with Materials & Atoms
www.elsevier.com/locate/nimb

Transmutation of Technetium into stable Ruthenium in high flux conceptual research reactor

Naïma Amrani *, Ahmed Boucenna

DAC Laboratory, Physics Department, Faculty of Sciences, UFAS University, Sétif 19000, Algeria

Received 27 August 2007; received in revised form 21 January 2008
Available online 1 February 2008

Abstract

The effectiveness of transmutation for the long-lived fission product Technetium-99 in a high flux research reactor is evaluated, taking into account its large capture cross section in the thermal and epithermal regions. Calculation of the evolution of the Ruthenium concentration under irradiation was performed using the ChainSolver 2.20 code. The results on Technetium transmutation suggest an effective use of this kind of research reactors and describes a new concept of multi-recycle Technetium transmutation using HFR_{TRAN} (high flux research reactor for transmutation).
© 2008 Elsevier B.V. All rights reserved.

PACS: 25.40.Lw

Keywords: Transmutation; Technetium-99; Ruthenium-100

1. Introduction

The long-lived fission products (LLFPs) generated in fission reactors will remain as radioactive wastes for a long period if they are not transmuted into stable or short-lived nuclides. One of the most important fission products in the nuclear spent fuel is the long-lived fission product Technetium-99 (^{99}Tc) with a half life of 2.1×10^5 years. Also it has the ability to migrate into any kind of material, including storage glasses, due to his high geochemical mobility which could in a worst-case scenario, lead to its release into the environment during long term storage [1]. Technetium-99 is produced in nuclear transformations in nuclear reactors with a large cumulative yield of 6.11% for the thermal neutron fission of ^{235}U [2]. After neutron capture the nucleus ^{100}Tc decays to the stable isotope ^{100}Ru with a half life of 15.8 s. This makes ^{99}Tc a particularly interesting candidate for neutron transmutation and also for the production of artificially stable Ruthenium.

In 1992 the EFTTRA (*E*xperimental *F*easibility of *T*arget for *TRA*nsmutation) cooperation was founded with the goal of experimentally investigating the behaviour of targets during irradiation in fast and thermal reactors and to demonstrate the applicability of scenarios for the transmutation of long-lived fission products and minor actinides. One of the first experiments of EFTTRA was irradiation of six rods of ^{99}Tc in the Petten high flux reactor for 193 effective full power days, during which ~6% of the ^{99}Tc is transmuted into the stable ^{100}Ru [3]. The objectives of this study are: (1) Evaluation of the effectiveness of Technetium transmutation in a high flux research reactor (HFR) considering its large capture cross section in the thermal and epithermal regions; (2) To propose a new concept of multi-recycle Technetium transmutation using HFR_{TRAN} (high flux research reactor for transmutation).

2. Experimental study of Technetium transmutation

Nuclear transmutation can be induced by any particles or quanta able to penetrate nuclei and to interact with nucleons. The most effective nuclear process that can be

* Corresponding author.
E-mail address: naima2073@yahoo.fr (N. Amrani).

0168-583X/$ - see front matter © 2008 Elsevier B.V. All rights reserved.
doi:10.1016/j.nimb.2008.01.047

used for transmutation of the radiotoxic isotope ^{99}Tc is neutron absorption [4]

$$^{99}\mathrm{Tc}(n,\gamma)^{100}\mathrm{Tc}\xrightarrow{T_{1/2}=15.8\ \mathrm{s}}{}^{100}\mathrm{Ru}$$

After capturing a neutron, ^{99}Tc becomes ^{100}Tc, usually in an excited state which decays very fast, typically in few ns into the ^{100}Tc ground state, by emitting so-called prompt photons. ^{100}Tc has a half life of 15.8 s and decays by β-transition into ^{100}Ru, in about 7% of the cases into an excited state of this isotope. These ^{100}Ru excited states decay very fast, in less than 1 ns, into the ^{100}Ru ground state, emitting so-called delayed photons [5].

Experimental studies of ^{99}Tc transmutation were described by research groups from Hanford Site (USA), Petten (Holland), CERN (Switzerland) and RIAR (Russia). A burn-up of 0.67% of Technetium-99 for 10 days was achieved in the Hanford Fast reactor using a metal-hybrid moderated environment of the target [6]. A burn-up of 16–18% for 579.3 days of irradiation was achieved in the Petten high flux reactor which has a thermal flux of 2×10^{14} n cm^{-2} s^{-1} [7]. More than 100 Technetium targets (discs with a diameter of 6 mm and thickness of 0.3 mm) were irradiated in the SM-3 high flux reactor at RIAR [8]. The flux of thermal neutrons was 1.2×10^{15} cm^{-2} s^{-1} in the neutron trap inside the target at the beginning of the irradiation and increased to about 15% when the Tc burn-up achieved 70%. The epithermal neutron flux in the neutron trap was 1.1×10^{14} n cm^{-2} s^{-1} and changed insignificantly during irradiation. The transmutation rate achieved in the SM-3 reactor permits 50% conversion of Tc into Ru in 150 days [9].

3. Evaluation and calculation method

A conceptual type of high flux research reactor for transmutation (HFR_{TR}) is proposed in this study. It is supposed that the HFR_{TR} is a research reactor with the performance comparable to the current 100 MW research reactor. The size of the core and the fuel cell geometry of this conceptual reactor are kept the same as the current one. We use one of the irradiation canals for the Technetium targets as the "Transmutation Canal". At this position the thermal flux in the target exceeds 1×10^{15} n cm^{-2} s^{-1} with an epithermal flux higher than 1×10^{14} n cm^{-2} s^{-1}. The contribution of the epithermal flux to the Technetium transmutation is important, because the main cross section peaks of the reaction ^{99}Tc (n, γ) ^{100}Tc are in the energy interval 2–20 eV and its resonance integral is much higher than the thermal cross section [10]. The evaluation of the Ruthenium concentration evolution under irradiation was calculated using the ChainSolver 2.20 code for transmutation calculations [11]. An approximation used is the assumption that the influence of change in irradiated materials structure on the characteristics of this conceptual research reactor operator mode is insignificant.

4. Results and discussion

The Technetium mass loaded into the transmutation canal is about 20 g. For 380 effective full power days, the transmutation fraction is estimated as ~83%. The evolution of the Ruthenium concentration under irradiation in the HFR_{TR} is shown in Fig. 1. The evolution of the Ruthenium concentration during the first hundred days is very quick, ~40%, but it then slows to ~20% for the second hundred days, and ~14% for the third hundred days, and so on (Fig. 2). This is due to the impact of the activation process on the transmutation by the formation of Ruthenium isotopes ^{101}Ru, ^{102}Ru and ^{103}Ru, as in Fig. 3. For this reason it is suggested that the Technetium targets are unloaded after this period.

In the results of Kozar et al. on the transmutation of ^{99}Tc in the SM-3 high flux research reactor, $30 \pm 2\%$ of Technetium is converted to stable Ruthenium after 72.7 effective full power days (100 MW thermal power) [12]. In this study, for the same irradiation period we obtain a transmutation rate of 27.37%. The difference between these two results is due the different thermal and epithermal flux values adopted by the two studies, shown in Table 1. The calculation of the transmutation rate using the ChainSolver 2.20 code is based on the flux values and any variation directly affects the transmutation rate. The thermal and epithermal flux values adopted approach those actually obtained in the actual high flux researches reactors. They are just a threshold values for this conceptual high flux reactor. If we evaluate the transmutation rate with the flux values given in [12] we obtain that for 72.7 effective full power days (100 MW thermal power) the transmutation rate is about 29.72%, in perfect accord with the given transmutation rate.

Based on the evaluation of Technetium transmutation in the HFR_{TRAN}, a concept of transmutation research reactor systems for the multi-recycle transmutation of Technetium in HFR is proposed. The yield of Ruthenium evolution under irradiation in this kind of research reactor is satisfied

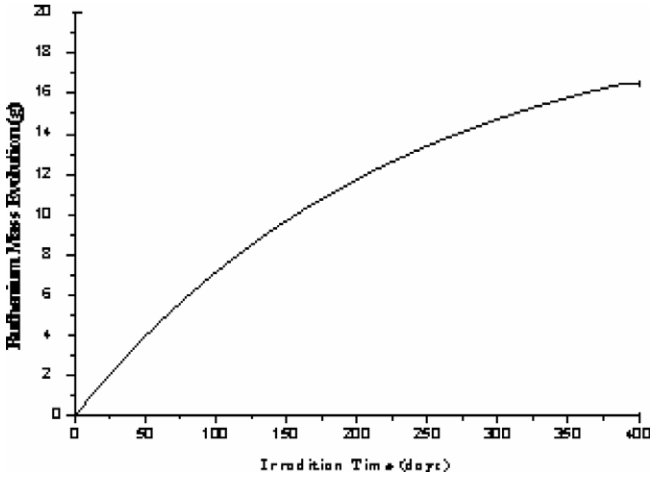


Fig. 1. Ruthenium mass evolution in HFR_{TRAN} during irradiation time.

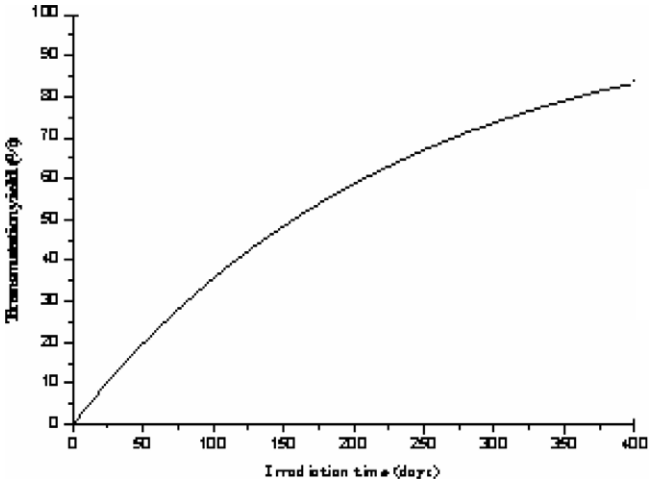


Fig. 2. Technetium transmutation yield in HFR_{TRAN}.

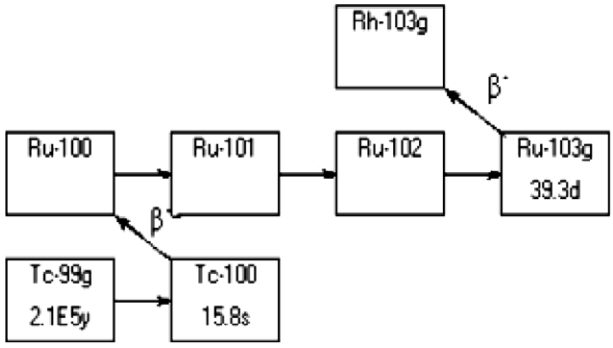


Fig. 3. Technetium transmutation chain under irradiation.

Table 1
Comparison between the transmutation rate obtained by Kozar et al. and this study

	Thermal flux ($n\,cm^2\,s^{-1}$)	Epithermal flux ($n\,cm^2\,s^{-1}$)	Transmutation rate (%)
Kozar et al. [11]	1.17×10^{15}	1.07×10^{14}	30 ± 2
This study	1×10^{15}	1×10^{14}	27.37

but it needs an advanced chemical separation of noble Ruthenium from Technetium loaded targets. Details of the chemical Ruthenium isolation is described in [9].

The main goal of this study is to add a new application for this kind of research reactor, which is to participate in the general strategy of Technetium transmutation. Transmutation will become possible in this kind of research reactor as HFR_{TR}, especially for the long-lived fission product Technetium-99.

5. Conclusions

In this study a conceptual high flux research reactor for transmutation (HFR_{TRAN}) is proposed, with a performance comparable to the current 100 MW research reactors with a thermal flux exceeding $1 \times 10^{15}\,n\,cm^{-2}\,s^{-1}$ and an epithermal flux higher than $1 \times 10^{14}\,n\,cm^{-2}\,s^{-1}$. The calculated Ruthenium concentration was estimated to ~83% for 380 effective full power irradiation days. Based on this evaluation we suggest a new concept of multi-recycle transmutation of Technetium using HFR_{TRAN}.

References

[1] F. Gunsing, A. Lepretre, C. Mounier, C. Raepsaet, Phys. Rev. C 61 (2000) 054608.
[2] T. Matsumoto, M. Igachira, T. Ohsaki, J. Nucl. Sci. Technol. 40 (2) (2003) 61.
[3] R.J.M. Konings, W.M.P. Franken, P.P. Conrad, J.-F. Gueugnon, J.C. Spirlet, Nucl. Technol. 117 (1997) 293.
[4] W. Gudowski, in: Linac 2000, XX International Linac Conference, Monterey, August 21–25, 2000.
[5] E. Gonzalez, in: Fifth OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, SCK-CEN, Mol Belgium, 25–27 November 1998.
[6] D.W. Wootan, D.P. Iordheim, W.Y. Matsumoto, Trans. Am. Nucl. Soc. 64 (1991) 125.
[7] D. Warin, R. Conrad, D. Haas, P. Martin. R.J.M. Conings, R.P.C. Schram, G. Vanbenepe, in: Proceedings of the GLOBAL-2001, Paris, France, September 2001, Report # 204.
[8] A.A. Kozar, V.A. Tarasov, Yu. G. Toporov, V.F. Peretroukhine, V.M. Radchenko, E.A. Karelin, E.G. Romanov, in: 3rd Russian–Japanese Seminar on Technetium (Dubna, 23 June–1 July 2002), JINR, Dubna, 2002, Extended synopsis, p. 80.
[9] V. Peretroukhine et al., C.R. Chim. 7 (2004).
[10] H. Harada, F. Nakamura, T. katon, Y. Ogata, J. Nucl. Sci. Technol. 32 (5) (1995) 395.
[11] E.G. Romanov, A tool to calculate nuclear transmutations in a neutron flux, Research Center for Atomic Reactor, IAEA 1404 code (2003).
[12] A.A. Kozar et al., Radiochemistry 44 (3) (2002) 284.

Available online at www.sciencedirect.com
ScienceDirect
Annals of Nuclear Energy 34 (2007) 703–706
annals of NUCLEAR ENERGY
www.elsevier.com/locate/anucene

Evaluation of technetium transmutation in the experimental fast reactor "JOYO"

Naïma Amrani *, Ahmed Boucenna

Physics Department, Faculty of Sciences, Farhet Abbas University, Setif 19000, Algeria

Received 20 December 2006; received in revised form 5 April 2007; accepted 7 April 2007
Available online 11 June 2007

Abstract

In this study the effectiveness of transmutation for the long lived fission product technetium-99 in the experimental fast reactor "JOYO" is evaluated. The cluster of reflector subassembly was replaced with a new moderator and target subassembly. The Beryllium metal is selected as moderator. The calculation of Ruthenium concentration evolution under irradiation was performed using ChainSolver 2.20 code. For 140 full power irradiation days, the transmutation yield is ~30% and 87% in the radial reflector and target subassembly, respectively. The approximation used for the transmutation calculation is the assumption that the influence of change in irradiated materials structures on the reactor operator mode characteristics is insignificant.
© 2007 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

The long lived fission products (LLFPs) generated in fission reactors will remain as radioactive wastes for a long period if they are not transmuted into stable or short-lived nuclides. One of the most important fission products in the nuclear spent fuel is the long-lived fission product technetium-99 (^{99}Tc) with half life of 2.1×10^5 years. Also it has the ability to migrate in any kind of material, including the storage glasses, due to its high geochemical mobility which could in a worst-case scenario lead to its release in the environment during long term storage (Gunsing et al., 2000). Technetium-99 is produced as a result of nuclear transformations in nuclear reactors with a large cumulative yield of 6.11% from the thermal neutron fission of ^{235}U (Matsumoto et al., 2003). After neutron capture the nucleus ^{100}Tc decays to the stable isotope ^{100}Ru with half life of 15.8 s. This makes ^{99}Tc a particularly interesting candidate for neutron transmutation and also for the production of artificial precious stable Ruthenium.

The duration of Technetium target irradiation has been calculated by different authors to be 10–50 years to achieve 50% burn up of ^{99}Tc in the majority of modern reactors and accelerators (Golfier et al., 1999). The experimental studies of ^{99}Tc transmutation were described by few research groups from Hanford Site (USA), Petten (Holland), CERN (Switzerland) and RIAR (Russia).

The objective of this study is the evaluation of the effectiveness of Technetium transmutation in experimental fast reactor JOYO considering its large capture cross section in the thermal and epithermal regions.

2. Experimental technetium transmutation

Nuclear transmutation can be induced by any particles or quanta able to penetrate nuclei and to interact with nucleons. The most effective nuclear process that can be used for transmutation of radiotoxic isotope ^{99}Tc is the neutron absorption (Gudowski, 2000).

$$^{99}\mathrm{Tc}(\mathrm{n},\gamma)^{100}\mathrm{Tc} \xrightarrow{T_{1/2}=15.8\ \mathrm{s}} {}^{100}\mathrm{Ru}$$

After capturing the neutron, ^{99}Tc becomes ^{100}Tc, usually in excited state which decays very fast-typically in few ns into the ^{100}Tc ground state, by emitting the so-called prompt

* Corresponding author.
E-mail address: naima2073@yahoo.fr (N. Amrani).

0306-4549/$ - see front matter © 2007 Elsevier Ltd. All rights reserved.
doi:10.1016/j.anucene.2007.04.002

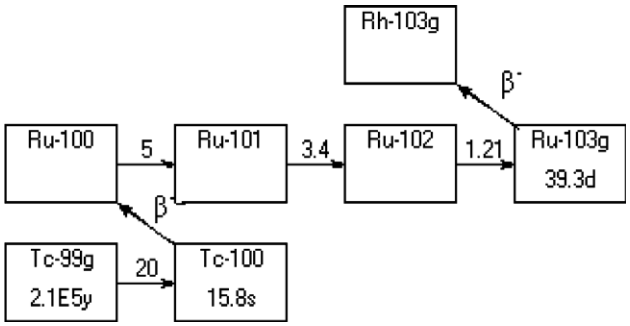


Fig. 1. Technetium transmutation chain under irradiation.

photons. The ^{100}Tc with half life of 15,8 s decays by β-transition into ^{100}Ru, about 7% of the cases into excited state of this isotope. These ^{100}Ru excited states decay very fast, in less than 1 ns, into the ^{100}Ru ground state, emitting the so-called delayed photons (Gonzalez, 1998). The Technetium transmutation diagram is given in Fig. 1.

The experimental studies of ^{99}Tc transmutation were described by a few research groups from Hanford Site (USA), Petten (Holland), CERN (Switzerland) and RIAR (Russia). A burn-up of 0.67% of Technetium-99 for 10 days has been achieved in Hanford fast reactor using a metal-hybrid moderated environment of the target (Wootan et al., 1991). The burn-up of 16–18% for 579.3 days of irradiation has been achieved in Petten high flux reactor which has a thermal flux of 2×10^{14} n/cm^2 s^{-1} (Warin et al., 2001). More than one hundred technetium targets – discs with a diameter of 6 mm and thickness of 0.3 mm – have been irradiated in high flux reactor SM-3 of the Research Institute of Atomic Reactors, Dimitrovgrad, Russia (RIAR) (Kozar et al., 2002). The thermal neutrons flux was 1.2×10^{15} cm^{-2} s^{-1}in the neutron trap inside the target at the beginning of the irradiation and increased to about 15% when Tc burn-up achieved 70%. The epithermal neutron flux in the neutron trap was 1.1×10^{14} n/cm^2 s^{-1} and changed insignificantly during irradiation. The transmutation rate achieved in the reactor SM-3 permits to convert 50% of Tc into Ru in 150 days (Peretroukhine, 2004).

3. Description of fast reactor "JOYO"

The experimental fast reactor JOYO was constructed as the first step in sodium cooled fast reactor with mixed oxide fuel (MOX) development in Japan. The JOYO reactor attained initial criticality in 1977 with the MK-I breeder core. From 1983 to 2000, JOYO was operated at 100 MW for thirty five operational cycles with the MK-II irradiation test core. In 2003 the JOYO reactor upgrade to the 140 MW MK-III core was completed to increase the irradiation testing capability of JOYO. The Main parameters of the MK-III core are tabulated in Table 1. The fuel region in the MK-III core is divided into two radial enrichment zones to flatten the neutron flux distribution. The active core is cylindrical and about 80 cm in equivalent to diameter and 50 cm in height. There is a

Table 1
Main core parameters of JOYO MK-III

Specification		Data
Rector thermal power	(MW)	140
Maximum number of driver fuel subassembly[a]		85
Equivalent core diameter	(cm)	80
Core high	(cm)	50
^{235}U enrichment	(wt%)	18
Pu content: Pu/(Pu + U)	(wt%)	23/30[b]
Fissile plutonium content: (^{239}Pu + ^{241}Pu)/(Pu + U)	(wt%)	16/21[b]
Maximum linear heat rate of fuel pin	(W/cm)	420
Maximum burn up of fuel (pin average)	(GWd/t)	90
Total neutron flux	(n/cm^2 s)	5.7×10^{15}
Fast neutron flux	(n/cm^2 s)	4.0×10^{15}
Number of control road in 3rd row		4
In 5th row		2
Reflector/shielding		SUS/B_4C
Primary coolant temperature (inlet/outlet)	(°C)	350/500
Operation period per cycle	(Day)	60
Operating cycle per year	(Cycle)	5

[a] Including number of irradiation test fuel assemblies.
[b] Inner core/outer core.

reflector region of stainless steel surrounding the core that is 25–30 cm thick. Shielding subassemblies with B_4C are loaded in the outer two rows of the reactor grid, replacing radial stainless steel reflector subassemblies (Ayoama, 2004).

The neutron environment for experiments in the Upgraded JOYO MK-III is divided into four regions, ranging from reactor core to the ex-vessel irradiation hole as follows:

1. Fuel region: high temperature and high flux region.
2. Reflector region: softer neutron spectrum and two orders lower neutron intensity than fuel region.
3. Upper core region: higher temperature and softer neutron spectrum than reflector region.
4. Ex-vessel region: lower energy neutron dominated.

The maximum fast neutron flux can be increased from 3.2×10^{15} n/cm^2 s to 4.0×10^{15} n/cm^2 s and consequently the reactor power is increased from 100 to 140 MW (Maeda, 2005).

4. Evaluation and calculation method

In this study we investigate the loading of a neutron moderator and target subassemblies in the reflector region with the objective of obtaining a high transmutation rate. The JOYO core design adopted for this study is shown in Fig. 2. The cluster of reflector subassemblies was replaced with a new moderator and target subassembly. The Beryllium metal is selected for the moderator in order to increase the Technetium transmutation rate and also due to its high performance for transmutation process than $^{11}B_4C$.

Six of the row 7, 8 and 9 reflector subassemblies were replaced with Beryllium moderated subassemblies. Its structure is similar to the other core components. The mod-

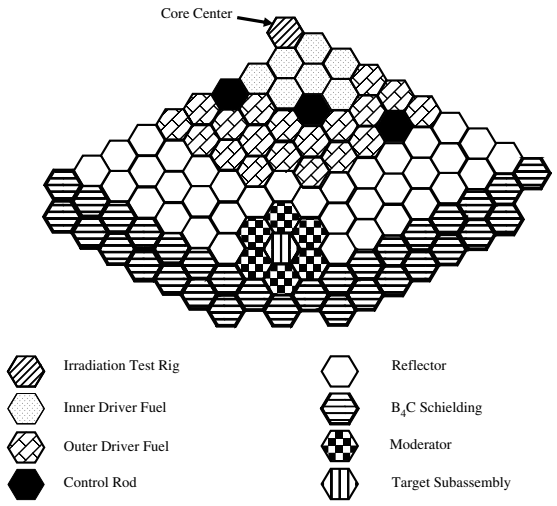


Fig. 2. Technetium target location in JOYO core.

erator subassemblies surrounded one test assembly that would contain ^{99}Tc.

This core configuration was based on the fact that the volume of a single subassembly is not larger enough to contain sufficient moderator material. The concept of separating moderator and target subassembly has an advantage for the Technetium irradiation process. The radial reflector between the driver fuel and the moderator subassembly works as a buffer that splits the thermal neutron region of the moderator subassembly from the fast neutron region of the nearly driver fuel subassembly. This avoids the thermal spike that may occur near the boundary between extremely different neutron spectrum regions.

The neutron flux in the radial reflector region and in the target subassemblies proposed with a Be fraction of 90% was calculated in 70 energy groups using the three dimensional diffusion code CITATION (Ayoama, 2005). The absolute value of the neutron flux was determined from the heat balance at 140 MW full power condition.

The evaluation of neutrons flux in the target and moderator subassemblies shows that the thermal and epithermal fluxes are increase considerably by using Beryllium as moderator (Table 2). The contribution of the epithermal flux to the Technetium transmutation process is important, because the main cross section peaks of the reaction ^{99}Tc $(n,\gamma)^{100}$Tc are in the energy interval 2–20 eV and its resonance integral is much higher than the thermal cross section (Harada et al., 1995).

Table 2
Neutron flux dependence on energy

Neutron flux (n/cm^2 s)	Total	Fast ($E > 0.1$ MeV)	Epithermal ($E < 1$ keV)	Thermal ($E < 0.312$ eV)
Radial reflector	8.71×10^{14}	4.33×10^{14}	8.6×10^{13}	0.0
Be (90%)	9.95×10^{14}	1.67×10^{14}	4.84×10^{14}	6.34×10^{13}

The Technetium transmutation rates in the reflector region and moderator – target subassemblies are evaluated with ChainSolver code used for transmutation calculations (Romanov, 2003), contrarily to the previous studies (Wootan et al., 1991; Warin et al., 2001; Kozar et al., 2002; Peretroukhine, 2004) where the transmutation rates were measured experimentally. The ChainSolver code is intended for fast transmutation simulation of samples during irradiation in nuclear reactors. The code calculates a nuclide density time evolution with burn up, decay and build-up. The depression of a thermal neutrons flux, resonance self-shielding of isotopes during an irradiation, and the irradiation schedule (the schedule of the reactor work and rearrangement of an irradiated target in various positions) are taken into account. These calculations are extremely tedious because at each stage of an irradiation the fast, epithermal and thermal fluxes, cross sections of reactions, time of an irradiation and structure of initial product should all be taken in consideration (Krivohatskii, 1969).

Such calculations allow one to define the chosen mode of an irradiation and to calculate the expected outputs for both products and inevitable impurities. The main approximation used in the calculation of transmutations is the assumption that the influence of changes in the irradiated material structure on characteristics of a reactor as a neutron source is insignificant.

5. Results and discussion

The Technetium mass loading is about 20 g. For 140 effective full power days, the transmutation rates in the radial reflector and in the target subassembly are estimated to be ~30% and ~87%, respectively. The evolution of Ruthenium concentration under irradiation in the experimental fast reactor JOYO is shown in Fig. 3. Based on the evaluation of Technetium transmutation, we conclude that the use of target subassembly and the Beryllium as moderator modify the spectrum of thermal and epithermal energy and increase considerably the transmutation rate (Fig. 4).

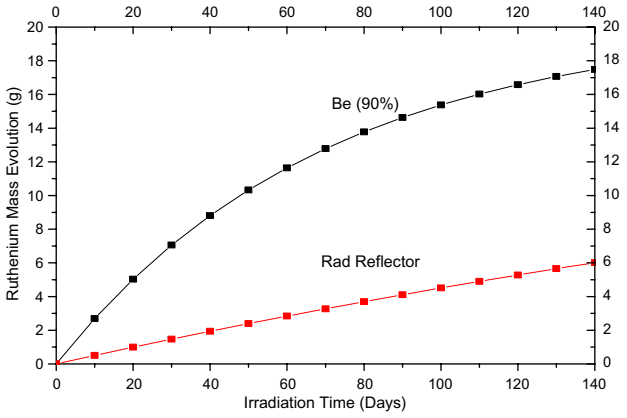


Fig. 3. Ruthenium mass evolution in JOYO during irradiation time.

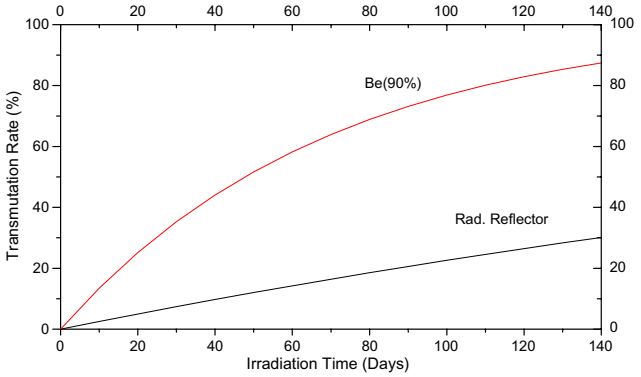


Fig. 4. Technetium transmutation yield in JOYO.

The introduction of the moderated subassembly into a reflector region affects the adjacent driver fuel subassemblies. However, the effects are within the design margin, or can be easily mitigated by fuel management strategies.

6. Conclusion

In this study the effectiveness of Technetium transmutation in the experimental fast reactor JOYO was evaluated. The cluster reflector subassembly of the experimental fast reactor "JOYO" was replaced with a new moderator and target subassembly. With this modification the "JOYO" reactor has the flexibility to tailor the neutron spectrum in the reflector region to accelerate technetium transmutation experiment. The Beryllium metal is selected as moderator due to its high performance for transmutation process than $^{11}B_4C$.

The calculation of Ruthenium concentration evolution under irradiation was performed using ChainSolver 2.20 code. For 140 full power irradiation days, the transmutation yields are ~30% and 80% in the radial reflector and target subassembly, respectively.

In future investigations, the impact of including a permanent moderator and target subassemblies in the neutron core calculations will be assessed, and the fuel subassembly and technetium transmutation rate calculations will be performed using the MCNP code.

References

Ayoama, T. et al., 2004. Nucl. Eng. Des. 228, 21.
Ayoama, T. et al., 2005. J. Nucl. Rad. 6 (3), 279.
Golfier, H., Bergeron, J., Lenain, R. parametrical analysis of ^{99}Tc and ^{129}I transmutation in reactor. In: Proc. Int. Conf. GLOBAL-99, Snow King Hole, Wyioming, August–September 1999.
Gonzalez, E. Experimental measurements of ^{99}Tc and ^{129}I transmutation in TARC at CERN. In: Fifth OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, SCK-CEN, Mol Belgium, 25–27 November, 1998.
Gudowski, W. 2000. Why accelerator-driven transmutation of wastes enables future nuclear power. In: Linac2000, XX International Linac Conference, Monterey, August 21–25.
Gunsing, F., Lepretre, A., Mounier, C., Raepsaet, C., 2000. Phys. Rev. C 61, 054608.
Harada, H., Nakamura, F., katon, T., Ogata, Y., 1995. J. Nucl. Sci. Technol. 32 (5), 395.
Kozar, A.A., Tarasov, V.A., Toporov, Yu.G., Peretroukhine, V.F., Radchenko, V.M., Karelin, E.A., Romanov, E.G. 2002. ^{99}Tc Transmutation in high flux reactor SM. In: Third Russian–Japanese Seminar on Technetium (Dubna, 23 June–1 July 2002), JINR, Dubna, 2002, Extended synopsis, p. 80.
Krivohatskii, A.S., Romanov, U.F. 1969. Poluchenie Transuranovyh i Aktinoidnyh Elementov pri Neitronnom obluchenii, Moscow, Atomizdat.
Maeda, Y. et al., 2005. Nucl. Tech. 150, 16.
Matsumoto, T., Igachira, M., Ohsaki, T., 2003. J. Nucl. Sci. Technol 40 (2), 61.
Peretroukhine, V. et al., 2004. C.R. Chimie 7.
Romanov, E.G. 2003. A tool to calculate nuclear transmutations in a neutron flux , Research Center for Atomic Reactor, I AEA 1404 code.
Warin, D., Conrad, R., Haas, D., Martin. P., Conings, R.J.M., Schram, R.P.C., Vanbenepe, G. 2001. 10 years EFTTRA. In: Proc. GLOBAL-2001, Paris, France, September 2001 Report # 204.
Wootan, D.W., Iordheim, D.P., Matsumoto, W.Y., 1991. Trans. Am. Nucl. Soc. 64, 125.

Conclusion

Parmi les déchets nucléaires présents dans le combustible usé se trouve le ^{99}Tc de période 2,1 10^5 ans. Il est présent avec une quantité significative par rapport aux autres déchets. Pour 100 atomes d'uranium qui fissionnent on a 6 atomes du technétium 99 qui sont produits. La transmutation du déchet nucléaire ^{99}Tc est réalisable mais dans certaines conditions et dans des installations bien spécifiques dédiées à cette tâche.

Dans la première étape de cette étude on a évalué le taux de transmutation du technétium 99 dans le réacteur de recherches thermique de Petten par le code de calcul ChainSolver. Les résultats expérimentaux obtenus sont en bon accord avec ceux obtenus dans les expériences EFTTRA-T1 et EFTTRA-T2. Le taux calculé est de 15.92 % pour une période d'irradiation à plein puissance de 579.3 jours pour un taux expérimental de 15 à 18 %. La transmutation du technétium dans les réacteurs thermiques même si elle est possible a un rendement faible. Dans la seconde étape le taux de transmutation du technétium-99 est calculé dans le réacteur expérimental à neutrons rapides JOYO. Le taux de transmutation évalué est de 87 % pour une période d'irradiation de 140 jours en pleine puissance. La transmutation du technétium -99 est donc plus favorable dans les réacteurs rapides que dans les réacteurs thermiques. Enfin nous avons proposé le concept de transmuter le technétium dans un réacteur conceptuel de recherches à neutrons rapide avec un taux de transmutation qui peut atteindre 83%. La tâche de transmutation peut devenir une tâche ordinaire pour ce type de réacteurs. La transmutation est la voie qu'il faut adopter et développer pour la transmutation du déchet nucléaire le Technétium -99 principalement dans les réacteurs rapides.

Références

[1]. Paul Reuss , *Précis de neutronique*, Ed. EDP Sciences, p.532, (2003).

[2]. CLEF du CEA – N°46- Printemps 2002

[3]. A.Y. HUC. L*e pétrole des profondeurs océaniques*. Pour la Science, 307, 44-53. Mai 2003.

[4]. BP Statistical review of world energy. June 2003.pp. 4-19

[5]. *Des sources naturelles aux enjeux de la production*, L'énergie n° 4. CEA. P.13-14, Sep 2002.

[6]. P. Papon, *L'ÉNERGIE À L'HEURE DES CHOIX*, éd. Belin « Pour la science », coll. « Regards », sept 2007

[7]. M. H. Labbe. *Le nucléaire à la croisée des chemins*. Institut français des relations internationales. La Documentation française. 1999.

[8]. J. bergeron, J. P. Schapira, A. Simon, J. B. Thomas. *La prospective technologique de la filière nucléaire*. Mission d'évaluation économique de la filière nucléaire, pp 8-12 , (2000)

[9]. J. Bouchard, J-P. Deffain et A. Gouchet , *Introduction au génie atomique*, éd. Presses de l'Ecole des Mines, coll. « Les Cours »- Juin 2007

[10]. E P. Alexanderson, *Fermi: New Age for Nuclear Power*, Amer Nuclear Society, Hardcover Book, 1981.

[11]. L. Patarin, *Le cycle du combustible nucléaire*, éd. EDP Sciences, coll. Génie atomique, 2002

[12]. J. D. Lempereur, Science & Vie n°888, septembre 1991

[13]. http://elementaire.lal.in2p3.fr/documents/numero1/nucleaire.pdf, consulté le : 22/06/2008

[14]. *Advanced Nuclear Fuel Cycles and Radioactive Waste Management*, OECD Publishing, 2006

[15]. Hubert Doubre , « *Les déchets de la fission nucléaire* », document de travail IN2P3/CNRS et Université Paris-Sud CSNSM, (2000)

[16. *Le cycle du combustible nucléaire* - livret CEA, 2002

[17]. *Les déchets du cycle électronucléaire*, clef n°46, CEA, Printemps 2002.

[18]. *De la mine au réacteur- fabriquer du combustible, mode d'emploi*, Les défis du CEA, N°94 • 9 Décembre – Janvier 2002 -

[19]. *Radioactivité et déchets radioactifs*. Collection les essentielles, ANDRA (2003).

[20]. *Les différents types de déchets nucléaires*, clefs N°46, CEA, printemps 2002

[21]. *Zoom sur le nucléaire : une énergie incontournable*, Perspective N°1, Avril 2007

[22]. T. Advocat, J.L. Dussossoy, *Vitrification des déchets radioactifs*, Techniques de l'Ingénieurs, BN3664, 2008

[23]. *La R-D en France sur la séparation et la transmutation des radionucléides à vie longue*, Une Expertise Internationale du Rapport du CEA de 2005, OCDE Publishing, 2006

[24]. D. Sylvain, H. Flocard, *Le Programme CNRS d' Analyse de Scénarios Electronucléaires* , Note Scénarios 20/12/07

[25]. M. COMETTO, *Standardisation des outils de calcul pour les ADS et leurs application à différents scénarios de transmutation des déchets*, Faculté Sciences de Base, École Polythechniques fédérale de Lausanne, Thèse N° 2714 (2003)

[26]. *Les perspectives de recherches après 2006 : Stratégie et Programme de recherches*, Rapport sur la gestion des déchets radioactifs de haute activité et à vie longue, Ministère délégué à l'Enseignement supérieur et à la Recherche Direction de la Technologie, Edition 2005

[27]. F. Massou et A. Gras, « *les politiques de gestion des déchets nucléaires dans le monde* » , Mémoire de troisième année du Corps des Mines, Ecole des Mines de Paris, 2005

[28]. *Le CEA et l'utilisation du plutonium*, la Gazette Nucléaire, N°135/136 juin 1994

[29]. *Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*: *Status and Assessment Report*", OECD/NEA Publishing 1999.

[30]. "*Safety Series No. 115-I: International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Source*", IAEA (International Atomic Energy Agency), Vienna, 1994.

[31]. La gestion du risque associé aux déchets radioactifs à haute activité et à vie longue, CEPN, Rapport N° 268, 2000

[32]. *Dose Coefficients for Intake of Radionuclides by Workers* ICRP Publication 68, Vol. 20, N°4, 1994.

[33]. *Age Dependence Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides:* Part 5-Compilation of Ingestion and Inhalation Dose Coefficients , ICRP Publication 76, Sept.1995

[34]. L. H. Baetslé, *Role and Influence of Partitioning and Transmutation on the Management of the Waste Streams*, OECD/NEA Report on P&T, N°3, August 1992.

[35]. F. Gunsing, A. Lepretre, C. Mounier and C. Raepsaet, *Physical Review C*, Vol 61, 054608.

[36]. N. Amrani and A. Boucenna; "*The impact of partitioning and transmutation on the risk assessment of a past nuclear fuel* " , Proc. VALDOR 2006, Stockholm, Sweden, 2006.

[37]. Waclaw Gudowski, *Transmutation of Nuclear Waste*, Nuclear Physics A663&664 (2000) 169c-182c.

[38]. B. Boullis, *les radionucléides à vie longue tries à volonté*, Clefs CEA, N°46, Printemps 2002.

[39]. *Qu'est-ce que la transmutation*, Clefs CEA, N°53, Hiver 2005-2006.

[40]. *Qu'est -ce qu'un ADS*, Clefs CEA, N°53, Hiver 2005-2006.

[41]. A. TCHISTIAKOV, *Etude du potentiel de transmutation et des caractéristiques de sûreté d'un système hybride:accélérateur - réacteur sous critique*, , Thèse de l'Université de Provence, 1998.

[42]. V. BERTHOU , *Contribution à une proposition d'un développement à long terme de l'énergie nucléaire: le concept TASSE (Thorium based Accelerator driven System with Simplified fuel cycle for long term Energy production*", Thèse de l'Université d'Evry, 2000.

[43]. M.Selvatores. *The back-end of the nuclear fuel cycle 1-the physics of transmutation for radioactive waste minimization*. The Abdu Salam Internatiomal centre for theoretical physics, Triest, Italy. (2001)

[44]. A. Zaetta, *Transmuter est techniquement possible*, Clefs CEA, N°46, Printemps 2002.

[45]. N. Amrani, *la transmutation du déchet nucléaire Technétium-99*, Mémoire de Magister, Faculté des sciences, Université UFAS, Algérie 2004

[46]. F. Carré et G. Mathonnière, *Du réacteur critique au système hybride sous critique: Les outils de la transmutation*, Clefs CEA, N°46, Printemps 2002.

[47]. *La sûreté du cycle de combustible*, Contrôle 162, Janvier 2005.

[48]. L. N. Salerno et al. *ALMR fuel cycle economics*, Nuclear engineering and design, vol. 136, n°1-2, pp. 205-209, (1992)

[49]. A. Billebaud et H. Nifenecker**,** *Réacteurs hybrides*, Techniques de l'Ingénieurs, BN3235, 2005

[50].M. Salvatores et al. *Defies et avantages possible de la séparation- transmutation*, Actualités, AEN Infos, N° 24.1, 2006

[51]. M. Salvatores et al. *Long lived radioactive waste transmutation and role of accelerator driven (Hybrid) systems*, Nuclear instruments & methods in physics research. Section A, vol. 414, n°1, pp. 5-20 (1998)

[52]. E.G.Romanov, V.A.Tarasov, F.Z.Vahetov, *ORIP_XXI COMPUTER PROGRAMS FOR ISOTOPE TRANSMUTATION SIMULATIONS*, American Nuclear Society Topical Meeting in Mathematics & Computations, Avignon, France, 2005

[53].Y. Chelet, *La radioactivité- Manuel d'initiation*, Ed. EDP sciences Nucléon, Coll. Profil, (2006)

[54]. *Equation de désintégration et de croissance radioactive*, **[en ligne]**.Disponible sur:«http://www-naweb.iaea.org/napc/ih/document/FRENCH%20VERSION/Vol_I/Vol%20I_CH6-frh.pdf » (consulté le13/05/2008)

[55]. J.Cetnar, G*eneral solution of Bateman equation for nuclear transmutation, A*nnals of Nuclear energy, Vol. 33, pp. 640-645, (2006)

[56]. A. Tsilanizara et P. Cuendet, *Simulation numérique de la radioactivité*, J. Chim. Phy. Vol.95, pp. 881-890, (1998).

[57]. E.G.Romanov, C*hainSolver : code for calculation of transmutation*, user manual, **[en ligne]**. Disponible sur : http://snow.prohosting.com/roeug/ChainSolver.htm (consulté le 27/06/2005)

[58]. E. G. Romanov, *A tool to calculate nuclear transmutations in a neutron flux* , Research Center for Atomic Reactor, I AEA 1404 code (2003).

[59]. Goldstain R. *Temperature-Dependent Intermediate Neutron Resonance Integrals*.- Nucl. Sci. Eng., 1972, v.48, pp.248-254

[60]. A. C. Hindmarsh, "*ODEPACK, a Systematized Collection of ODE Solvers," in Scientific Computing*, Ed. R. S. Stepleman et al, North-Holland, Amsterdam, pp. 55-64, 1983.

[61]. Linda R. Petzold, *Automatic Selection of Methods for Solving Stiff and Nonstiff Systems of Ordinary Differential Equations*, SIAM (Society for Industrial and Applied Mathematics) J. Sci. Stat. Somput. 4 , pp. 136-148, (1983)

[62]. P. N. Brown, G. D. Byrne and A. C. Hindmarsh, "*VODE: A Variable Coefficient ODE Solver*," SIAM J. Sci. Stat. Comput., 10, pp. 1038-1051. (1989)

[63]. J. Champion. *Les produits de fission*. Techniques de l'Ingénieurs. B3655,(1998)

[64]. V.F.Peretrukhin, S.I.German and A.A.Kozar. *Preparation of technetium metal for transmutation into Ruthenium.* Russian Journal of Inorganic Chemistry, Vol.47, N°5, (2002), p637

[65]. R.J.M. Konings et al**. «** *Transmutation of Americium and Technetium: Recent results of EFTTRA* **»,** The 5th international information exchange meeting on actinide and fission product transmutation, OECD/NEA, Belgium, (1998)

[66]. E.Gonzalez. *Experimental Measurements of ^{99}Tc and ^{129}I Transmutation in TARC at CERN*, The 5th international information exchange meeting on actinide and fission product transmutation, OECD/NEA, Belgium, (1998

[67]. *Operation and utilisation of the high flux reactor*, European Commission, Joint Research Centre, Annual Report, 2003

[68]. E. A. C. Neeft et al. « *The EFTTRA-T3 irradiation experiment on inert matrix fuels* », Journal of Nuclear Materials, Vol. 320, Issues 1-2, , pp. 106-116 (2003)

[69]. R. J. M. Konings et al. " *Transmutation of technetium : Results of the EFTTRA-T1 experiment* ", Journal of Nuclear Materials, Vol. 254, n°2-3, pp. 122-128 (1998)

[70]. R. J. M. Konings et R . Conrad. " *Transmutation of technetium : Results of the EFTTRA-T2 experiment* ", Journal of Nuclear Materials, Vol. 274, n°3, pp. 336-340 (1999)

[71]. *Uranium 2005- Ressources, Production et Demande*, OCDE Publication, (2006)

[72]. T. Aoyama, "*Core performance tests for the JOYO MK-III upgrade*" , Nuclear Engineering and Design Volume 237, Issue 4, February 2007, Pages 353-368

[73]. T. Aoyama et al. "*Transmutation of Technetium in the experimental fast reactor –JOYO-*", Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, Vol. 6, No.3, pp. 279-282, 2005.

[74]. N. Amrani and A. Boucenna, " *Evaluation of technetium transmutation in the experimental fast reactor "JOYO" Annals of Nuclear Energy, Volume 34, Issue 9, September 2007, Pages 703-706*

[75]. N. Amrani and A. Boucenna, " *Transmutation of Technetium into stable Ruthenium in High Flux conceptual Research Reactor*" *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, Volume 266, Issue 6, p. 926-928; Mars 2008*