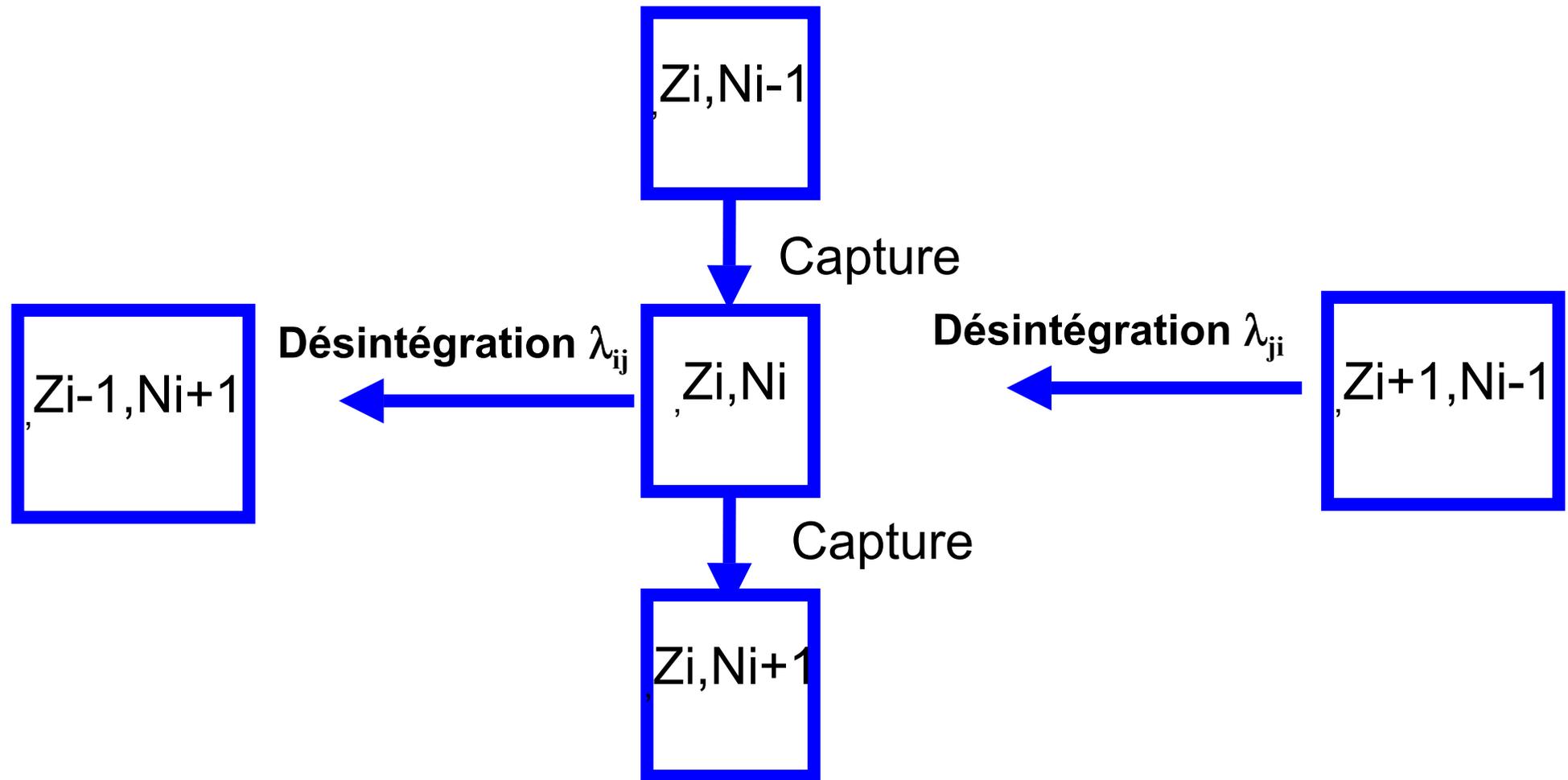


Evolution du combustible

H.Nifenecker

Modes de production d'un noyau lourd



Equations de Bateman

Variation du nombre de noyaux : création – disparition

Création = résultat d'une désintégration+création par fission+création par capture

Disparition = désintégration+absorption neutronique

$$\frac{dn_i(t)}{dt} = - \left(\sigma_i^T \varphi + \sum_j \lambda_{i,j} \right) n_i + \sum_{j \neq i} \left(\sigma_{j,i}^c \varphi + \lambda_{j,i} \right) n_j$$

Equilibre

Evolution d'un seul noyau initial k :

Injection d'un flux unité constant de ce noyau:

$$\frac{dn_i(t)}{dt} = \delta_{ik} + \sum_{j \neq i} (\sigma_{j \rightarrow i}^{(c)} \varphi + \lambda_{j \rightarrow i}) n_j(t) - \left(\sigma_i^a \varphi + \sum_j \lambda_{i \rightarrow j} \right) n_i(t)$$

A l'équilibre:
$$\frac{dn_i(t)}{dt} = 0$$

Solutions: N_i

$$0 = \delta_{ik} + \sum_{j \neq i} (\sigma_{j \rightarrow i}^{(c)} \varphi + \lambda_{j \rightarrow i}) N_j - \left(\sigma_i^a \varphi + \sum_j \lambda_{i \rightarrow j} \right) N_i$$

Stabilité du réacteur à long terme

Un modèle : un corps fissile (U235) et un corps absorbant (Bore)
On oublie le reste

$$1 = \frac{\eta n_{fis}(0) \sigma_{fis}}{n_B(0) \sigma_B + n_{fis}(0) \sigma_{fis}}$$

$$n_B(0) = n_{fis}(0) (\eta - 1) \frac{\sigma_{fis}}{\sigma_B}$$

$$1 = \frac{\eta n_{fis}(t) \sigma_{fis}}{n_B(t) \sigma_B + n_{fis}(t) \sigma_{fis}}$$

$$n_B(t) = f(t) \exp(-\sigma_B \varphi t)$$

$$f(t) = \exp(\varphi t (\sigma_B - \sigma_{fis}))$$

Exemple:

$$\sigma_F(U235, thermique) = 566 \text{ barns} \quad \sigma_F(B10, thermique) = 384 \text{ barns}$$

Temps caractéristique $\frac{1}{\varphi(\sigma_{fis} - \sigma_B)}$ = 20 mois $\varphi = 10^{14} \text{ n/cm}^2/\text{s}$

Modèle à 3 noyaux

Noyaux fertiles : n_{cap}

Noyaux fissiles : n_{fis}

Produits de fission: n_{fp}

On suppose d'abord que le nombre de noyaux fissiles est constant

Modèle à 3 noyaux

$$\frac{dn_{cap}}{dt} = -n_{cap} \sigma_{cap}^{(a)} \varphi + S(t)$$

$$\frac{dn_{fis}}{dt} = n_{cap} \sigma_{cap}^{(a)} \varphi - n_{fis} \sigma_{fis}^{(a)} \varphi$$

$$\frac{dn_{fp}}{dt} = n_{fis} \sigma_{fis}^{(f)} \varphi$$

Systemes à retraitement en ligne exemple:sels fondus

On veut une concentration de fertile constant

$$\frac{dn_{cap}}{dt} = -n_{cap} \sigma_{cap} \varphi + S(t) = 0$$

On extrait les produits de fission $n_{fp} = 0$

Evolution de la concentration de fissiles: $\frac{dn_{fis}}{dt} = n_{cap} \sigma_{cap} \varphi - n_{fis} \sigma_{fis} \varphi$

Etat stationnaire (régénération)

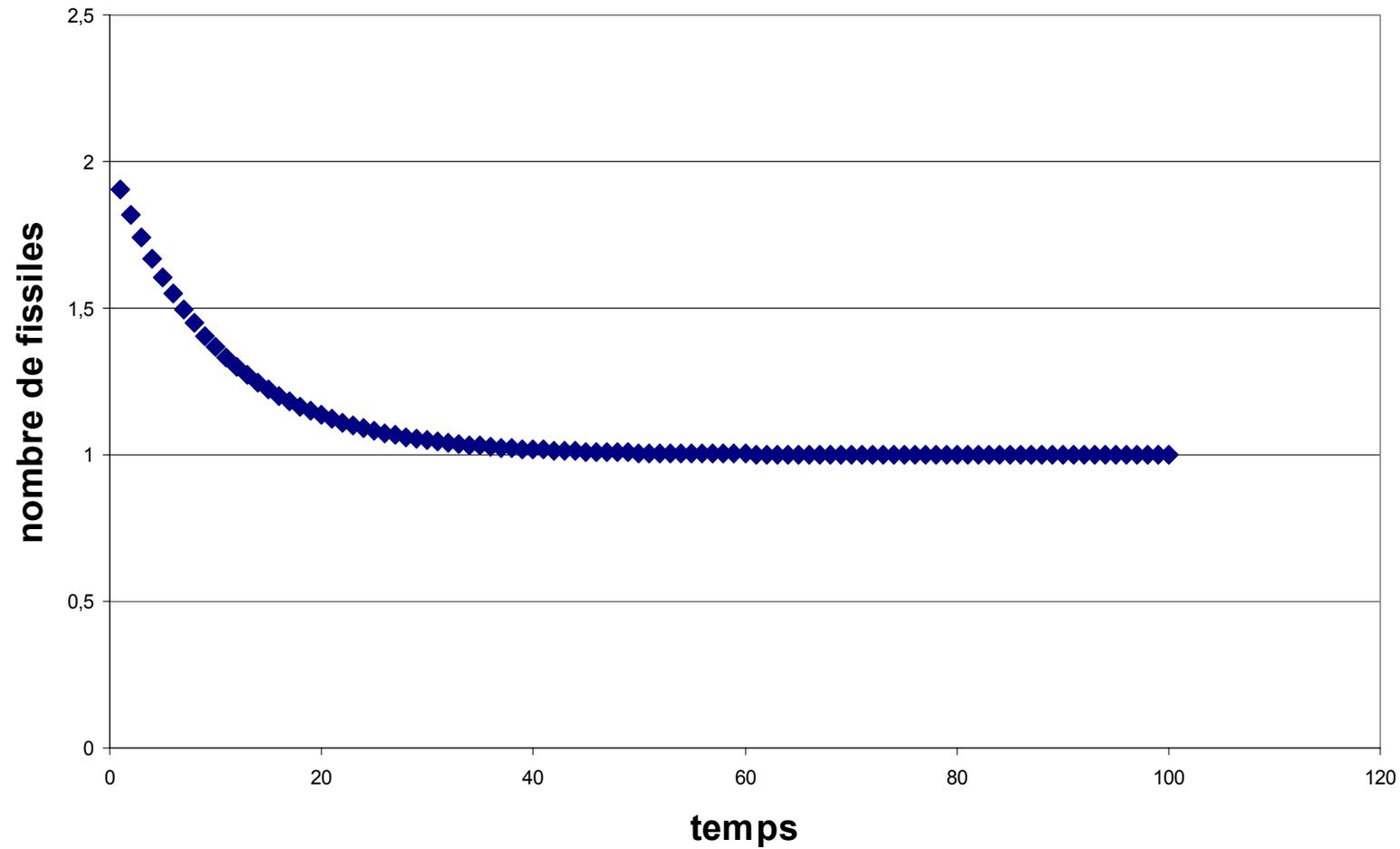
$$\frac{dn_{fis}}{dt} = n_{cap} \sigma_{cap} \varphi - n_{fis} \sigma_{fis} \varphi = 0 \quad \frac{n_{fis}^{(eq)}}{n_{cap}^{(eq)}} = \frac{\sigma_{cap}}{\sigma_{fis}}$$

Evolution vers
l'équilibre

$$n_{fis}(t) = n_{fis,eq} + n_{fis}(0) \exp\left(-\sigma_{fis}^{(a)} \varphi x\right) \left(1 - \frac{n_{fis,eq}}{n_{fis}(0)}\right)$$

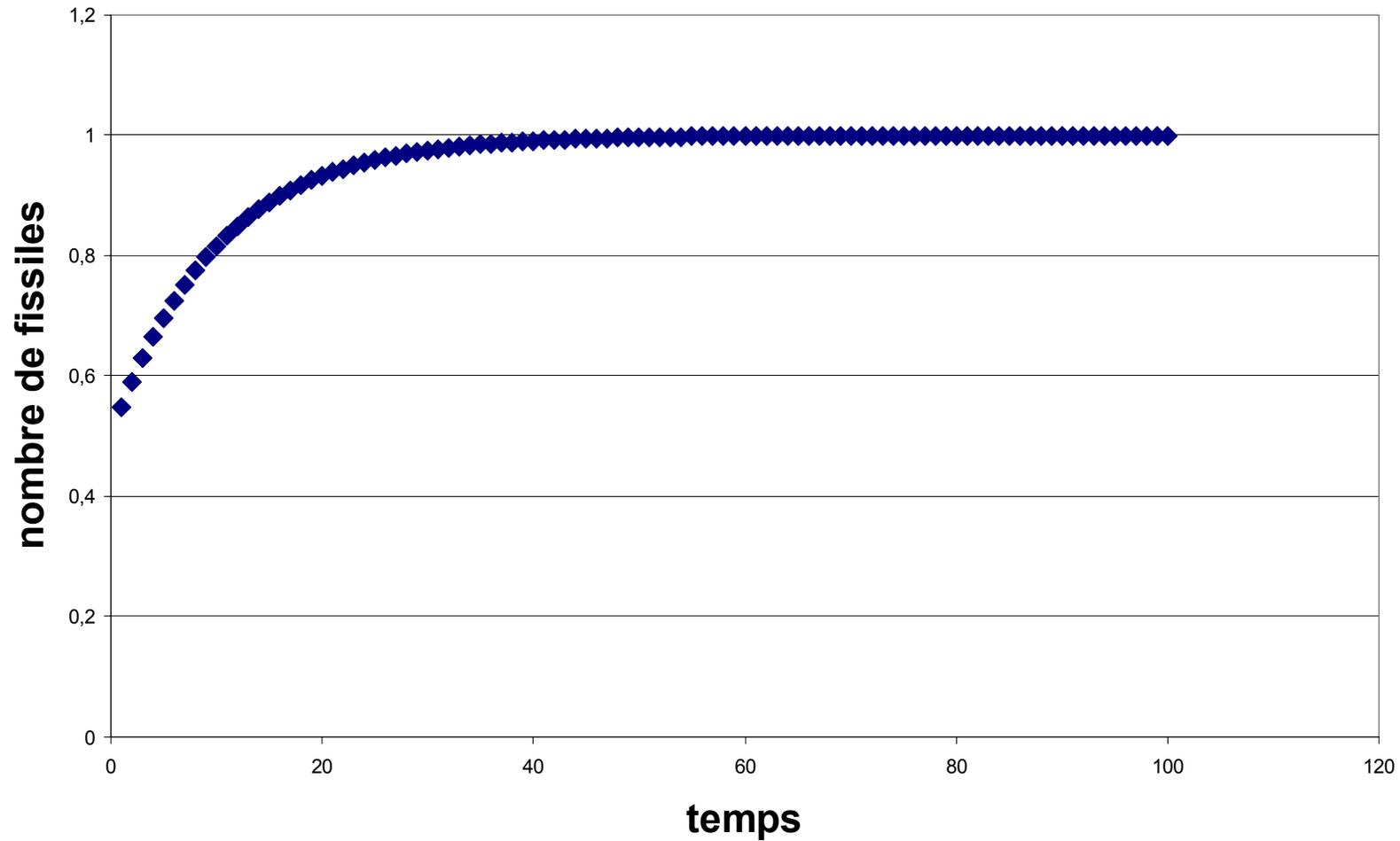
Evolution vers l'équilibre

Initial supérieur à équilibre



Evolution vers l'équilibre

inférieur à l'équilibre



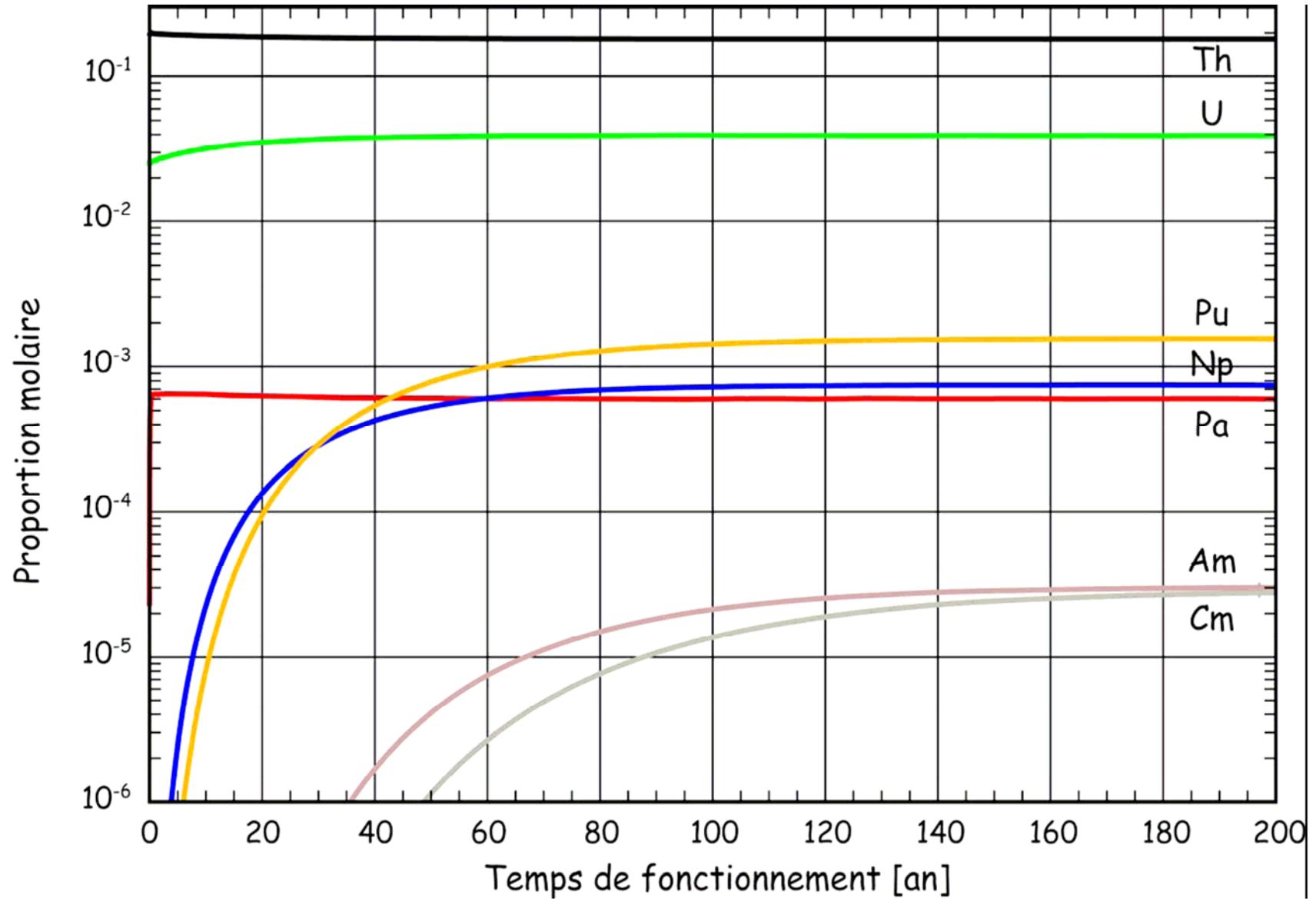
Condition initiale

$$k_{equ} = \frac{\eta}{2}$$

$$k_{ini} = \eta \frac{\frac{n_{fiss}}{n_{fis}^{eq}}}{\frac{n_{fiss}}{n_{fis}^{eq}} + 1} > 1 \quad \frac{n_{fiss}}{n_{fis}^{eq}} > \frac{1}{(\eta - 1)}$$

Si $k_{ini} < 1$ possibilité de réacteur hybride

Exemple d'évolution en MSR



Production d'actinides

Productions d'actinides

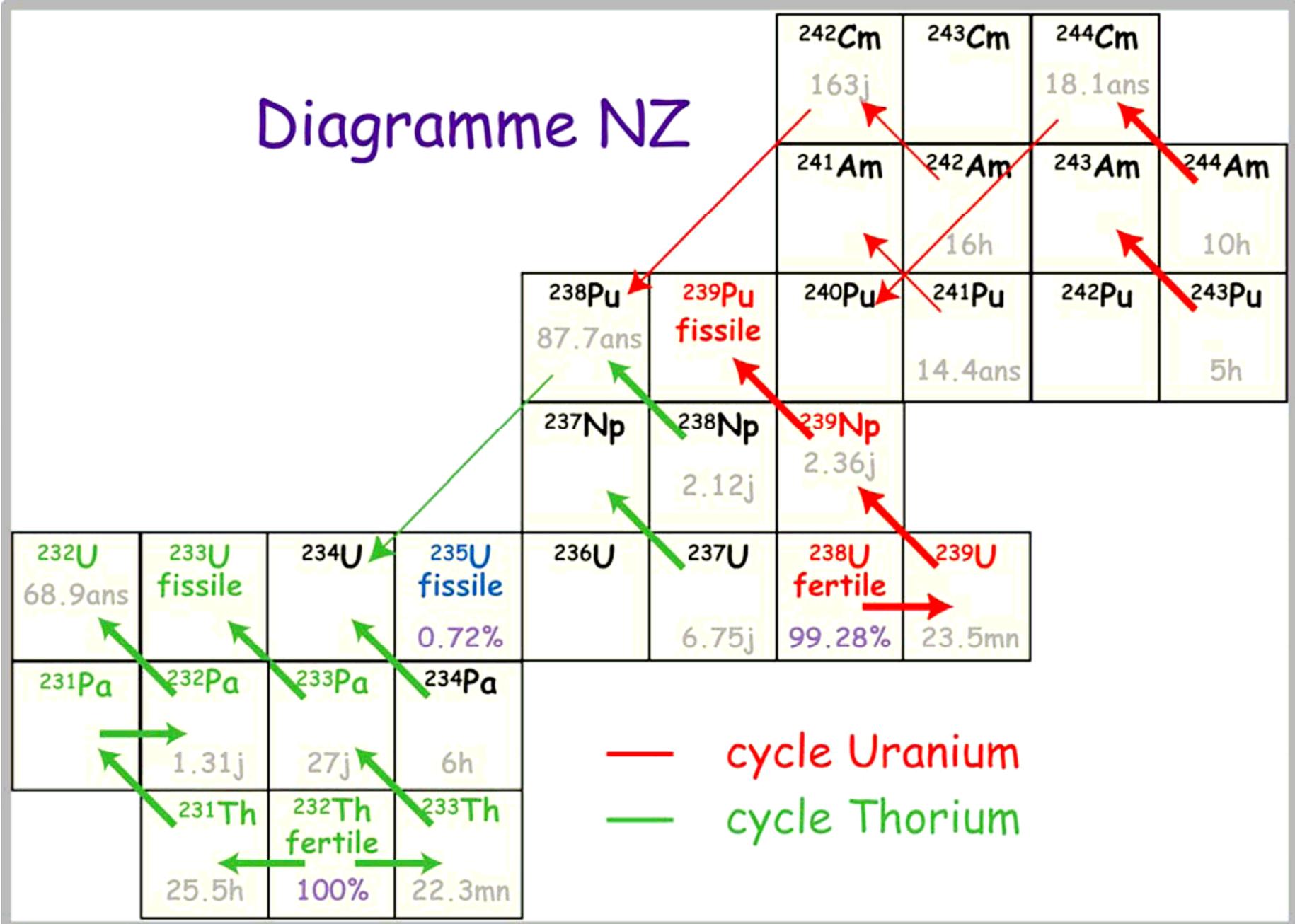
Inventaire (Kg/GWe) des transuraniens produits par un parc REP
Au déchargement(33MWj/tonne)

Isotope	cycle ouvert
^{239}Pu	104,65
^{240}Pu	47,74
^{241}Pu	25,55
^{242}Pu	18,83
^{241}Am	5,32
^{243}Am	4,41

Devenir des actinides

Désintégrations

Diagramme NZ



Radio-toxicités

- L'effet radiobiologique d'un radioélément est mesuré par sa radio-toxicité:

$$R \text{ (Sv)} = F_d \text{ (Sv / Bq)} \text{ Activité (Bq)}$$

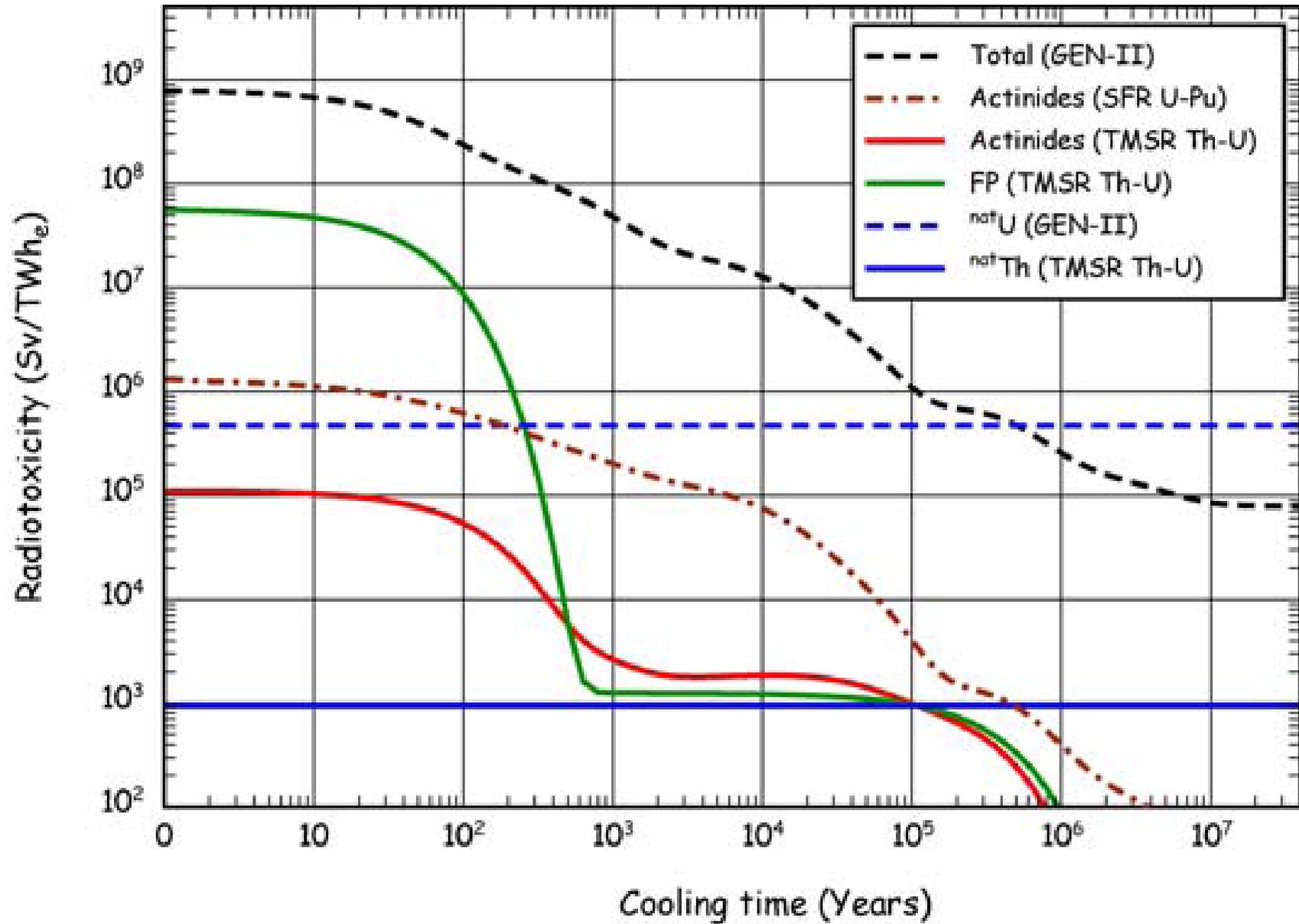
$$\text{Activité/Kg} = \frac{1.310^{19}}{T_{1/2}(\text{années})A(\text{g})}$$

- Les émetteurs Alpha sont beaucoup plus radio-toxiques que les émetteurs beta
- Les PF sont émetteurs beta
- Les Actinides sont surtout émetteurs alpha
- La fission réduit la radio-toxicité

Radio-toxicités

Noyau	Mode	F_d Sv/Bq	Activité Bq/Kg	Toxicité Sv/Kg
^{99}Tc	β	$0.78 \cdot 10^{-9}$	$6.3 \cdot 10^{11}$	$4.9 \cdot 10^2$
^{135}Cs	β	$0.20 \cdot 10^{-8}$	$4.2 \cdot 10^{10}$	$0.8 \cdot 10^2$
^{237}Np	α	$0.11 \cdot 10^{-6}$	$2.6 \cdot 10^{10}$	$0.3 \cdot 10^4$
^{233}U	α	$0.25 \cdot 10^{-6}$	$3.6 \cdot 10^{11}$	$0.9 \cdot 10^5$
^{238}Pu	α	$0.23 \cdot 10^{-6}$	$6.3 \cdot 10^{14}$	$1.4 \cdot 10^8$
^{239}Pu	α	$0.25 \cdot 10^{-6}$	$2.3 \cdot 10^{12}$	$0.6 \cdot 10^6$
^{240}Pu	α	$0.25 \cdot 10^{-6}$	$8.3 \cdot 10^{12}$	$2.1 \cdot 10^6$
^{241}Pu	β	$0.47 \cdot 10^{-8}$	$3.8 \cdot 10^{15}$	$1.8 \cdot 10^7$
^{242}Pu	α	$0.24 \cdot 10^{-6}$	$1.5 \cdot 10^{11}$	$0.4 \cdot 10^5$
^{241}Am	α	$0.20 \cdot 10^{-6}$	$1.3 \cdot 10^{14}$	$0.3 \cdot 10^8$
^{243}Am	α	$0.20 \cdot 10^{-6}$	$7.4 \cdot 10^{12}$	$1.5 \cdot 10^6$
^{243}Cm	α	$0.20 \cdot 10^{-6}$	$1.9 \cdot 10^{15}$	$0.4 \cdot 10^9$
^{244}Cm	α	$0.16 \cdot 10^{-6}$	$3.0 \cdot 10^{15}$	$0.5 \cdot 10^9$
^{245}Cm	α	$0.30 \cdot 10^{-6}$	$6.3 \cdot 10^{12}$	$1.9 \cdot 10^6$

Comparisons



Transmutation des Produits de Fission

- Temps de vie dans un flux de neutrons :

$$\tau = 1/\phi\sigma_{\text{cap}} \quad \phi = \text{flux de neutron}$$

σ_{cap} = section de capture

- Exemple: ^{99}Tc monoisotopique période 2.10^5 ans
section efficace 22 barns
période de disparition dans 10^{14} n/cm²/s: 14 ans
- Exemple: ^{135}Cs (133, 137) période 2.10^6 ans
Section efficace 14 barns
période de dsparition : 22 ans

transmutation pratique des PFVL

- PFVL Production par neutron

<i>Long Lived Fission Products</i>							
<i>Nucleus</i>	<i>^{79}Se</i>	<i>^{90}Zr</i>	<i>^{99}Tc</i>	<i>^{107}Pd</i>	<i>^{126}Sn</i>	<i>^{129}I</i>	<i>^{135}Cs</i>
<i>produced</i>	<i>0.09</i>	<i>1.2</i>	<i>1.4</i>	<i>0.35</i>	<i>0.035</i>	<i>0.30</i>	<i>0.60</i>
<i>FF/100n</i>							

- **Besoin en neutron:** 0.04 par n produit
- **Séparation Isotopique :** Zr, Cs

Incinération des Actinides

- Incinération par fission
- Production d'énergie associée à la fission:

A cause de captures plus d'un neutron nécessaire pour l'incinération. Mais plus de deux neutrons sont produits par fission:

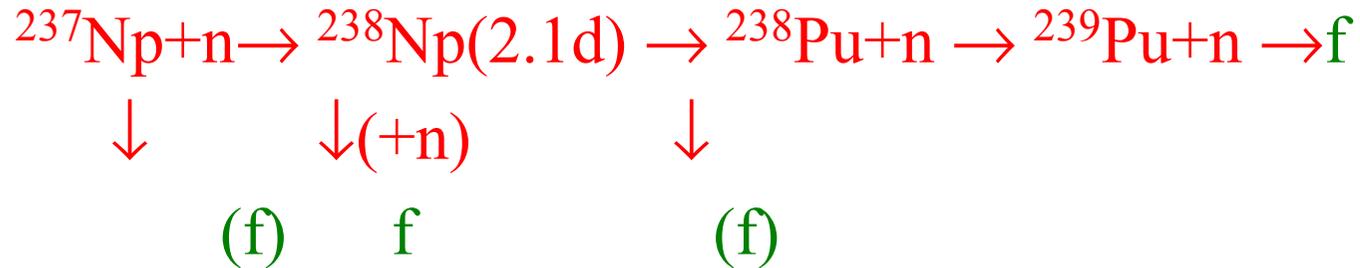
- Neutrons consommés par incinération

$$D = n_c - \nu_F$$

- La fission des AM réduit la radiotoxicité de façon importante

Incinération des Actinides

Exemple : ^{237}Np



Nombre de neutrons consommés :

$$D = 1 + (1 - \nu) \frac{\sigma_f^{(238\text{Np})} \varphi}{\sigma_f^{(238\text{Np})} \varphi + \lambda^{(238\text{Np})}} + \\
 (2 - \nu) \frac{\lambda^{(238\text{Np})} \varphi}{\sigma_f^{(238\text{Np})} \varphi + \lambda^{(238\text{Np})}}$$

Valeurs de D (Salvatores)

Neutron spectrum

Nuclide	Fast 10^{15} n/cm^2	PWR 10^{14} n/cm^2	Thermal 10^{16} n/cm^2
239Pu	-1.46	-0.67	-1.07
240Pu	-0.96	0.44	0.14
242Pu	-0.44	1.76	1.12
237Np	-0.59	1.12	-0.46
241Am	-0.62	1.12	-0.54
243Am	-0.60	0.82	0.21
Dtru (PWR)	-1.17	-0.05	-0.54
Dpu (PWR)	-1.1	-0.2	-0.53

Signification de D

- $D > 0$: poisons neutronique
- Les neutrons rapides sont plus efficace pour l'incinération. Conséquence de la fissionnabilité des actinides pou des neutrons de plus de 1 MeV.
- Les actinides mineurs sont de puissants poisons neutroniques pour des spectres de REP
- Les A.M. produisent des neutrons avec les spectres rapides

Incinération du Pu en REP

Productions d'actinides

Inventaire (Kg/GWe) des transuraniens produits par un parc REP

Isotope	cycle ouvert	1MOx	2MOx	asymptote
^{239}Pu	104,65	46,2	33,67	
^{240}Pu	47,74	36,68	23,1	
^{241}Pu	25,55	17,78	11,27	
^{242}Pu	18,83	18,76	12,32	
^{241}Am	5,32	11,34	14,189	30,8
^{243}Am	4,41	8,75	11,62	19,6
^{244}Cm	1,89	3,85	4,9	7,35
^{245}Cm	0,14	0,56	0,77	1,26

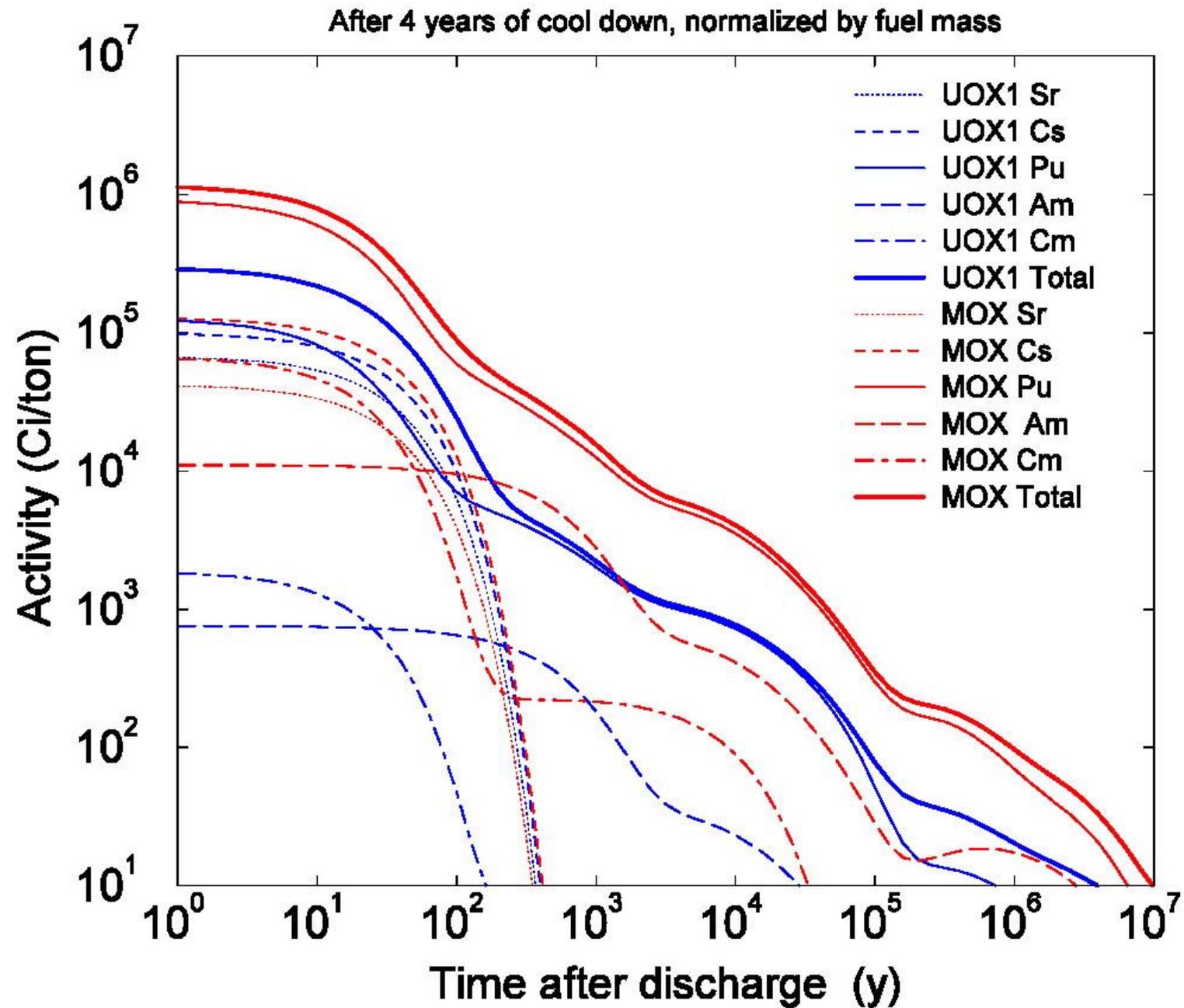
Recyclage multiple

- Hétérogène
 - Augmentation des ^{240}Pu et ^{242}Pu (poisons)
 - Augmentation de la concentration de PuO_2 à chaque recyclage
 - Limitation de la concentration de Pu à 14% (criticité)
 - Limitation à 3 recyclage
 - Production de AM.

Recyclage MOX une fois

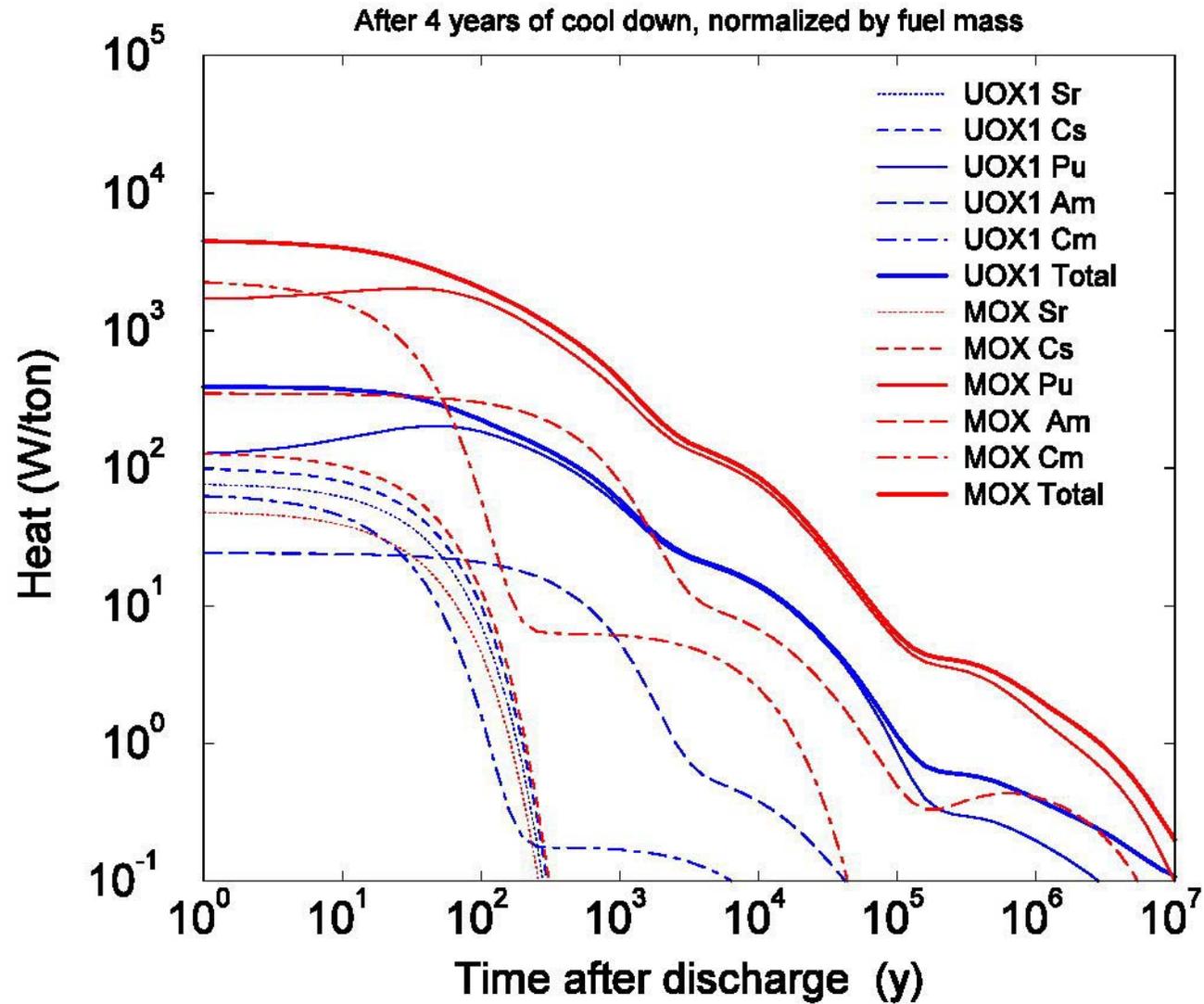
- Mélange UO_2 , PuO_2
- 1/3 des éléments combustibles Mox, 2/3 Uox (neutrons retardés)
- Régénération du Pu (à partir de U)
- Production de Pu lourd et AM
- Détérioration des propriétés neutroniques du Pu irradié.
- Pas de gain de radiotoxicité
- Intérêt économique

Activités

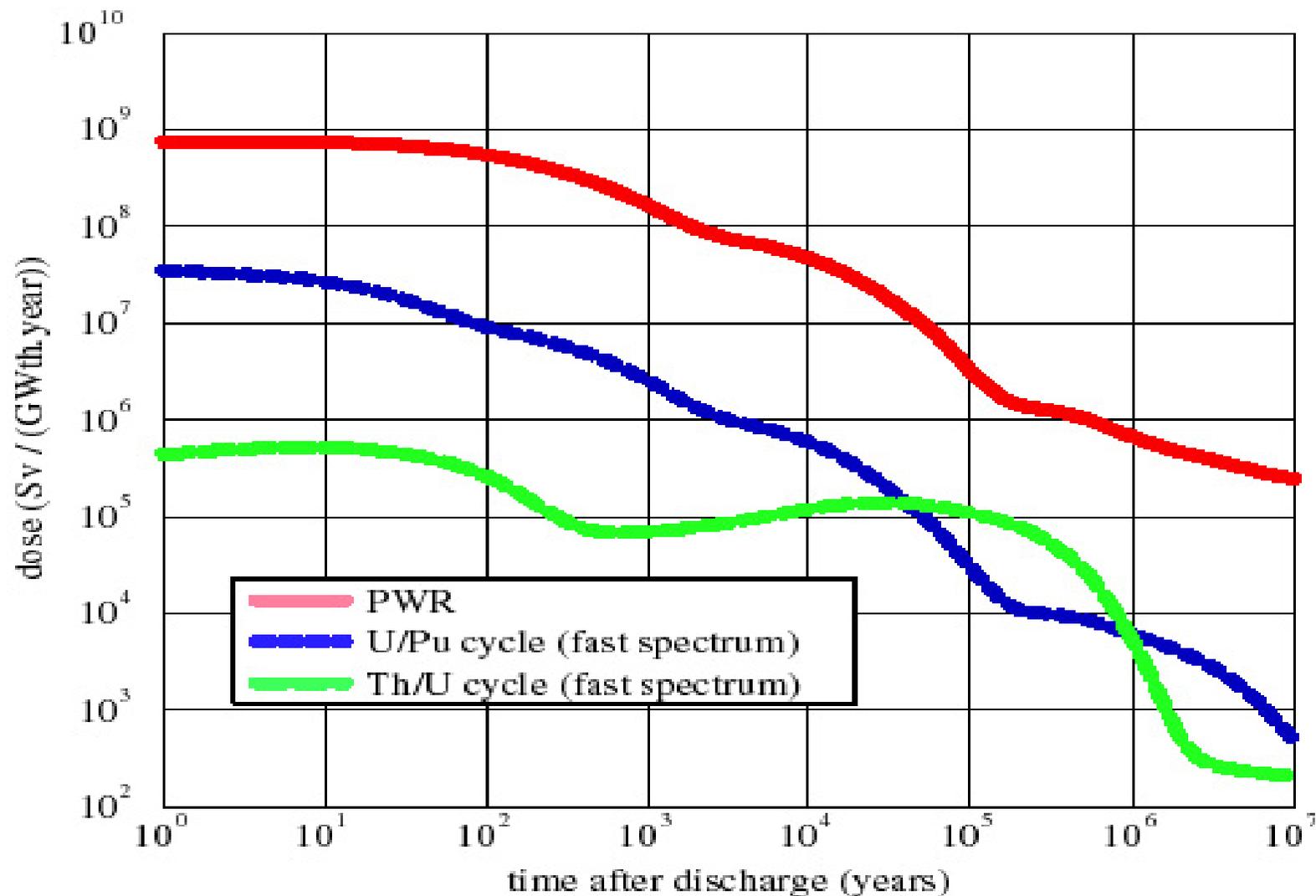


Chaleur

UOX1 and MOX



Minimiser la production de déchets



Principaux déchets

Surtout dans les combustibles usés

Principaux noyaux radioactifs :

- Produits de Fission : **radioactivité β**
 - Résultant de la capture de neutrons par
Les noyaux fissiles et fertiles: **actinides**
 - uraniums and plutonium
 - Actinides Mineurs : neptunium, américium, curium
- radioactivité alpha et beta**

Combustibles Irradiés

Production annuelle pour 1 PWR 1Gwe

- Uranium(5 milliards d'années) : 30 tonnes
- Plutonium(24000 ans): 0,3tonne
- $^{90}\text{Sr}+^{137}\text{Cs}$ (30 ans) : 50 kg
- LLFP (^{129}I , ^{99}Tc , ^{90}Zr ...) 60 kg

Par comparaison avec une centrale à charbon:

- 8 millions de tonnes de CO₂
- 4 tonnes d'Uranium
- 10 tonnes de Thorium

Retraitement actuel

- Pourquoi?

- Plutonium pour RNR
- Utilisation de l'investissement (La Hague)

- Comment?

- Extraction de Uranium et Plutonium

- Résultat

- MOx: Plutonium+U appauvri
- Gain de 10 % sur les besoins en uranium enrichi

- Stock HAVL/an (COGEMA, La Hague):

- Verres (PF+AM +pertes) 500 tonnes
- MOx Irradié : 160 tonnes