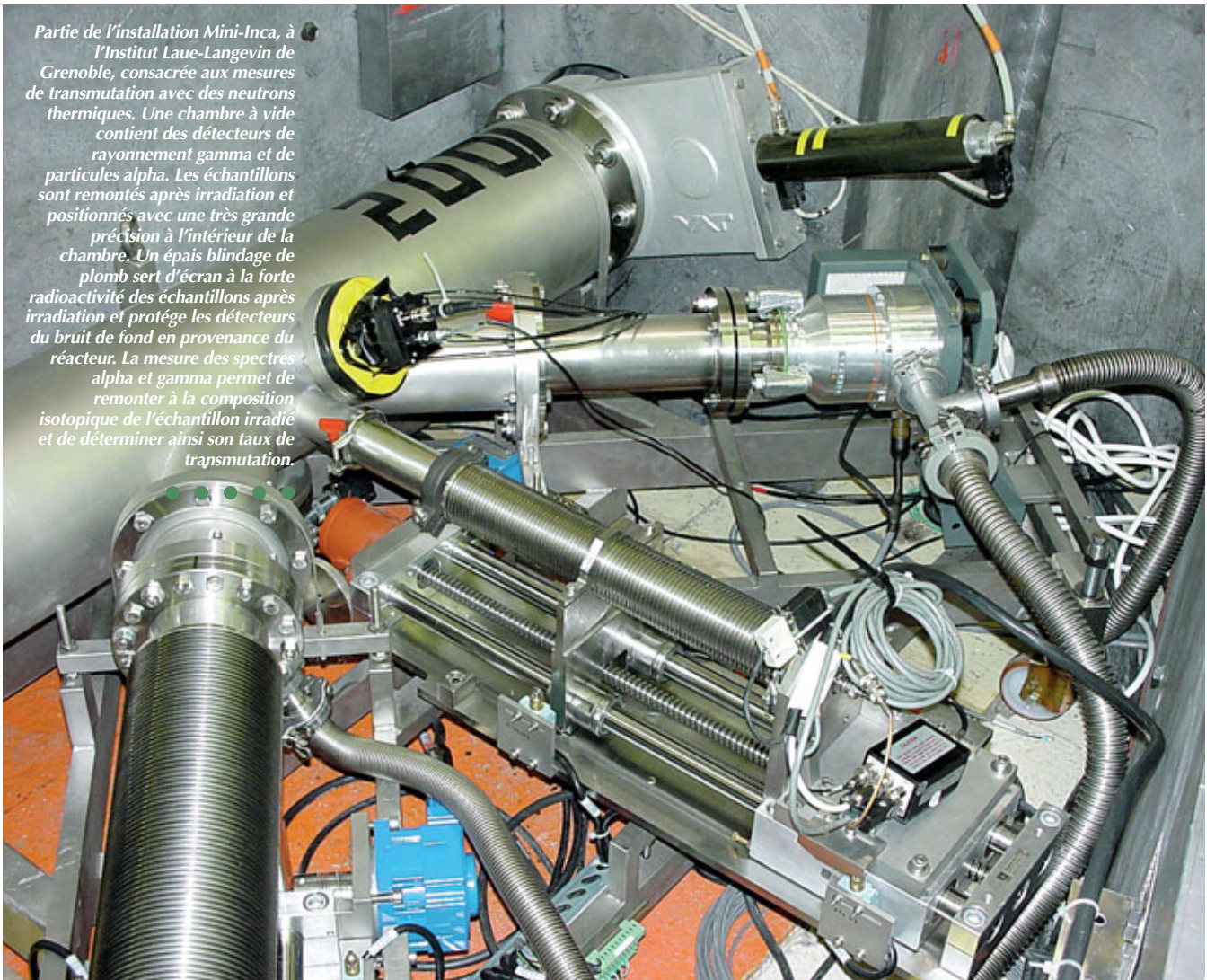


TRANSMUTER EST TECHNIQUEMENT POSSIBLE

Après avoir trié les déchets et en avoir extrait les éléments à vie longue qui représentent la plus grande part de l'inventaire radiotoxique ou qui montrent la plus grande mobilité chimique, la solution la plus séduisante est d'éliminer ces éléments par transmutation en les recyclant dans des réacteurs nucléaires. Le principe de cette opération est connu depuis longtemps. Encore fallait-il prouver que l'opération était techniquement réalisable dans des installations existantes ou spécialement créées à cet effet. C'est en partie chose faite et en partie en cours d'expérimentation, au niveau européen.

Partie de l'installation Mini-Inca, à l'Institut Laue-Langevin de Grenoble, consacrée aux mesures de transmutation avec des neutrons thermiques. Une chambre à vide contient des détecteurs de rayonnement gamma et de particules alpha. Les échantillons sont remontés après irradiation et positionnés avec une très grande précision à l'intérieur de la chambre. Un épais blindage de plomb sert d'écran à la forte radioactivité des échantillons après irradiation et protège les détecteurs du bruit de fond en provenance du réacteur. La mesure des spectres alpha et gamma permet de remonter à la composition isotopique de l'échantillon irradié et de déterminer ainsi son taux de transmutation.



Les bases physiques de la transmutation

Le principe de la **transmutation** appliquée au traitement des déchets nucléaires consiste à modifier les noyaux d'éléments **à vie longue** afin de transformer les **isotopes** concernés en des corps stables ou à durée de vie nettement plus courte ou présentant une **radiotoxicité** moindre (encadré C, **La radio-**

toxicité du combustible usé). Potentiellement capable de réduire significativement la quantité et la nocivité à long terme des déchets ultimes produits par l'énergie nucléaire, l'opération constitue l'une des voies importantes des recherches sur la gestion des déchets à haute **activité** et à vie longue des réacteurs actuels (voir *Les recherches pour la gestion des déchets nucléaires*, encadré 1). Mais comment mettre



Concept de réacteur hybride capable de transmuter des déchets nucléaires (vue agrandie du cœur en médaillon).



CEA

en œuvre pratiquement cette pierre philosophale ? En bombardant les noyaux "cibles" par des particules élémentaires. Plusieurs voies ont été explorées, utilisant respectivement les photons, les protons et les neutrons.

L'utilisation de photons : un rendement trop faible

En bombardant une cible avec un faisceau d'électrons fournis par un accélérateur, il est possible d'obtenir par *Bremsstrahlung* ⁽¹⁾ des photons qui peuvent donner lieu à des réactions (γ, xn), c'est-à-dire que sous l'effet du rayonnement **gamma** incident x neutrons sont éjectés du noyau. Appliquées à des corps trop riches en neutrons et de ce fait instables comme certains **produits de fission** (strontium 90, césium 137...), ces réactions aboutissent en général à des corps stables. Néanmoins, compte tenu de leur rendement très faible et du très haut niveau de courant d'électrons nécessaire, qui reste aujourd'hui hors d'atteinte, cette voie n'est pas retenue.

(1) En allemand : rayonnement de freinage. Rayonnement photonique de haute énergie généré par des particules (électrons) accélérées (ou décélérées) qui décrivent une trajectoire circulaire en émettant tangentiellement des photons de freinage dont les plus énergétiques sont préférentiellement émis dans l'axe du faisceau d'électrons.

(2) Force de répulsion qui s'oppose au rapprochement de charges électriques de même signe.

Une solution : protons et spallation

L'interaction noyau-proton induit une réaction complexe, appelée **spallation** (encadré D, *La spallation*), qui conduit à la fragmentation du noyau et à la libération d'un certain nombre de particules, dont des neutrons de haute énergie. La transmutation par interaction directe des protons n'est pas rentable, car elle nécessite pour surmonter la barrière coulombienne ⁽²⁾ des protons de très haute énergie (1 à 2 GeV) dont l'énergie de pro-



Porte-échantillon en titane (environ 7 X 7 cm), utilisé dans le cadre de l'expérience Mini-Inca pour l'irradiation, dans le réacteur à haut flux de l'ILL à Grenoble, de l'américium contenu dans deux ampoules de quartz placées à l'intérieur des deux tubes en graphite (en noir) latéraux. Un échantillon de fer naturel est disposé à l'intérieur du tube central afin de mesurer le flux neutronique intégré pendant l'irradiation.

ILL

duction est supérieure à celle qui est récupérée lors du processus qui a conduit à la génération du déchet... En revanche, la transmutation indirecte, en utilisant les neutrons de haute énergie (produits au nombre d'une trentaine environ, suivant la nature de la cible et l'énergie du proton incident) permet d'améliorer très sensiblement les performances. C'est cette voie qui est à la base des concepts des réacteurs dits hybrides couplant un cœur **sous-critique** et un accélérateur de protons de haute intensité (encadré E, *Qu'est-ce qu'un système hybride ?*).

Le meilleur choix : les neutrons

De par l'absence de charge électrique, le neutron est de loin la particule qui satisfait au mieux les critères recherchés. Il est d'autre part "naturellement" présent et disponible en grande quantité dans les réacteurs nucléaires où les physiciens l'utilisent pour induire des réactions de **fission** et produire ainsi de l'énergie. Il est à ce titre remarquable de constater que la meilleure voie de **recyclage** des déchets est de les réinjecter dans l'installation qui peu ou prou les a créés... L'ingrédient essentiel de cette réussite de la fission nucléaire est la connaissance des probabilités d'interaction du

neutron avec la matière, appelées **sections efficaces** neutroniques. Leurs valeurs varient énormément d'un noyau à l'autre et, plus encore, d'un isotope à l'autre pour un même noyau. Un grand effort international a permis d'en constituer des bibliothèques très complètes grâce aux mesures réalisées dans de nombreuses installations expérimentales. Il est aujourd'hui nécessaire de compléter et d'affiner ces données nucléaires de base afin d'optimiser les performances des systèmes destinés à réaliser la transmutation, en particulier des plus innovants d'entre eux (encadré 1).

Capture et fission

L'interaction neutron-noyau conduit principalement à deux types de réactions, la réaction de **capture** du neutron par le noyau cible et la réaction de fission du noyau. Pour les produits de fission, la première permet en général de générer, après transformations successives, un corps stable. L'exemple typique est celui du technétium 99 (210 000 ans de **période**) qui par capture neutronique se transforme en technétium 100 de période radioactive très courte (15,8 secondes) aboutissant par **désintégration** β^- au ruthénium 100 stable (encadré 2). Pour les **actinides**

Le besoin de données de base pour la transmutation

1

À partir des années quatre-vingt, au fur et à mesure que les données pour les noyaux les plus importants pour le nucléaire civil et militaire étaient de mieux en mieux connues, les installations expérimentales qui avaient permis de les obtenir ont été fermées et les programmes visant à les évaluer, réduits.

Aujourd'hui, de nouveaux projets sont en cours, tant au niveau international que français, afin d'obtenir des données nucléaires capables de garantir l'optimisation des performances des systèmes qui seraient utilisés pour la **transmutation** des déchets nucléaires. Les caractéristiques neutroniques de tels systèmes seraient en effet fortement influencées par la présence massive, dans le **combustible** neuf ou en cours de combustion, d'**isotopes** qui ne jouent qu'un rôle marginal dans le cycle du combustible classique. Or si pour la plupart d'entre eux les données disponibles, résultat d'évaluations théoriques souvent menées sans validation expérimentale, sont suffisamment fiables pour garantir en toute sécurité le comportement des **réacteurs thermiques** et **rapides** existants, ce n'est pas le cas pour ces nouveaux systèmes "transmutateurs".

Deux types de mesures de **sections efficaces** sont possibles pour les expérimentations : différentielles et intégrales⁽¹⁾.

Pour les premières, qui demandent plusieurs semaines et des échantillons isotopiquement purs en quantité importante (entre 1 milligramme et plusieurs dizaines de grammes), le CEA utilise la meilleure installation au monde au Centre commun de recherche de l'Union européenne à Geel (Belgique). Les sections efficaces neutroniques du technétium 99 (encadré 2) et du neptunium 237 y ont été mesurées, celle de l'iode 129 le sera bientôt. Un nouveau projet européen, n-TOF, en cours de réalisation au CERN à Genève (Suisse), permettra de compléter ces études par une intensité de faisceau accrue. Les mesures sur des isotopes **radioactifs** seront ainsi plus faciles. Plusieurs laboratoires français, dont le CEA, attendaient les premières mesures pour la fin de 2001.

En ce qui concerne les mesures intégrales, qui restent les plus utilisées et sont nécessaires lorsque l'échantillon n'est pas disponible en quantité suffisante, deux projets sont en cours au CEA : l'expérience Profil-2 auprès du réacteur "rapide" Phénix à Marcoule et le projet Mini-Inca au réacteur à haut flux de l'Institut Laue-Langevin (ILL) de Grenoble. Cette dernière expé-

rience permettra de moduler la forme du spectre neutronique en éloignant l'échantillon de l'élément de combustible et de rechercher la meilleure distribution en énergie pour obtenir la transmutation de chaque isotope. Et donc de déterminer les conditions idéales de transmutation des isotopes qui contribuent le plus à la radio-toxicité des déchets.

Un grand nombre d'isotopes de l'uranium, du plutonium, du thorium, de l'américium, du curium, du neptunium ainsi que de plusieurs produits de fission doivent ainsi être étudiés dans des flux neutroniques rapides, **épi-thermiques** et thermiques. Ces expériences fourniront non seulement des valeurs de sections efficaces, mais aussi les taux de transmutation dans des spectres similaires à ceux des systèmes de transmutation. La comparaison entre ces mesures et les calculs menés à partir des bibliothèques de données disponibles permettra de compléter les connaissances sur la transmutation.

Gabriele Fioni

Département d'astrophysique,
de physique des particules,
de physique nucléaire
et d'instrumentation associée
Direction des sciences de la matière
CEA/Saclay

(1) voir La mesure des sections efficaces dans *Clefs CEA* n° 45, p. 16.

Le technétium 99, un produit de fission particulièrement apte à la transmutation

Parmi les six éléments à transmuter en priorité figurent trois produits de fission, dont l'isotope technétium 99 (^{99}Tc), généré en grande quantité dans les réacteurs nucléaires. Cet émetteur de rayonnement **bêta moins** (β^-) a de plus une longue **période** (210 000 ans). Après **capture** d'un neutron par le ^{99}Tc , donnant du ^{100}Tc , et désexcitation instantanée du **noyau composé** par émission de rayonnement **gamma** (γ), le ^{100}Tc décroît par émission β^- avec une période de 15,8 s vers le ruthénium 100 (^{100}Ru) qui est stable. Le technétium est donc un bon candidat pour la **transmutation** (figure A). Les connaissances des **sections efficaces** du ^{99}Tc étant insuffisantes, au moment du démarrage des recherches prévues par la loi de 1991, pour en modéliser de façon fiable l'évolution d'une grande quantité dans un futur système **incinérateur** de déchets nucléaires, un programme de mesure a été entrepris pour déterminer ses sections efficaces dans le domaine des **résonances**.

Après de la source de neutrons de l'accélérateur linéaire Gelina à Geel, en Belgique, une équipe du CEA a effectué des mesures de capture et de trans-

mission sur plusieurs échantillons de ^{99}Tc . Le faisceau d'électrons issu de l'accélérateur frappe une cible d'uranium et le rayonnement γ de freinage des électrons crée des neutrons selon des réactions (γ, n) et (γ, f) . Ces neutrons sont ensuite **modérés** par de l'eau dans deux conteneurs situés en-dessous et au-dessus de l'uranium. Plus de 600 résonances ont été analysées jusqu'à 10 000 **électronvolts** (eV) et la section efficace moyenne a été mesurée jusqu'à

100 keV (figure B). Ces mesures ont considérablement amélioré la connaissance de cet isotope.

Frank Gusing

Département d'astrophysique,
de physique des particules,
de physique nucléaire
et d'instrumentation associée
Direction des sciences de la matière
CEA/Saclay

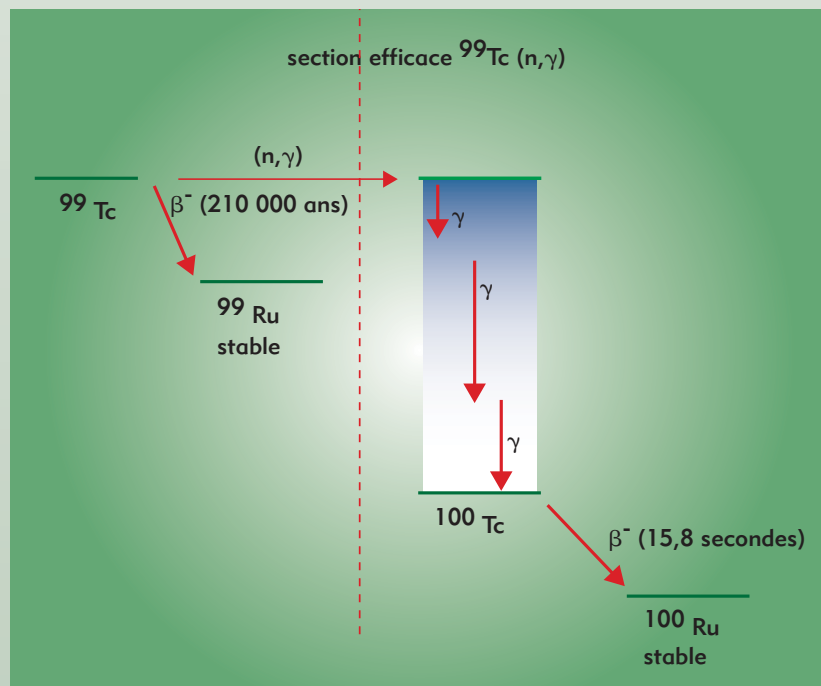


Figure A. Principe de la transmutation du technétium 99.

L'accélérateur linéaire d'électrons Gelina du Centre commun de recherche de l'union européenne à Geel (Belgique), une des plus puissantes sources de neutrons au monde pour la détermination des sections efficaces indispensables pour l'étude de la transmutation.



IRMM-Geel

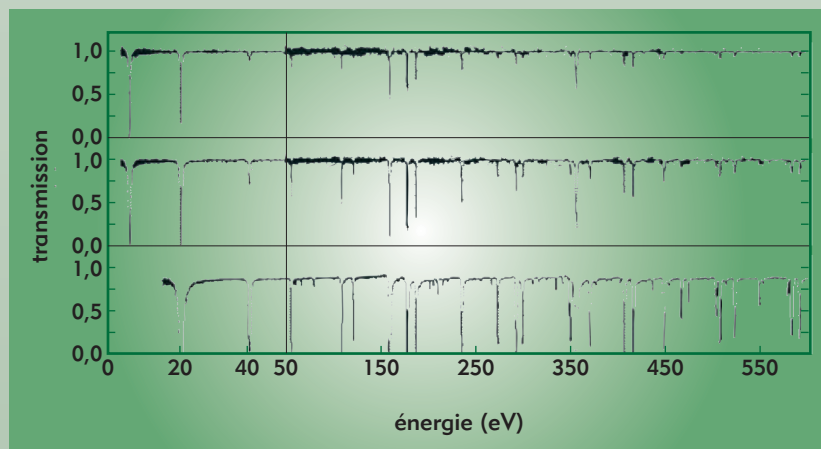


Figure B. Transmission de neutrons à travers des cibles de ^{99}Tc de trois épaisseurs différentes. Chaque creux correspond à un état propre du noyau ^{100}Tc situé au-dessus de son état fondamental à une énergie de 6,8 MeV (énergie de liaison du neutron dans le noyau composé) plus l'énergie cinétique du neutron indiquée en abscisse. La forme des creux est donc décrite par les paramètres de résonance et par l'élargissement dû à l'effet Doppler et la résolution.

La transmutation par neutrons thermiques de l'actinide mineur américium 241 est-elle réalisable ?

Dans le cadre de leurs recherches sur la **transmutation** des déchets à **vie longue**, des équipes des directions des sciences de la matière et de l'énergie nucléaire du CEA et de l'Institut Laue-Langevin (ILL) de Grenoble se sont associées pour résoudre, enfin, un problème majeur dans la chaîne de réactions nucléaires intervenant dans la transmutation de l'américium 241 (^{241}Am) induite par des **neutrons thermiques** d'énergie 0,025 eV. Cet **actinide mineur** est l'un des trois éléments à traiter en priorité après dissolution du **combustible** usé : c'est le plus important en quantité et aussi celui dont la **radiotoxicité** prédomine jusqu'à 2000 ans (sa période est de 432 ans), le neptunium provenant de sa **décroissance** prenant le relais à long terme, après 200000 ans. Il était jusqu'alors impossible de savoir si la transmutation était réalisable avec des neutrons thermiques. Dans sa chaîne de transmutation, la **section efficace** de **capture** de l'état fondamental de l'américium 242 ($^{242\text{gs}}\text{Am}$, gs signifiant *ground state*) présente des désaccords d'un facteur 20 selon les bases de données nucléaires les plus utilisées. La base américaine ENDF-B/VI indique une valeur de 253 barns tandis que son homologue européenne JEF-2.2 cite 5500 barns. Ces valeurs rendent les résultats des simulations de systèmes de transmutation par neutrons thermiques tout à

fait contradictoires. Dans le premier cas, la transmutation est théoriquement possible car la **fission** du $^{242\text{gs}}\text{Am}$ l'emporte sur la capture donnant du ^{243}Am , un **isotope non fissile** qui demanderait donc une capture supplémentaire pour être transmuté par fission. Dans le deuxième cas, elle n'est pas faisable car elle exige un apport de neutrons extérieurs trop important. Il faut néanmoins souligner que cette différence, qui a des conséquences cruciales sur la neutronique d'un système d'**incinération** à haut flux de neutrons thermiques ($\approx 2 \cdot 10^{15}$ n/s/cm²), n'a quasiment aucun effet dans un réacteur conventionnel, où le $^{242\text{gs}}\text{Am}$ reste en concentration très faible en raison du bas flux neutronique et de l'absence de ^{241}Am dans le combustible de départ.

La différence dans les bases de données provient d'évaluations théoriques discordantes, faute de sources expérimentales fiables. La très courte **demi-vie** du $^{242\text{gs}}\text{Am}$, 16,02 heures, rend impossible le recours à des méthodes de mesure classiques. Une solution a été mise en œuvre à l'ILL, qui possède le réacteur ayant le plus haut flux de neutrons thermiques au monde. À partir d'une cible de ^{241}Am , le haut flux permet de former des quantités de $^{242\text{gs}}\text{Am}$ suffisantes pour influencer fortement la chaîne de transmutation. De plus, la parfaite **thermalisation** des neutrons à l'ILL met l'ex-

périmentateur à l'abri de corrections qui rendraient la mesure très imprécise.

Le début de la chaîne de transmutation (figure) montre que la section efficace de capture du $^{242\text{gs}}\text{Am}$ conditionne la quantité de ^{243}Am formée au cours des irradiations. Lors de l'irradiation, le ^{241}Am se transmute par des captures neutroniques successives et des décroissances **radioactives** en d'autres actinides qui peuvent être fissiles.

L'objectif de l'expérience était d'observer l'évolution d'un ensemble de 13 échantillons, contenant chacun 30 microgrammes (10^{-6} g) de ^{241}Am , irradiés dans deux flux neutroniques d'intensité différente ($5 \cdot 10^{14}$ n/s/cm² et $3 \cdot 10^{13}$ n/s/cm²) et pendant des temps compris entre 30 minutes et 24 jours. La quantité et la composition isotopique des noyaux d'américium, de curium, de plutonium et des **produits de fission**, pour chaque échantillon, dépendent beaucoup de la valeur de la section efficace de capture du $^{242\text{gs}}\text{Am}$, mais aussi d'autres sections efficaces. La transmutation du ^{241}Am dans un flux de neutrons thermiques de haute intensité sera ainsi établie expérimentalement.

(1) Rapport de branchement : le rapport de branchement d'un isotope A vers un isotope B est la fraction d'isotope B formé pour une décroissance de l'isotope A.

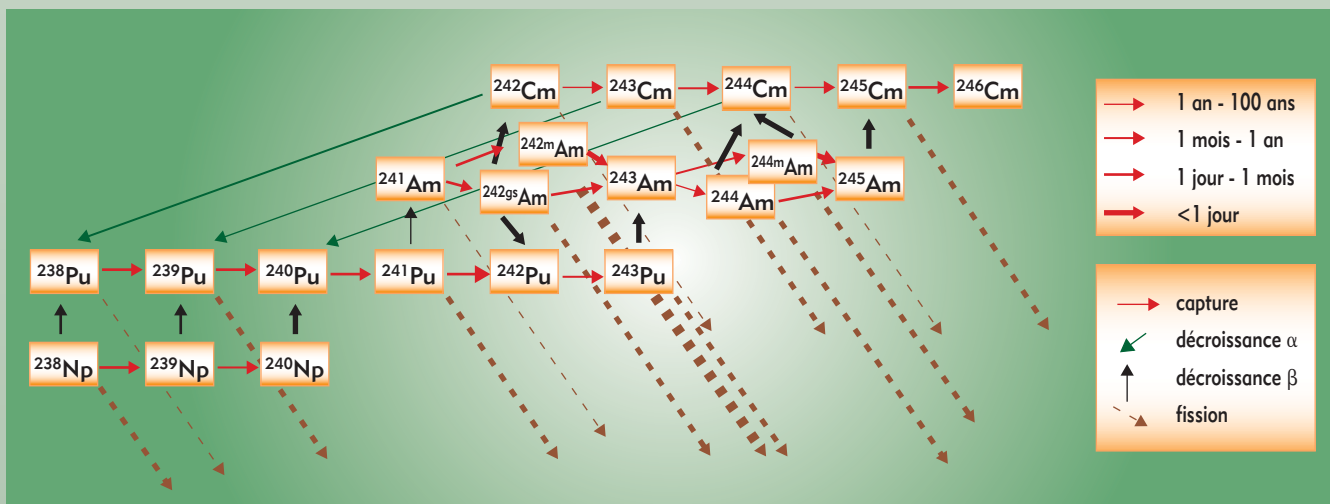


Figure. Isotopes formés pendant l'irradiation du ^{241}Am dans un flux de neutrons thermiques. Les flèches en gras pointillé indiquent quand l'incinération par fission est possible. Le processus de transmutation est plus efficace lorsque la fission a lieu après le plus petit nombre de captures neutroniques successives.

mineurs, cette réaction est à minimiser car elle conduit à générer d'autres actinides et donc ne ferait que déplacer le problème.

Avec la seconde réaction (seulement pour les **noyaux lourds**), le noyau se scinde sous l'action du neutron incident en deux fragments, les produits de fission, qui pour la

plupart ont une période courte. C'est bien évidemment cette voie qu'il faut favoriser pour la destruction des actinides (encadré 3). Car d'une part la fission conduit en général à des résidus à vie courte, moins radiotoxiques à long terme que l'actinide détruit, et d'autre part la fission produit des

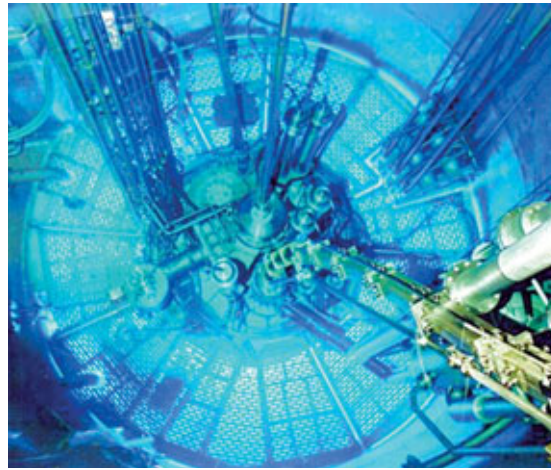
3

Malheureusement, la détermination de la composition isotopique n'est pas si facile. Les échantillons après irradiation ont une radioactivité considérable, qui rend impossible à la fois leur manipulation et la mesure directe par spectroscopie gamma (γ). Il faut combiner une mesure X et γ après une irradiation de très brève durée (30 minutes) avec celle d'un échantillon irradié 24 heures, mais refroidi pendant 8 mois. La comparaison des spectres des deux échantillons permet d'établir avec précision la valeur des sections efficaces de capture du ^{241}Am , un autre paramètre critique et incertain de la chaîne de transmutation. La plupart des analyses ont été effectuées par spectroscopie de masse, par thermo-ionisation (TIMS) ou par spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif (ICP-MS) au bout de six à neuf mois de refroidissement, au CEA/Saclay. La composition isotopique des noyaux d'américium, de curium, de plutonium et des produits de fission des échantillons est ainsi obtenue. La sensibilité de cette méthode est de quelques dizaines de nanogrammes (10^{-9} g), avec des précisions très élevées (entre 0,5 et quelques pour cent). La comparaison des résultats et des prédictions obtenues pour diverses valeurs des sections efficaces du ^{241}Am et du $^{242\text{gs}}\text{Am}$ a confirmé la prédiction théorique basse de la section efficace du $^{242\text{gs}}\text{Am}$, soit (330 ± 50) barns et, pour le ^{241}Am , une valeur de (696 ± 48) barns, avec un rapport de branchement ⁽¹⁾ (entre la formation de l'état fondamental et l'état métastable du ^{242}Am) de ($0,914 \pm 0,007$). De plus, à l'issue d'une irradiation de 19 jours dans un flux de neutrons thermiques de $5,6 \cdot 10^{14}$ n/s/cm², (46 ± 5) % du ^{241}Am initial a été transmuté par capture neutronique, dont (22 ± 8) % a été incinéré par fission. Ainsi, la possibilité de transmutation du ^{241}Am par un haut flux de neutrons thermiques reste théoriquement ouverte.

Gabriele Fioni, Michel Cribier et Frédéric Marie
 Département d'astrophysique,
 de physique des particules,
 de physique nucléaire
 et d'instrumentation associée
 Direction des sciences de la matière
 CEA/Saclay

neutrons supplémentaires utilisables pour détruire d'autres déchets ou participer au maintien de la **réaction en chaîne** tout en produisant de l'énergie.

Les différents types de réacteurs à fission (critiques ou, comme on le verra par la suite, sous-critiques) sont caractérisés par des



Le réacteur à haut flux de neutrons thermiques de l'Institut Laue-Langevin de Grenoble où a été établie la faisabilité de la transmutation de l'actinide mineur américium 241 par des neutrons thermiques.



isotope	réacteur "thermique" REP			réacteur "rapide" RNR		
	σ_f	σ_C	α	σ_f	σ_C	α
^{237}Np	0,52	33	63	0,32	1,7	5,3
^{241}Am	1,1	110	100	0,27	2,0	7,4
^{243}Am	0,44	49	111	0,21	1,8	8,6
^{242}Cm	1,14	4,5	3,9	0,58	1,0	1,7
^{243}Cm	88	14	0,16	7,2	1,0	0,14
^{244}Cm	1,0	16	16	0,42	0,6	1,4
^{245}Cm	116	17	0,15	5,1	0,9	0,18

Tableau. Sections efficaces moyennes, exprimées en barns, de fission σ_f et de capture neutronique σ_C ainsi que leur rapport $\alpha = \sigma_C/\sigma_f$.

spectres différents : à **neutrons thermalisés** (cas des **réacteurs à eau sous pression, REP**) ou à **neutrons rapides (RNR ; encadré F, REP, RNR et RCG)**. La probabilité de fission des noyaux d'actinides varie en fonction de l'énergie des neutrons et elle est toujours en compétition avec d'autres réactions, notamment la capture neutronique. Les sections efficaces des divers isotopes peuvent être moyennées dans les différents types de spectre neutronique afin d'avoir une indication synthétique de leurs qualités respectives, en particulier s'il s'agit de favoriser les fissions par rapport aux captures neutroniques.

Le tableau donne les sections efficaces moyennes de fission et de capture (et leur rapport α) dans le spectre neutronique d'un REP standard et d'un RNR de type Superphénix. Ses données indiquent que, d'un point de vue physique, les RNR présentent des avantages certains pour la transmutation. Les fissions y sont privilégiées, ce qui leur confère leur caractère d'"omnivores". En spectre thermalisé, les actinides mineurs subissent essentiellement la capture neutronique, mis à part les curium 243 et 245. Cette particularité est d'ailleurs mise à profit dans une des voies actuellement étudiées qui visent à favoriser la transmutation par capture neutronique afin de transformer l'américium en

curium puis de l'**incinérer** en bénéficiant de ses hautes probabilités de fission nucléaire. Ces caractéristiques sont fondamentalement liées au spectre neutronique présent dans le réacteur, indépendamment du fait qu'il soit piloté en mode critique ou sous-critique.

Une analyse à approfondir

L'analyse présentée ici reste qualitative et approximative. Il faut pour la compléter fournir des réponses plus détaillées à plusieurs questions. Le bilan neutronique du cœur du réacteur considéré permet-il l'introduction d'actinides mineurs ou de produits de fission à transmuter ? La production d'autres isotopes a-t-elle des conséquences, *via* l'augmentation des sources d'émission neutrons et gamma, sur les opérations du cycle du combustible, par exemple ? La présence dans le cœur d'isotopes à transmuter, introduits "de l'extérieur", a-t-elle des conséquences sur les paramètres physiques du cœur ? La réponse à ces questions, entre autres, fait l'objet des articles suivants.

Alain Zaetta
 Direction de l'énergie nucléaire
 CEA/Cadarache