

International
Nuclear
Fuel
Cycle
Evaluation

X40007139

INFCE

INFCE/DEP/NG.5/24

SEPARATION DES ALPHA ET TRANSMUTATION

SEPARATION DES α ET TRANSMUTATION

Auteurs : M. BOUCHARD,CEA - M. BATHÉLIER,CEA - Melle COUSIN,CEA

1 - GENERALITES

Le développement du programme électronucléaire va s'accompagner d'une production importante d'éléments radioactifs au cours du cycle du combustible mais c'est au retraitement que l'on retrouve la majorité de ces éléments sous forme de déchets. Certains éléments ayant des périodes relativement faibles (inférieures ou égales à 30 ans), on peut facilement les isoler jusqu'à complète décroissance en utilisant des conditionnements avec des stockages appropriés. Par contre, certains éléments ont des périodes longues et représentent une certaine nocivité. Même à long terme, les actinides font partie de cette période. Deux catégories de mesures peuvent être envisagées pour se protéger contre cette nocivité pendant de très longues périodes :

- 1 - stocker dans des couches géologiques présentant des garanties suffisantes pendant des périodes de l'ordre de centaines de milliers d'années ;
- 2 - essayer de réduire la nocivité en soumettant à une irradiation neutronique les éléments considérés en vue de leur transformation en d'autres éléments ayant des périodes plus courtes ou des nocivités plus faibles. C'est de cette deuxième méthode que nous allons parler dans ce document, en l'appliquant aux solutions de produits de fission obtenus au 1er cycle d'extraction des usines de retraitement de combustibles.

2 - PRINCIPES

Le but de l'opération est de transmuter les actinides en isotopes moins toxiques et pouvant décroître si nécessaire plus rapidement. Cette opération ne peut se faire qu'avec des flux de neutrons intenses, mais il est intéressant d'utiliser des neutrons rapides car les rapports moyens des sections de fission aux sections de capture sont plus élevés. Cette opération ne peut être rentable que si l'on arrive à séparer préalablement des actinides des autres radioéléments avec un facteur de séparation suffisant.

3 - SEPARATION DES α

3.1 - Degré de séparation nécessaire

Idéalement, nous devrions étudier le retour à l'homme des éléments s'échappant du stockage de déchets et calculer les bilans de doses résultantes pour pouvoir fixer les facteurs de décontamination nécessaires. Malheureusement les données sur les stockages envisageables ne sont pas disponibles : ces données ne seront connues que lorsque l'on étudiera un site précis. Néanmoins, un stockage à grande profondeur dans un granite de bonne qualité pourrait permettre de faire les premières modélisations.

Certaines approches différentes ont été faites (voir tableau I) mais avec des bases comparables. Toutes ont utilisé pour leurs études les mesures de toxicité en considérant que l'index de toxicité est le volume d'eau nécessaire pour diluer tous les radionucléides contenus dans un volume unité de déchets à la valeur de la concentration maximale admissible (eau de boisson). L'index de toxicité s'exprime donc en $m^3 H_2O/m^3$ déchets, facteur sans dimension. L'index de toxicité des déchets est souvent comparé à l'index de toxicité de minerais naturels radioactifs (pechblende : 10^3 ; carnotite : 10^5 ; minerai 0,25 % : $2 \cdot 10^5$).

- a) Dans les études de M. Mac Kay, le facteur de réduction est obtenu en apportant aux HLW après 1 000 ans le même niveau de nocivité que celui de la pechblende.
- b) Dans les études de M. Claiborne, le facteur de réduction à appliquer est déterminé en réduisant l'index de toxicité des actinides au même niveau que celui des produits de fission à vie longue après extraction de 99,9 % de l'iode.
- c) Dans les études de M. Schmidt, le facteur de réduction est obtenu en limitant la nocivité des HLW après 1 000 ans au niveau de celle de la carnotite.
- d) Dans les études de M. Bathellier, le facteur de réduction est obtenu de façon à ce qu'un bloc de verre lixivié dans un stockage noyé chargé d'eau confère à celle-ci une activité égale à la CMA. Ce bloc de verre est supposé contenir $3 \cdot 10^6$ fois la concentration maximale admissible dans une eau de boisson. Une autre approche de M. Bathellier consiste à comparer ces index de toxicité à ceux d'un minerai de 0,25 % ce qui revient à avoir des facteurs de séparation environ 20 fois plus élevés que ceux obtenus dans le premier cas mentionné dans ce paragraphe.

Il faut être conscient du procédé factice de comparaison utilisé dans ces raisonnements. En effet, si l'on fait dans la pechblende, une cavité pour y mettre des déchets de même toxicité que celle-ci, on n'obtiendra pas les mêmes résultats. En effet, la pechblende a un état stable, tandis qu'on modifie le milieu en y incluant des

déchets et on crée ainsi des circulations d'eau préférentielles. D'autre part, les transferts ou fixation des éléments dans les terrains sont très spécifiques des éléments et dépendent des complexes chimiques sous lesquels il se présentent.

3.2 - Procédés

Les études sont effectuées pour déterminer si une méthode permet de récupérer tous les actinides sous une forme compatible avec la transmutation.

Généralement il est envisagé dans les études (USA - France - Ispra) de séparer dans une première étape Am-Cm et terres rares. Trois méthodes sont actuellement étudiées :

- 1) extraction par solvant (USA - France)
- 2) précipitation oxalique suivie d'échange d'ions (Ispra)
- 3) échange de cation (USA)

Pour la seconde étape qui consiste à séparer Am-Cm des terres rares, les procédés à l'étude sont :

- a) chromatographie d'échange d'ions pour séparer les actinides trivalents : usage de barrières d'ions d'hydrogène pour élution plutôt qu'utilisation du zinc (USA)
- b) procédé par solvant (USA - France)

Ces deux méthodes utilisent beaucoup de réactifs et posent le problème du recyclage des faibles et moyennes activités.

3.2.1 - Extraction par solvants

- La France a entrepris des études avec trois types de solvants TBP 50%, HDEHP 20%, oxyde de phosphine, en utilisant des solutions simulées de produits de fission. La présence, dans les solutions de produits de fission, de précipités dus à l'hydrolyse de certains éléments complique beaucoup les opérations d'autant plus que les transuraniens ont tendance à suivre ces précipités.

La première phase des essais a consisté à déterminer les procédés à utiliser avec les trois solvants présélectionnés. Pour la séparation de l'américium et du curium des produits de fission, les solvants les plus intéressants semblent être les oxydes de phosphine qui permettent d'opérer à une acidité facilement contrôlable et telle qu'il n'y a pas formation d'hydroxyde ferrique. Les travaux

futurs développeront donc ce procédé tout en poursuivant les études pour vérifier si la formation de précipités dans les autres ne peut être évitée en utilisant par exemple un agent complexant du fer.

Il apparaît plusieurs points délicats à examiner, en particulier :

.. la minimisation des précipités contaminés en émetteurs α qui se forment lorsqu'on diminue le volume de la solution par évaporation,

.. le contrôle de l'acidité lors de la séparation des éléments actinides des éléments lanthanides.

- Le centre d'ISPRA a obtenu certains résultats expérimentaux au moyen de l'extraction par solvant, sur une solution simulant les effluents radioactifs (HAW) issus du premier cycle d'extraction du traitement "Purex".

Ces expériences, réalisées en "batch", montrent que les facteurs de décontamination recherchés en transuraniens à forte radiotoxicité ; (10^3 pour l'américium, le curium, le plutonium et 10 pour le neptunium), peuvent être obtenus en utilisant l'acide di (ethyl-2 hexyl) phosphorique (HDEHP) ou le phosphate de tributyle (TBP) comme extractants et en supposant la présence de ces actinides sous des formes extractibles en solution.

La première option envisage de recourir à des traitements spéciaux pour récupérer le plutonium fixé sur le précipité apparaissant lors de la dénitrification de la solution "HAW". La seconde option prévoit une séparation préliminaire exhaustive du plutonium. Dans ce dernier cas, on a considéré; en outre, l'utilisation possible d'un solvant hydroxamique (HX-70) connu pour son fort pouvoir de complexion du plutonium.

Avec ces options 2 schémas de séparation ont été établis faisant appel l'un au TBP, l'autre à l'HDEHP.

les caractéristiques de ces solvants conduisent, toutefois à des conditions d'utilisation très différentes. Si le TBP ne peut s'appliquer, afin d'éviter tout recyclage de sels relargant, qu'aux solutions "HAW" concentrées (500 l/t.U.)

en revanche, la faible capacité de charge de l'HDEHP ne permet son emploi que sur des solutions peu ou non concentrées (5 000 l/t.U.)

Il est prévu de tester les points importants de ces schémas de séparation avec des solutions réelles.

3.2.2 - Précipitation oxalique et échange d'ions

Le procédé OXAL, basé sur la précipitation des oxalates est étudié également à ISPRA. Il a pour but la séparation des actinides et des terres rares des déchets liquides. Il consiste à abaisser l'acidité de la solution des déchets (telle que produite par le procédé PUREX ou concentrée pour un stockage intermédiaire) par dénitration avec l'acide formique et après filtration du précipité de dénitration, à précipiter les oxalates par ajout d'acide oxalique solide. La destruction des oxalates par l'acide nitrique fournit une solution pouvant être utilisée pour la séparation successive terres rares/actinides soit par un procédé comme le "TALSPEAK" (USA) soit par un procédé basé sur les résines échangeuses d'ions.

Le procédé OXAL, basé sur la précipitation a été considéré pour les motifs principaux suivants :

- 1 - Il est très probable que le plutonium se trouve partiellement sous forme inextractible dans la solution des déchets.
- 2 - Les déchets liquides contiennent généralement des solides en suspension qui ont fixé une partie des actinides (spécialement Pu).

Des essais ont été réalisés sur des solutions simulées et sur des solutions réelles. Les déchets réels sont de deux types : déchets provenant de l'usine de retraitement de Windscale et déchets préparés à Ispra par simulation du procédé PUREX sur de petites quantités de combustible irradié à 26 000 MWj/tonne.

Des facteurs de décontamination de l'ordre de 10^3 ont été obtenus pour Am et Cm et supérieurs à 10^2 pour Pu.

Les différents résultats montrent que le problème principal à résoudre dans ce procédé est celui des précipités entraînant et fixant le plutonium.

4 - TRANSMUTATION

Des études préliminaires sur les possibilités physiques de destruction des déchets de haute activité et de longue vie par irradiation dans les réacteurs ont été entreprises au Commissariat à l'Energie Atomique depuis quelques années. Ces études concernent les produits de fission et les actinides autres qu'uranium et plutonium, éléments de base des cycles de combustibles que nous prenons en considération.

Pour les produits de fission nous sommes rapidement arrivés à la conclusion que la destruction par transmutation ne pouvait être envisagée que pour les ^{129}I et ^{99}Tc mais ne permettrait pas de résoudre par exemple le problème des ^{90}Sr et ^{137}Cs .

Les actinides au contraire sont relativement faciles à détruire en raison de leur forte absorption neutronique qui se traduit par des sections efficaces élevées dans toute la gamme de spectres intéressant les réacteurs, sections efficaces du même ordre de grandeur que celles des principaux isotopes de l'uranium et du plutonium. Toutefois dans ce cas le but poursuivi n'est pas à proprement parler une transmutation puisque tous les isotopes de ces éléments sont radioactifs et conduisent rarement dans des temps relativement courts à des isotopes stables, mais la fission qui, outre l'énergie certes marginale qu'elle apporte, permet de réduire considérablement l'activité des déchets à très longue échéance. De ce fait les réacteurs à neutrons rapides apparaissent comme les plus avantageux, tous les isotopes lourds étant plus ou moins fissiles à haute énergie et les rapports moyens de la fission à l'absorption étant plus élevés dans ce type de réacteurs.

Un autre élément favorable au choix des réacteurs à neutrons rapides est lié à l'activité de ces actinides qu'il paraît plus logique, au moins en première analyse, de recycler dans des réacteurs dont le combustible normal est lui-même actif.

Il est certain que le recyclage des neptunium, américium, curium, s'il est retenu, aura des conséquences importantes dans les différentes étapes du cycle de combustibles, en particulier au niveau du retraitement, puisqu'il implique la séparation de ces actinides des autres déchets, et pour la fabrication, que les solutions adoptées soient du type homogène ou hétérogène. Néanmoins la première étape à franchir était de confirmer la faisabilité physique d'un tel recyclage et d'obtenir les premiers éléments de jugement pour en apprécier les avantages et les inconvénients et pour choisir les hypothèses qui permettront par la suite de développer les études techniques.

C'est cette première étape qui est présentée ici. Après une courte analyse des conditions de formation et de disparition des principaux isotopes le recyclage des américium, curium et neptunium est étudié sur vingt ans de fonctionnement d'un réacteur à neutrons rapides type SUPER-PHENIX.

Les résultats sont discutés compte tenu des hypothèses et nous présentons les programmes d'études actuellement en cours ou envisagés.

4.1 - Production des principaux actinides autres qu'uranium et plutonium.

Les productions annuelles de neptunium, américium et curium sont résumées dans le tableau II et exprimées par MWe produit. Ces valeurs moyennes ont été déterminées pour un réacteur à eau pressurisée et un réacteur à neutrons rapides, tous deux de la gamme 1 000 MWe, à partir d'un bilan sur 20 ans en supposant que le retraitement est effectué en moyenne un an après le déchargement du combustible.

Les différences que l'on constate entre les deux types de réacteurs proviennent en partie de la distribution en énergie des neutrons mais surtout du fait que l'un est chargé avec un combustible uranium et l'autre avec un combustible au plutonium.

4.2 - Combustion des actinides dans un réacteur à neutrons rapides.

La vitesse de disparition des différents isotopes peut être évaluée à partir des pseudo-périodes indiquées dans le tableau III en comparaison avec les périodes radioactives. Les caractéristiques du ^{239}Pu et du ^{240}Pu sont également données dans le même tableau et peuvent servir de référence.

Ces valeurs, qui ne sont bien entendu que des ordres de grandeur, montrent clairement que la destruction des isotopes de neptunium, américium et curium ne se présente pas de manière plus difficile que celle des isotopes du plutonium et qu'elle est même dans certains cas plus aisée.

Toutefois si une part importante de ces disparitions correspond à des fissions, et l'avantage du réacteur à neutrons est que ceci est vrai pour la plupart des isotopes, une fraction correspond à des captures conduisant à un autre isotope radioactif. Il n'est donc possible de juger complètement l'intérêt de l'opération qu'à partir de bilans tels que ceux qui sont présentés dans ce qui suit.

Notons également dans ces valeurs du tableau III que pour le curium 244 la vitesse de disparition plus élevée que par décroissance radioactive n'est tout de même pas d'un ordre de grandeur très différent surtout parce que dans son cas la capture est prédominante et que la combustion ne se produit qu'au niveau du curium 245.

4.3 - Réacteur et cycle de combustibles considérés.

Pour présenter et discuter un bilan d'évolution des actinides il est nécessaire de bien préciser les hypothèses qui ont été faites

pour le calcul en ce qui concerne le réacteur et le cycle de combustibles.

Ces hypothèses sont les suivantes :

- réacteur à neutrons rapides au sodium de la gamme 1200 MWe (SUPER-PHENIX)
- rechargement par tiers tous les ans
- taux de combustion de rejet à l'équilibre 85000 MWJ/T.

Le schéma de principe du cycle de combustible comprend 3 ans d'irradiation dans le réacteur, 1 an de refroidissement, transport ou stockage avant retraitement et 1 an entre le retraitement et le rechargement des éléments séparés lors de ce retraitement.

Le recyclage des actinides est effectué de façon homogène suivant le même cycle que le combustible normal.

Trois variantes sont présentées :

- recyclage du neptunium seul
- recyclage de l'américium seul
- recyclage de l'ensemble neptunium + américium + curium

Parmi ces hypothèses, celle qui concerne le recyclage homogène n'a pas de conséquence importante au niveau des résultats physiques, par contre le choix du schéma de cycle intervient notablement dans les concentrations des assemblages chargés et déchargés.

Notons enfin que les calculs ont été conduits pour 20 ans de fonctionnement et que les 5 premiers tiers (3 ans) sont constitués avec du plutonium provenant de réacteurs à eau, les suivants correspondant à de l'auto-recyclage. Sur le tableau IV on peut avoir les écarts de composition isotopique du plutonium entre les premiers tiers et le fonctionnement en autorecyclage à l'équilibre sans introduction des actinides dans ce recyclage.

4.4 - Evolution des actinides dans le recyclage

On n'a fait jusqu'à présent, que des calculs : les figures 1 à 3 présentent trois exemples de résultats.

Le premier concerne le neptunium 237 présent dans le combustible au moment du déchargement. On voit clairement que l'introduction du recyclage de cet élément conduit à l'équilibre à doubler sa teneur dans le combustible à retraiter.

Pour l'américium 241 (fig 2), on constate deux phénomènes dont un est nettement lié aux hypothèses du schéma de cycle. Sa concentration dans le combustible déchargé est relativement élevée au départ à cause de la teneur élevée en 241 du plutonium provenant des réacteurs à eau. A partir du 6ème tiers déchargé cette concentration diminue très notablement si on ne recycle pas l'américium. Par contre elle reste du même ordre de grandeur qu'au départ si on effectue ce recyclage.

Troisième exemple : le curium 244 (fig 3). Ici la discontinuité observée à partir du 6ème tiers est moins nette si on ne recycle ni l'américium, ni le curium. Dans le cas inverse on voit que sa concentration est augmentée d'un facteur 3 à l'équilibre dans le cas du recyclage de l'américium seul et croît encore si on recycle américium et curium, l'équilibre étant à peine atteint au bout de 20 ans dans cette dernière hypothèse.

Ces trois exemples illustrent les problèmes d'évolution des actinides avec ou sans recyclage. On peut résumer de ce point de vue l'ensemble de nos calculs en disant que :

- le recyclage du neptunium conduit à doubler environ l'inventaire de cet élément dans le réacteur et ne modifie que très peu les autres, la concentration en plutonium 238 en particulier n'excédant pratiquement pas celle que l'on rencontre avec le plutonium provenant des réacteurs à eau.
- le recyclage de l'américium n'augmente pas notablement les concentrations de cet élément dans le combustible à retraiter toujours en comparaison avec le plutonium provenant des réacteurs à eau ; par contre il augmente les teneurs en curium et en particulier le curium 244 d'un facteur 3 environ.
- le recyclage du curium conduit à une augmentation des concentrations de ses isotopes qui, à partir du 244 n'atteignent pas l'équilibre au bout de 20 ans de fonctionnement.

En première conclusion on a donc supprimé le stockage des actinides en n'atteignant pas des concentrations élevées de ces isotopes dans le réacteur mais avec toutefois une augmentation de l'inventaire en curium. Examinons maintenant le problème des recharges qui concerne la fabrication du combustible.

Le tableau V résume la situation dans les diverses hypothèses. On constate ce qui rejoint les conclusions précédentes, que les masses des différents actinides restent très limitées. Par contre les activi-

tés et en particulier l'émission neutronique augmentent sensiblement dans le cas du recyclage du curium. Il faut noter en outre que le problème de l'activité gamma, qui ne peut être chiffré aussi simplement dans ses conséquences, se pose dans les différents cas :

- recyclage du neptunium par l'augmentation d'un facteur 2 environ de la teneur en plutonium 236.
- recyclage de l'américium à cause des 60 keV de l'américium 241 et l'augmentation d'activité est proportionnelle aux teneurs indiquées
- recyclage du curium par suite de l'émission gamma de l'isotope 243 à environ 300 keV.
- présence éventuelle de résidus de lanthanides.

4.5 - Conséquences pour le réacteur

A ce stade des études nous n'avons pas chiffré avec précision toutes les conséquences pour le réacteur. Néanmoins un premier examen a fait ressortir que dans le cas d'un recyclage homogène, et là cette hypothèse a son importance, ces conséquences seront très limitées.

A titre d'exemple, pour la réactivité le bilan est pratiquement nul pour le recyclage neptunium, légèrement négatif dans le cas de l'américium seul (200 à 500 pcm) et à nouveau pratiquement nul dans l'hypothèse du recyclage complet des trois éléments.

La présence éventuelle de lanthanides résiduels ne serait gênante de ce point de vue que si elle était très importante, supérieure à quelques % pour l'ensemble de ces éléments, excepté le samarium pour lequel la limite acceptable serait plus voisine de 1 %.

4.6 - Stratégies de recyclage

Ces études nous montrent la faisabilité physique du recyclage des actinides et donc la possibilité d'en faire disparaître la majeure partie en tant que déchets radioactifs.

La voie du recyclage homogène et global semble la plus séduisante. Néanmoins il apparaît qu'indépendamment des problèmes de séparation chimique qui sont traités par ailleurs la difficulté principale peut provenir de la fabrication du combustible à cause de son activité et en particulier de l'émission neutronique dans le cas du recyclage du curium.

C'est pourquoi nous examinons actuellement plusieurs variantes de recyclage :

- recyclage homogène des trois éléments
- recyclage homogène de neptunium et américium et
 - + recyclage hétérogène immédiat du curium ou
 - + stockage du curium et récupération du plutonium de décroissance, la destruction du curium résiduel pouvant être envisagée à plus long terme.

En considérant le recyclage homogène et en prenant un cas de référence qui correspond au combustible normal d'un réacteur rapide chargé avec du plutonium en provenance des réacteurs à eau, les activités ne sont sensiblement pas accrues en cas de recyclage du neptunium mais augmentent d'un facteur 10 en gamma pour le recyclage de l'américium et de facteurs respectivement voisins de 15 et 100 pour les doses gamma et neutron en cas de recyclage du curium.

S'il est clair que les solutions de recyclage homogène créeraient essentiellement des difficultés au niveau de la fabrication des combustibles, il faut noter que des solutions hétérogènes auraient probablement des conséquences beaucoup plus importantes en particulier :

- Volume d'éléments à réaliser et à traiter : si la teneur des actinides reste relativement faible, les quantités absolues sont loin d'être négligeables.
- Nécessité de mettre au point un combustible nouveau (teneurs élevées en actinides).
- Cycle particulier pour ce combustible en particulier pour la fabrication mais probablement aussi pour le retraitement et les transports.
- Conséquences plus importantes au niveau du réacteur.

4.7 - Etudes en cours

Les résultats que nous avons obtenus montrent la possibilité de supprimer les déchets radioactifs de longue période qui constituent les principaux isotopes des actinides. Les études de stratégies indiquées au paragraphe précédent vont nous permettre, en faisant intervenir les implications dans l'ensemble du cycle de combustibles d'évaluer les pénalités qui résulteraient du recyclage dans les diverses hypothèses. L'évaluation pratique des activités gamma et neutrons a une importance particulière dans ces études et nous y consacrons actuellement un effort prioritaire.

Sur le plan physique, de nombreuses données souvent assez mal connues interviennent dans les calculs présentés dans ce qui précède. Si nous ne pensons pas que les ordres de grandeur risquent d'être remis en cause par une meilleure connaissance de ces données, il nous paraît

important de prévoir des améliorations que nous attendons de quatre types d'actions :

- La poursuite des programmes de mesures sur des combustibles irradiés de réacteurs à eau et de réacteurs à neutrons rapides entrepris depuis de nombreuses années pour les études d'évolution liées à ces types de réacteurs et qui nous permettent en particulier de préciser la formation des actinides dans les cycles actuels.
- Une étude de sensibilité particulière pour déterminer l'influence des différentes sections efficaces dans les calculs de recyclage des actinides et donc d'orienter les travaux complémentaires d'évaluation et de confirmations expérimentales.
- De nouvelles évaluations de données nucléaires en fonction des besoins exprimés en conclusion de l'étude précédente.
- La préparation d'expériences intégrales de confirmation qui, suivant des techniques éprouvées dans les études de réacteurs, consisteraient essentiellement en irradiation d'isotopes séparés pour les sections de capture et mesures par chambres à fission pour les sections de fission.

5 - CONCLUSIONS

Vue dans son ensemble, il paraît a priori que l'opération transmutation soit réalisable et qu'en ce qui concerne le stockage final, il soit bénéfique. Mais en fait, il faut voir le problème dans son ensemble et considérer tous les risques encourus tout le long de la chaîne des opérations pour faire un bilan total du point de vue sûreté.

D'autre part, il faut être conscient que l'opération de séparation est très délicate. On a déjà l'expérience des opérations de retraitement des combustibles qui est coûteuse et difficile. Ici on veut pousser encore plus en séparant de nouveaux éléments des produits de fission. Du facteur de décontamination obtenu, dépendra le prix qui de toute façon sera élevé.

Enfin si la transmutation dans les réacteurs rapides semble séduisante, il faut analyser les stratégies de gestion applicables pour avoir le meilleur rendement et mettre au point les techniques de fabrication de combustibles contenant Am-Np-Cm.

Enfin, il faut être conscient que nous n'avons envisagé dans cet exposé que la séparation des transuraniens des produits de fission obtenus au premier cycle du retraitement pour simplifier le problème du stockage, mais si l'américium et le curium sont pratiquement en totalité dans les solutions de produits de fission, les quantités de pluton-

niun contenu dans ces solutions sont moins importantes que celles qui se trouvent dans les déchets divers obtenus au retraitement et dans les installations de fabrication de combustible au plutonium. Pour diminuer efficacement les risques à long terme, il faudra également essayer de récupérer au mieux le plutonium des déchets de faible et moyenne activité de ces installations.

TABLEAU I

FACTEUR DE SEPARATION POUR LES EFFLUENTS DE HAUTE ACTIVITE PROVENANT DES

REACTEURS A EAU LEGERE

Référence	Mac Kay	Clairborne	Schmidt	Bathellier	
	pechblende		carnotite	lixiviation de verre	minerai 0,25 %
U		1 000	2 000		
Np	10	20	200	20	400
Pu	300	10 000	200 000	50 (x 200) [*]	1 000 (x 200) [*]
Am)) 1 000 ^{**}	1 000	50 000	200	4 000
Cm)	1 000	20 000	200	4 000
I ¹²⁹		1 000	200		
Tc ⁹⁹		1	50		

* FD obtenus pour U et Pu au cours du retraitement

** en prévoyant 1 % U et Pu dans les solutions du premier cycle des usines de retraitement.

TABLEAU II- PRODUCTION ANNUELLE POUR 1 MWE

ELEMENT	PWR		FBR	
	Masse (g)	Activité (Ci)	Masse (g)	Activité (Ci)
NEPTUNIUM	12	0.01	3	0.003
AMERICIUM	7	16	14	32
CURIUM	1	80	1.5	120

TABLEAU III -PSEUDO-PERIEODES DE DISPARITION DANS UN REACTEUR RAPIDE

ISOTOPE	^{239}Pu	^{240}Pu	^{237}Np	^{241}Am	^{243}Am	^{244}Cm	^{245}Cm
PSEUDO-PERIEODE (ans)	2,7	6,8	3,2	2,1	3,4	5,4	1,8
PERIEODE RADIOACTIVE (ans)	24400	6500	$2 \cdot 10^6$	430	7400	18	8700

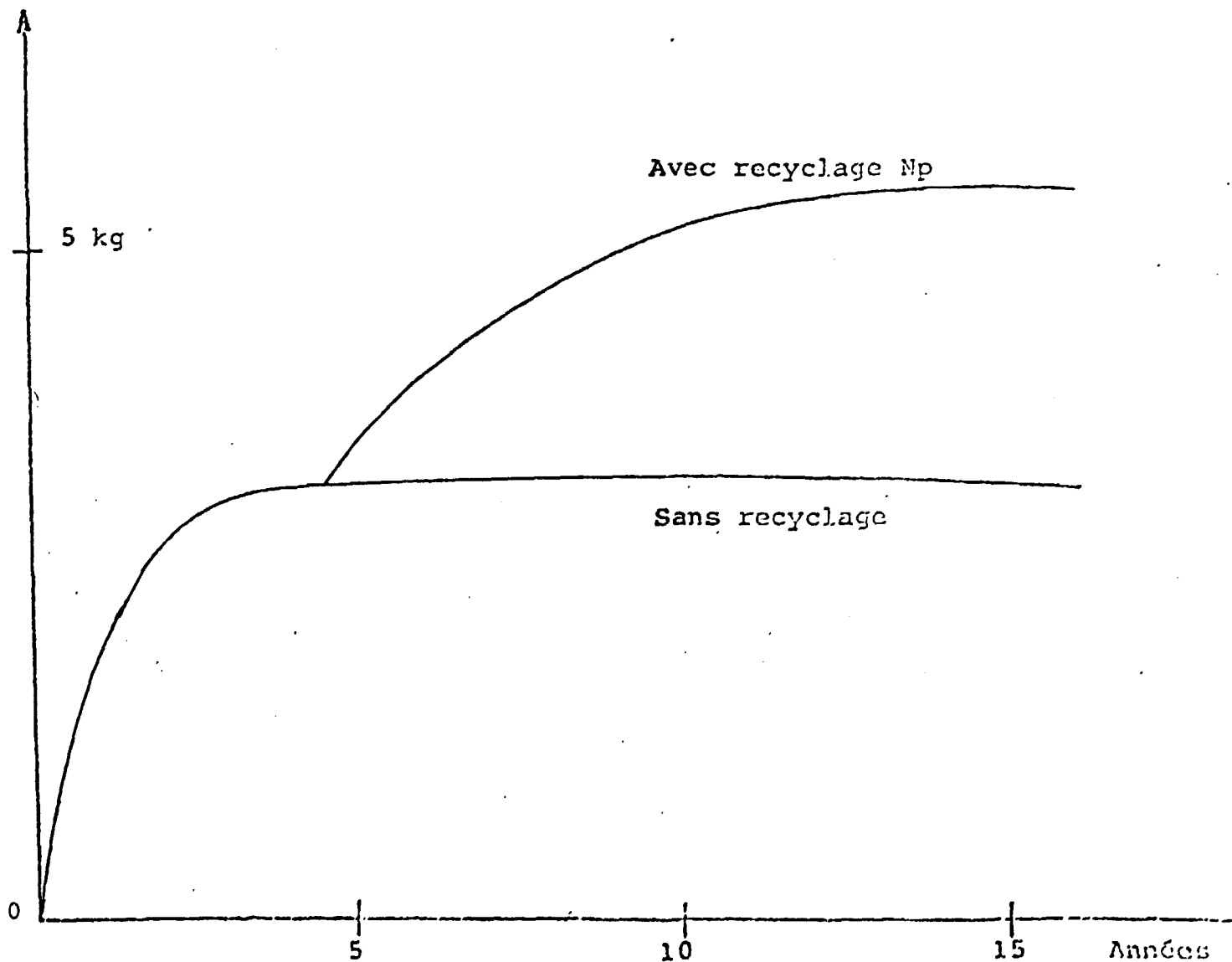
TABLEAU IV - COMPOSITIONS ISOTOPIQUES DU PLUTONIUM (%)

ISOTOPE	5 PREMIERS TIERS (Pu de PWR)	EQUILIBRE (sans Am, Cm, Np)
238	1	0.5
239	65	71
240	22	24
241	9	2.5
242	3	2

TABLEAU V - COMPOSITION DES RECHARGES (pour 1 tiers de réacteur de 1200 MWe)

ISOTOPE	Masses (kg)						Activités	
	^{237}Np	^{238}Pu	Pu	^{241}Am	^{243}Am	Cm	α (kCi)	(10^9n/)
seul (PWR)	4	17	1700	13	-	-	600	1.0
seul (autorecyclage)	-	6	1700	3	-	-	300	0.7
Pu + Np	6	7.5	1700	5	-	-	350	0.8
Pu + Am	-	18	1700	18	15	-	600	1.0
+ Np + Am + Cm	6	19	1700	18	15	7	1350	67.0

^{237}Np DANS LE COMBUSTIBLE DECHARGE
(Masse pour 1 tiers de coeur)



^{241}Am DANS LE COMBUSTIBLE DECHARGE

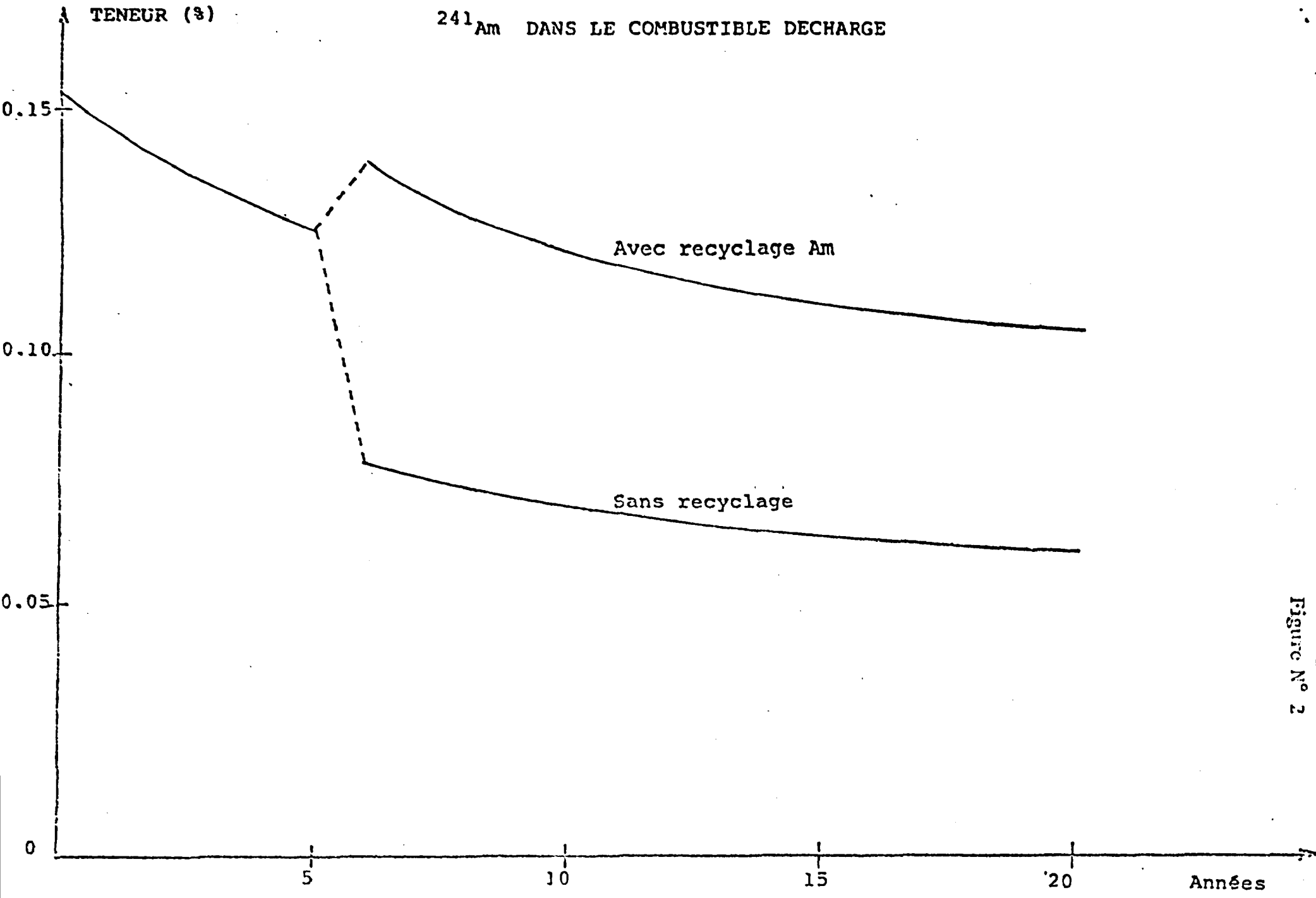


Figure N° 2

^{244}Cm DANS LE COMBUSTIBLE DECHARGE

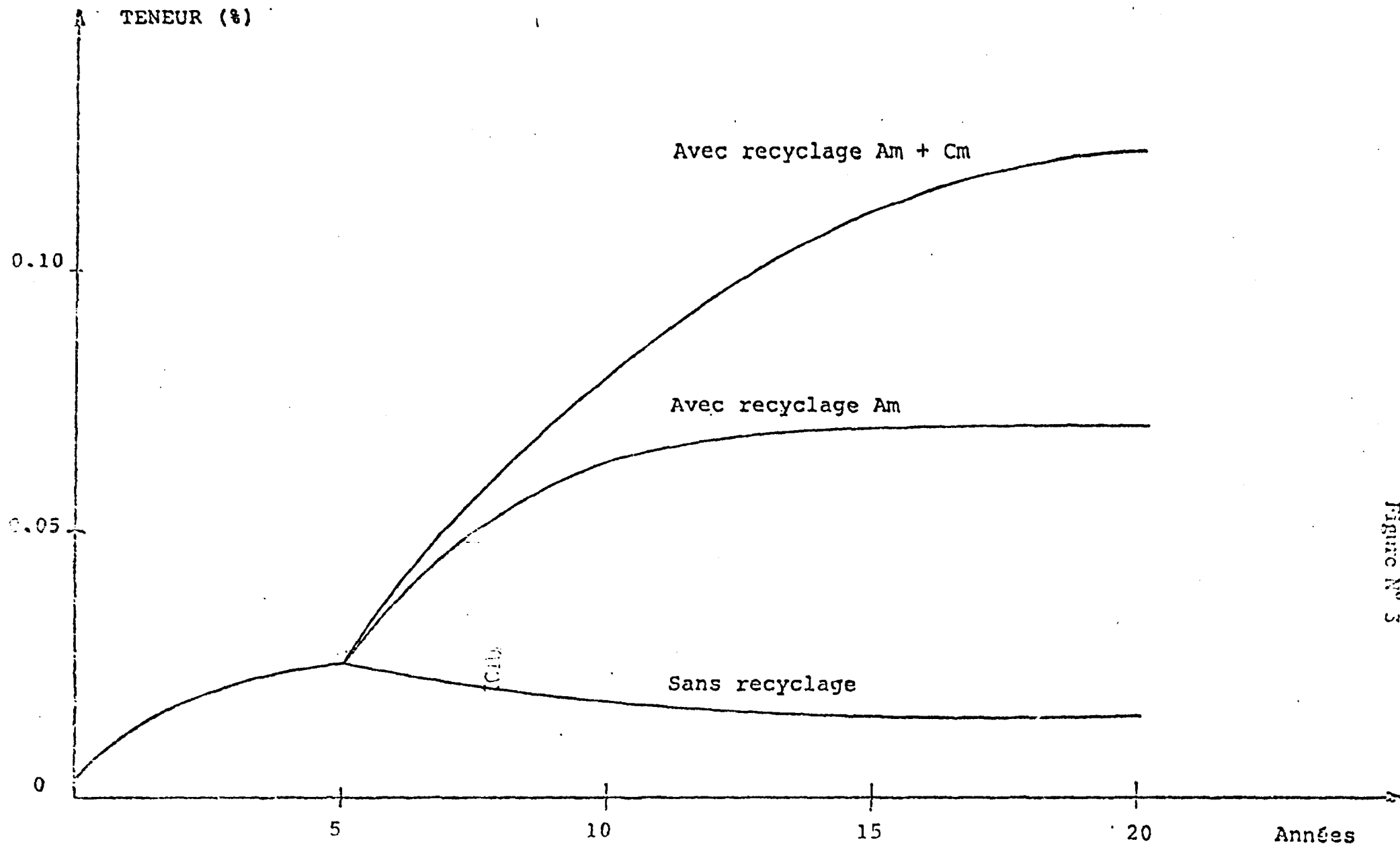


Figure N° 5