

**République Algérienne Démocratique et Populaire**  
**Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique**

UNIVERSITE FERHAT ABBAS - SETIF 1 -

FACULTE DES SCIENCES

DEPARTEMENT DE PHYSIQUE



**THESE**

**DOCTORAT EN SCIENCES**

**OPTION : Génie Physique**

Présentée par

**HOUAS MOUNIRA**

**Thème**

**Transmutation des actinides mineurs dans un réacteur à haut flux :**

**application Américium-241**

**Soutenue Publiquement le 16 / 03 / 2017 devant le Jury :**

<b>D. Maouche</b>	Professeur	Université Sétif 1	Président
<b>A. Boucenna</b>	Professeur	Université Sétif 1	Rapporteur
<b>A. Belafrites</b>	Professeur	Université de Jijel	Examineur
<b>F. Benrachi</b>	Professeur	Université Mentouri	Examineur
<b>A. Seghour</b>	Directeur de Recherche	CRNA	Examineur
<b>N. Amrani</b>	Maître de Conférence A	Université Sétif 1	Invité

## **Remerciements**

*En premier lieu, je remercie Dieu le tout puissant de m'avoir aidé pour la réalisation de ce modeste travail.*

*J'exprime toute ma reconnaissance au professeur Ahmed BOUCENNA d'avoir accepté d'être mon directeur de thèse et de m'avoir guidé dans mes recherches.*

*Je remercie sincèrement Madame Naima AMRANI dont l'investissement durant ces années m'a permis de mener à bien mon étude. Elle m'a accompagné en début et fin de thèse à travers ses précieux conseils. Son attention et sa disponibilité m'ont été d'un grand soutien.*

*Je tiens également à remercier les membres de mon jury, les professeurs A. BELAFRITES, F. BENRACHI et A. SEGHOOR, pour leur participation, leurs remarques et leurs questions, ainsi que le professeur Djamel Maouche pour avoir présidé ma soutenance.*

*Je souhaite remercier toutes les personnes du Département de Physique, qui ont toujours répondu avec le sourire à tous mes questions et mes problèmes, en particulier, le Chef de Département Monsieur Lahcene KRACHE. Je salue aussi tous les enseignants et les administrateurs de la Faculté des Sciences, à leur tête le Doyen Monsieur Lyachi LOAIL.*

*Je remercie aussi chaleureusement ceux qui m'ont apporté leurs soutiens. Mes premières pensées vont bien sûr vers mes collègues Samia BOUDOUKHA, Wassila BOUKHANFOUF et Fairouz BLILITA, qui m'ont encouragé, et sont toujours à mes côtés lorsque le besoin l'exige.*

*Je ne peux oublier ma famille au sens large qui croit en moi. Elle m'a encouragé sur mes choix et m'a aidé à mener à bien mon projet. Je me dois d'avoir une attention particulière pour ma mère, dont la fierté qu'elle a eu de ses enfants. Je remercie également ma belle famille, surtout mes beaux parents, qui m'ont toujours encouragé.*

*Enfin, merci à mon époux, Riad DJEDDOU, qui me supporte au quotidien. Il a su me motiver dans les moments les plus difficiles, surtout ces derniers mois. Un grand merci est adressé à mes chers enfants, Ritedj et Takie Eddine, l'esprit de ma vie, à qui je dédie chaleureusement cette thèse.*

**Merci à tous...**

# TABLE DES MATIERES

<b>INTRODUCTION</b>	<b>1</b>
<b>CHAPITRE I : Gestion des déchets nucléaires à vie longue</b>	<b>3</b>
1. Les déchets nucléaires	3
1.1. Définition	3
1.2. Origines des déchets nucléaires	3
1.3. Le combustible usé	5
1.4. Classification des déchets nucléaires	8
a. Déchets de type A	9
b. Déchets de type B	9
c. Déchets de type C	9
1.5. Inventaire radiotoxique	10
2. Gestion des déchets nucléaires	11
2.1. Objectif et principes	11
2.2. Cadre législatif	12
3. Les différentes voies de la gestion	13
3.1. La séparation des radionucléides à vie longue	13
3.1.1. Principe	13
3.1.2. Les procédés pour la séparation poussée	13
3.2. La transmutation nucléaire	15
3.3. Le conditionnement des radionucléides à vie longue	15
3.3.1. Principe	15
3.3.2. La vitrification des déchets	16
3.3.3. Le conditionnement spécifiques dans des matrices céramiques	16
3.4. L'entreposage	16
3.5. Le stockage en formation géologique profonde	17
3.5.1. Barrière géologique	18
3.5.2. Barrière ouvragée	18
<b>CHAPITRE II : Transmutation des actinides mineurs</b>	<b>19</b>
1. Généralités sur les actinides	19
1.1. Présentation et caractéristiques	19
1.2. Les actinides naturels	20
1.3. Les transuraniens	21
2. Les actinides mineurs et le combustible usé	22
2.1. Principaux actinides mineurs	22
2.2. Risques et dangers liés aux actinides mineurs	23

2.3. Potentiel radiotoxique des actinides mineurs .....	23
2.4. La séparation chimique des actinides mineurs .....	25
2.5. Les caractéristiques neutroniques des actinides mineurs .....	25
3. La transmutation des actinides mineurs .....	27
3.1. Les bases physiques de la transmutation .....	27
a. L'utilisation de photons .....	27
b. L'utilisation de protons .....	28
c. L'utilisation de neutrons .....	28
3.2. Le bilan neutronique du réacteur .....	29
3.3. Modes de transmutation .....	29
3.4. Les réacteurs de transmutation .....	31
4. Fabrication des cibles de transmutation .....	32
4.1. Sélection des matériaux de matrice .....	32
4.2. Sélection des composés d'actinides .....	34
4.3. Sélection des matériaux modérateurs .....	34
5. La faisabilité scientifique de la transmutation des actinides mineurs .....	36
<b>CHAPITRE III : Méthode d'évaluation</b> .....	<b>37</b>
1. Simulation de la transmutation nucléaire .....	37
1.1. Les équations de Bateman .....	37
1.2. Les codes de calcul et les bases de données nucléaires .....	39
2. Les outils numériques employés .....	40
2.1. Le code de calcul ChainSolver .....	40
a. La page « Chain » .....	41
b. La page « Condition » .....	41
c. La page « Time » .....	42
d. La page « Calcul » .....	43
e. La page « Answers » .....	44
2.2. Le programme de présentation JANIS .....	45
2.2.1. Données de décroissance radioactive .....	46
2.2.2. Données des produits de fission .....	47
2.2.3. Données d'interaction .....	47
<b>CHAPITRE IV : Transmutation de l'<sup>241</sup>Am dans le réacteur HFR de Petten</b> .....	<b>49</b>
1. Généralités sur l'Américium-241 .....	49
1.1. Caractéristiques .....	49
1.2. Origines .....	50
1.3. Mobilité et biodisponibilité .....	50
2. Le recyclage de l' <sup>241</sup> Am dans un réacteur nucléaire .....	51

2.1. Extraction de l'Américium du combustible utilisé .....	51
2.2. Scénarios de recyclage de l'Américium .....	52
2.3. Comportement de l'Américium sous irradiation .....	53
2.3.1. Les sections efficaces de $^{241}\text{Am}$ .....	53
2.3.2. La chaîne de transmutation de $^{241}\text{Am}$ .....	54
3. La transmutation de $^{241}\text{Am}$ dans le réacteur à haut flux de Petten .....	55
3.1. Description du réacteur HFR de Petten .....	55
3.2. Les expériences d'irradiation de $^{241}\text{Am}$ .....	57
3.2.1 Test EFTTRA T4 .....	57
3.2.2 Test EFTTRA T4bis .....	58
4. Evaluation du taux de transmutation de $^{241}\text{Am}$ dans le HFR de Petten .....	58
4.1. Présentation des résultats obtenus .....	60
4.2. Discussion des résultats .....	63
4.3. Comparaison avec les résultats expérimentaux .....	66
<b>CHAPITRE V : Transmutation de <math>^{241}\text{Am}</math> dans le réacteur SM3 HFR</b> .....	<b>68</b>
1. Concept d'un réacteur destructeur des déchets nucléaires .....	68
1.1. Les réacteurs à haut flux .....	68
1.2. Le réacteur SM3 HFR .....	69
2. La transmutation de $^{241}\text{Am}$ dans le réacteur à haut flux SM3 .....	71
2.1. Evolution des cibles de $^{241}\text{Am}$ sous irradiation .....	71
2.2. Taux de transmutation de $^{241}\text{Am}$ .....	74
2.3. Evolution des actinides lors de l'irradiation .....	75
3. Efficacité de transmutation de $^{241}\text{Am}$ .....	79
<b>CONCLUSION</b> .....	<b>85</b>
<b>Annexe A</b> .....	<b>87</b>
<b>Annexe B</b> .....	<b>93</b>
<b>Liste des figures</b> .....	<b>97</b>
<b>Liste des tableaux</b> .....	<b>100</b>
<b>Références</b> .....	<b>101</b>
<b>Résumé</b> .....	<b>107</b>

## Introduction

L'énergie nucléaire a connu une croissance continue depuis son avènement. Aujourd'hui, elle est devenue une importante source d'énergie dans le monde. La progression rapide de la demande d'énergie prévue dans les cinquante prochaines années et l'épuisement des ressources fossiles constitueront un véritable défi pour les sociétés du monde entier qui devront trouver comment produire l'énergie nécessaire à la croissance économique et au développement social. A cet égard, l'énergie nucléaire présente plusieurs avantages, vu la quantité d'énergie considérable qu'elle peut produire. De plus, elle a permis de réduire la dépendance aux hydrocarbures. Cependant, les inconvénients majeurs pour l'utilisation du nucléaire à grande échelle sont : la sûreté des installations et la gestion des déchets radioactifs. L'un des axes de recherche définis pour la gestion de ces déchets est la séparation poussée sélective des éléments radioactifs à vie longue, contenus dans le combustible utilisé, suivie par leur transmutation dans des réacteurs nucléaires spécialisés vers des éléments moins nocifs à long terme.

Les actinides mineurs sont les principaux contributeurs à la radioactivité des déchets nucléaires au delà de quelques centaines d'années. C'est la raison pour laquelle la transmutation de ces éléments est envisagée. Celle-ci est techniquement efficace dans un nombre restreint de types de réacteurs nucléaires. Parmi eux, les réacteurs à haut flux HFR ont un potentiel intéressant pour la transmutation des actinides mineurs. Le principal atout de ces réacteurs, comparés aux réacteurs actuels, est leur haut flux de neutrons disponibles, en particulier les neutrons thermiques, qui conduit à une destruction importante et rapide de ces actinides.

Afin de montrer l'intérêt potentiel des réacteurs HFR pour la transmutation de l'actinide le plus radio-nocif, l'Américium-241, nous évaluons dans le cadre de ce travail de thèse, les performances de sa transmutation dans deux réacteurs HFR de recherche, le réacteur de Petten et le réacteur SM3. Cette évaluation est basée sur l'utilisation du code de calcul de transmutation ChainSolver, version 2.34. Les résultats obtenus sont comparés avec ceux déjà établis expérimentalement. Cette comparaison nous a permis de proposer un nouveau concept théorique d'incinérateur des actinides mineurs.

Le présent manuscrit est structuré en cinq chapitres. Dans *le premier chapitre*, les notions fondamentales de déchets nucléaires sont présentées (leur définition, leur classement et leurs origines) ainsi que les trois voies de leur gestion à long terme.

Dans *le deuxième chapitre*, nous décrivons les caractéristiques physiques et chimiques des actinides mineurs, ainsi que les scénarios et les stratégies établis pour leur transmutation.

*Le troisième chapitre* explicite de manière détaillée le code de calcul ChainSolver, version 2.34, utilisé pour l'évaluation des taux de transmutation de l'Américium. Le programme de reconstruction des spectres neutroniques JANIS est aussi présenté.

*Le quatrième chapitre* est consacré à l'évaluation numérique des taux de transmutation de l'Américium-241 recyclé dans le réacteur HFR de Petten, en débutant par une présentation générale de cet actinide mineur. Les taux de transmutation évalués sont comparés avec ceux mesurés expérimentalement dans les tests T4 et T4bis, afin d'estimer la précision de calculs du code utilisé.

*Le cinquième chapitre* est dédié à l'évaluation théorique de la transmutation de l' $^{241}\text{Am}$  au sein du cœur du réacteur SM3 HFR, qui possède des flux neutroniques plus intenses que  $10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ , au niveau du bloc central et du réflecteur. A la fin, nous interprétons les efficacités et les performances de la transmutation de l' $^{241}\text{Am}$  dans les deux réacteurs étudiés afin de proposer un nouveau concept de réacteur HFR destructeur des déchets nucléaires.

## Chapitre I

### Gestion des déchets nucléaires à vie longue

#### 1. Les déchets nucléaires

De nos jours, les déchets radioactifs et leur gestion représentent le principal obstacle à tout développement massif du nucléaire. Plusieurs solutions sont activement étudiées, depuis une dizaine d'années, principalement le conditionnement et le stockage des déchets nucléaires à la fin du cycle du combustible. La transmutation de ces déchets, en particulier ceux à haute activité et à vie longue, constitue l'une des options prometteuses pour réduire leur potentiel radiotoxique.

##### 1.1. Définition

D'après la définition de L'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA), toute matière est considérée comme un déchet nucléaire lorsque celle-ci contient des radionucléides en concentrations supérieures aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles dans les matériaux propres à une utilisation sans contrôle et pour laquelle aucun usage n'est prévu [1].

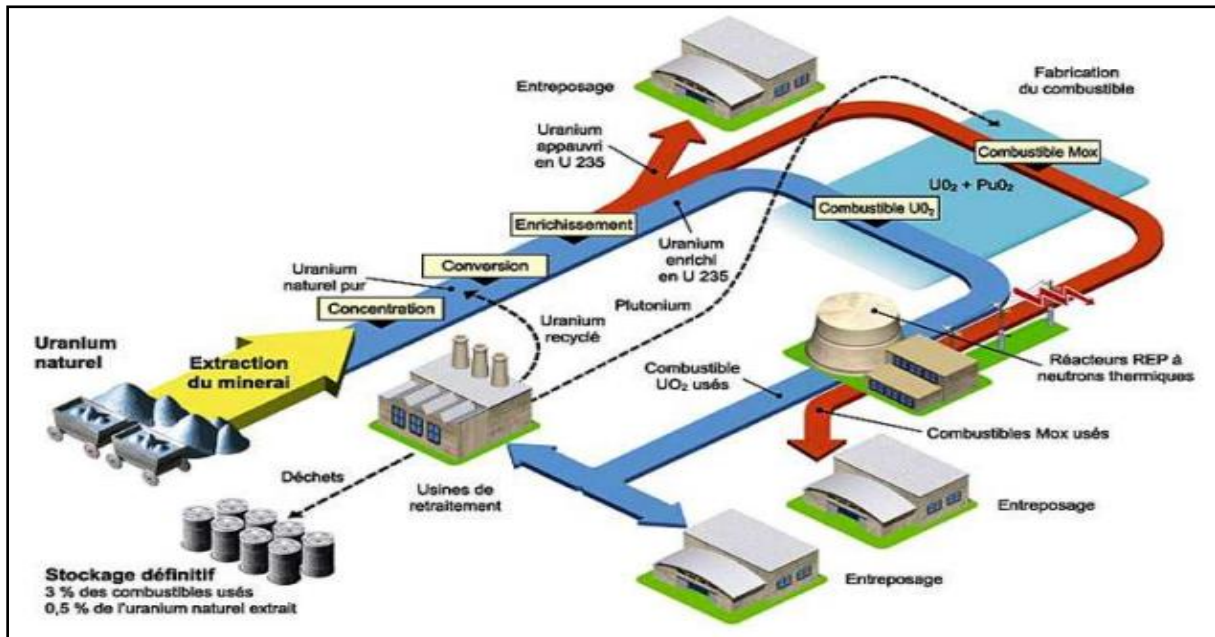
Certains éléments comme le Plutonium et l'Uranium appauvri ne sont pas considérés comme déchets nucléaires puisque il est possible de les utiliser en tant que combustibles sous forme de MOX (Mixed OXide, combustible mixte d'oxyde d'Uranium et d'oxyde de Plutonium) [2, 3, 4].

##### 1.2. Origines des déchets nucléaires

La provenance des déchets nucléaires est diverse. Une faible quantité provient des mines d'extraction d'Uranium, des laboratoires de recherche, des centres médicaux ainsi que des diverses industries du nucléaire qui réalisent les opérations de transformation de l'Uranium, de fabrication des combustibles nucléaires et de maintenance des installations. Cependant, la grande quantité des déchets radioactifs provient du *cycle du combustible nucléaire* [3, 5].



*Le combustible nucléaire* est accompagné durant tout *son cycle*, présenté à la figure 1.1, par la production de différentes formes des déchets nucléaires [4, 5].



**Fig.1.1.** Cycle du combustible nucléaire [6].

*En amont du cycle*, le combustible nucléaire subit toutes les opérations de préparation nécessaires pour être destiné à la production énergétique en réacteur nucléaire. Il s'agit essentiellement de déchets très faiblement radioactifs avec un impact mineur sur l'environnement même si leur volume est considérable [5, 7] :

- Lors de l'extraction minière, les premiers déchets radioactifs sont produits. Ces déchets sont constitués principalement des matériaux et matériels hors service (matériel de forage, d'excavation, de chargement, de transport, ...). Cependant, ils ne sont considérés comme tel que lorsque la teneur en Uranium du minerai exploité est supérieure à 1 % [7].
- Lors de la concentration du minerai, les résidus du traitement constituent les principaux déchets radioactifs. Ces résidus contiennent tous les éléments en dehors de l'Uranium à savoir le Thorium-232, le Protactinium-231 et tous leurs descendants. A trois tonnes de l'Uranium du minerai correspondent, en total, des activités de 8 Ci en alpha et 6 Ci en gamma [7].
- L'opération d'enrichissement et les procédés de fabrication des éléments combustibles constituent également une source de déchets radioactifs. Ces déchets sont essentiellement des matériels contaminés par suite de leur utilisation en milieu actif, des déchets liquides sous forme de solutions de carbonate de Potassium contenant des composés Uranifères, des filtres chargés en Uranium, des gaines défectueuses,... [7].

***Durant le fonctionnement du réacteur***, différents types de déchets sont produits, essentiellement à faible activité Bêta<sup>+</sup>, Bêta<sup>-</sup> et gamma. Ces déchets peuvent se trouver sous différentes formes [4, 7] :

- ✓ *Des déchets gazeux* qui parviennent du circuit primaire contenant des produits de fission gazeux.
- ✓ *Des déchets liquides* formés des eaux usées provenant du circuit primaire.
- ✓ *Des déchets solides* qui sont produits lors des traitements des déchets liquides et gazeux.

***En aval du cycle***, les déchets du retraitement du combustible utilisé représentent la catégorie la plus importante des déchets nucléaires. On y trouve les déchets de moyenne et de haute activité et à vie longue [5, 7].

### **1.3. Le combustible utilisé**

Le combustible de base des réacteurs électronucléaires à eau légère est constitué d'Uranium (sous forme d'oxyde), faiblement enrichi en <sup>235</sup>U (< 5 %), qui est son seul isotope fissile. Au fur et à mesure qu'il produit de l'énergie, le combustible nucléaire s'épuise en matière fissile, jusqu'au moment où il devient nécessaire de décharger les assemblages combustibles pour les remplacer par des assemblages neufs [8]. Sous l'effet des réactions nucléaires qui se produisent au sein du combustible nucléaire, celui-ci subit un certain nombre de transformations importantes, entraînant une évolution de sa composition tout au long de son utilisation en réacteur. A l'issue de son séjour en réacteur, le combustible est appelé combustible utilisé [4, 8].

Dans les conditions normales d'exploitation, un assemblage de combustible Oxyde d'Uranium (UOX) utilisé provenant d'un réacteur à eau pressurisée REP contient en masse 94 % d'Uranium et environ 1 % de Plutonium, matériaux qui possèdent un potentiel énergétique important. Les 5 % restants se répartissent entre [3, 9] :

- *Des produits de fission* (environ 4 %), qui sont les fragments du noyau d'Uranium qui a fissionné, dont 0.3 % d'éléments à vie longue et 0.2 % d'éléments à vie moyenne [9].
- *Des actinides mineurs* (environ 0.1 %), qui sont dus à des noyaux d'Uranium qui ont capturé des neutrons sans se scinder en deux : Américium, Curium et Neptunium [3, 9].
- *Des produits d'activation*, formés par la capture de neutrons dans les matériaux de structure (grilles de support, coques, et embouts des gaines qui enrobent les pastilles de combustible). Leur contribution est relativement secondaire [9].

La composition moyenne en fin de cycle du combustible, initialement enrichi en  $^{235}\text{U}$  à 3.5 %, d'un réacteur REP 900 ayant un taux de combustion de 33 GWj/t et après 3 ans de fonctionnement, est donnée dans le tableau suivant [3] :

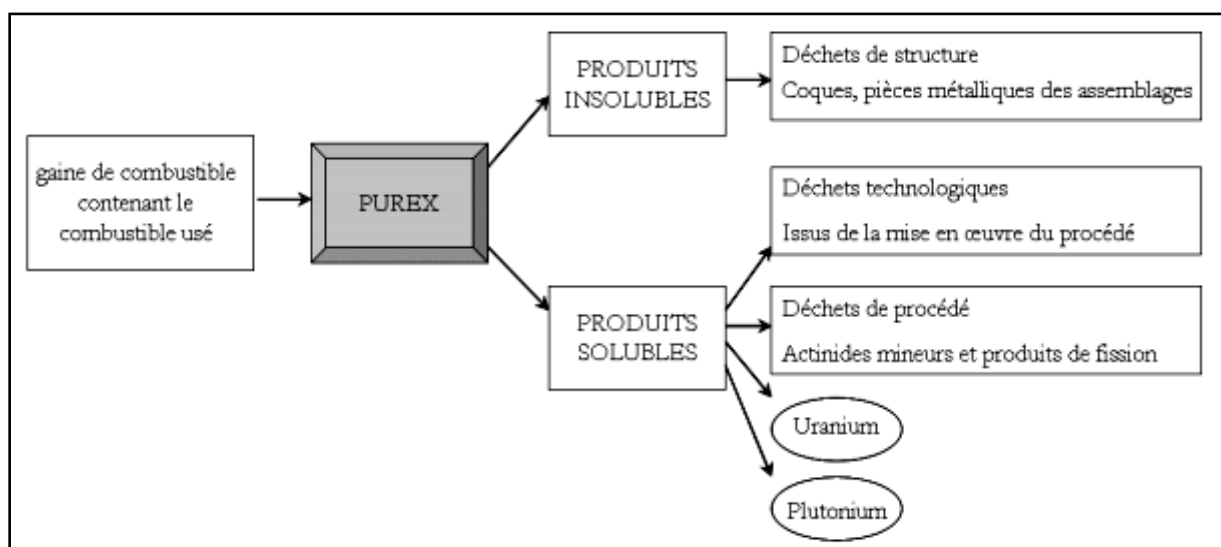
Radionucléides	Période (année)	Chargement (Kg/an)	Déchargement (Kg/an)
Uranium-235	$7.08 \cdot 10^8$	751	221
Uranium-236	$2.34 \cdot 10^7$		88
Uranium-238	$4.47 \cdot 10^9$	20734	20204
Total Uranium		21485	20513
Plutonium-238	87.7		3.3
Plutonium-239	24119		123.1
Plutonium-240	6569		47.5
Plutonium-241	14.4		25.4
Plutonium-242	$3.7 \cdot 10^5$		10.5
Total Plutonium			209.8
Neptunium-237	$2.14 \cdot 10^6$		8.8
Américium-241	432.2		4.4
Américium-243	7380		2.2
Curium-243	28.5		0
Curium-244	18.1		0.5
Curium-245	8500		0.06
Total Actinides Mineurs			16
Strontium-90	28		10.5
Césium-137	30		24.3
Total PFVM			34.8
Sélénium-79	70000		0.11
Zirconium-93	$1.5 \cdot 10^6$		15.5
Technétium-99	$2.1 \cdot 10^5$		17.7
Palladium-107	$6.5 \cdot 10^6$		4.4
Etain-126	$10^5$		0.44
Iode-129	$1.57 \cdot 10^7$		3.9
Césium-135	$2 \cdot 10^6$		7.7
Samarium-151	93		0.33
Total PFVL			50.1

**Tab.1.1.** Inventaire des matières au chargement et au déchargement d'un réacteur REP [3].

Le devenir du combustible irradié dépend dans une large mesure de la stratégie en matière de cycle du combustible. Pour la moitié de la capacité électronucléaire mondiale, on pratique le retraitement, la récupération du Plutonium et de l'Uranium, la vitrification des résidus et l'évacuation des déchets (le cycle fermé) [2]. C'est ce que font notamment la France,

le Royaume-Uni, le Japon, la Grande-Bretagne, l'Allemagne, la Belgique, la Suisse, la Chine, l'Inde, la communauté d'états indépendants et les pays de l'ancien bloc Soviétique. De grandes installations de retraitement ont été construites et sont en service en France et au Royaume-Uni, et d'autres sont en construction au Japon et en Russie [10, 11]. L'autre moitié de la capacité nucléaire mondiale produit du combustible irradié comme déchet. C'est ce que l'on appelle le cycle ouvert, adopté aux Etats-Unis, au Canada, en Suède, en Espagne et dans quelques autres pays. La tendance actuelle consiste à stocker pour une longue période le combustible irradié dans des installations artificielles avant de l'évacuer dans des formations géologiques appropriées [10, 11].

**Le procédé de traitement PUREX :** Le combustible usé est traité par le procédé PUREX (Plutonium Uranium Refining by EXtraction), comme le schématise la figure 1.2. Après leur sortie du réacteur, les assemblages sont entreposés dans des piscines de refroidissement afin de laisser décroître la température et l'activité des assemblages. Cet entreposage est de l'ordre de 5 ans avant traitement [12]. Les crayons de combustibles sont ensuite cisailés en morceaux de deux à trois centimètres de long appelés coques qui tombent dans le dissolvant. Ce dernier contient un bain d'acide nitrique à chaud dont le rôle est de séparer les éléments de structure du combustible. L'étape suivante appelée la clarification (centrifugation ou filtration) permet d'extraire les produits de fission insolubles et les petits fragments de gaine appelés « fines et éclats » de dissolution. Dans la suite du procédé, le tributyl-phosphate (TBP) permet de séparer l'Uranium et le Plutonium des produits de fission [12, 13].



**Fig.1.2.** Schéma du procédé de traitement du combustible usé [12].

Le Plutonium récupéré est réutilisé actuellement sous forme de combustible MOX, qui est un mélange d'oxyde de Plutonium issu du traitement des combustibles usés et d'oxyde d'Uranium (naturel ou appauvri). Le MOX est utilisé depuis 40 ans dans les centrales nucléaires [11, 14]. En effet, on doit pouvoir ajouter des barres de contrôle pour mieux gérer les flux neutroniques modifiés [11]. L'Uranium séparé est enrichi pour atteindre une teneur en isotope fissile suffisante pour fabriquer le combustible URE (Uranium de Recyclage Enrichi) [14].

Les autres déchets non réutilisables (déchets ultimes), dont la masse représente seulement 3 à 5 % de celle du combustible, doivent faire l'objet de traitements en vue de leur gestion [12]. Par conséquent, le retraitement réduit d'une façon importante le volume des déchets nucléaires et en même temps économise les ressources naturelles d'Uranium [14].

#### **1.4. Classification des déchets nucléaires**

Les déchets nucléaires sont classés, selon les deux caractéristiques suivantes [3, 15, 16] :

- Leur niveau de radioactivité, qui s'exprime habituellement en Becquerel par gramme, correspond à la quantité des rayonnements émis par les radionucléides. On distingue quatre niveaux de radioactivité [15, 16] :

1. Déchets de très faible activité (TFA), dont leur activité est inférieure à 100 Bq/g.
2. Déchets de faible activité (FA), dont leur activité est approximativement comprise entre 100 et 100 000 Bq/g.
3. Déchets de moyenne activité (MA), dont leur activité est comprise entre cent mille et cent millions de Becquerels par gramme.
4. Déchets de haute activité (HA), qui ont un niveau de radioactivité supérieure au milliard de Becquerels par gramme.

- Leur période de décroissance radioactive, qui est le temps nécessaire pour que le nombre de noyaux du radionucléide considéré diminue de moitié [3, 16] :

1. Déchets à vie très courte si leur période radioactive est inférieure à 100 jours.
2. Déchets à vie courte si leur période est inférieure à 30 ans.
3. Déchets à vie longue si leur période dépasse les 30 ans.

En générale, les déchets radioactifs sont qualifiés en trois catégories A, B et C.

**a. Déchets de type A**

Ce sont les déchets de faible activité et à vie courte. Ils proviennent essentiellement des installations nucléaires (objets contaminés : gants, filtres...), et pour une autre part, des usines du combustible, des laboratoires de recherche, des hôpitaux, des universités et de divers utilisateurs de radioéléments. Ces déchets représentent 90 % du volume des déchets radioactifs, et contiennent 4 % de la radioactivité totale. Pour ce type de déchets, une solution industrielle de gestion existe : ils subissent un traitement qui consiste à diminuer leur volume par incinération, évaporation, découpage et compactage. Le produit obtenu est ensuite conditionné dans des fûts spéciaux eux mêmes placés dans des centres de stockage en surface surveillés [3, 11, 15].

**b. Déchets de type B**

Ce sont les déchets de moyenne activité et à vie longue. Ils contiennent des quantités significatives de radioéléments à période longue et dégagent faiblement de la chaleur. Ils proviennent principalement des usines du cycle du combustible (effluents, coques et embouts). Les déchets B sont aujourd'hui entreposés en surface dans des bâtiments spécialement aménagés sur leur site de production [3, 11, 15].

**c. Déchets de type C**

Ce sont les déchets de haute activité et à vie longue (HAVL). Ils contiennent des radioéléments émetteurs alpha, bêta et gamma dont la période peut s'étendre sur plusieurs milliers voire millions d'années. Ils proviennent essentiellement du traitement du combustible usé issu des centrales nucléaires. Les principaux éléments présents dans les combustibles usés sont, par ordre de radioactivité décroissante, le Plutonium, l'Uranium, les actinides mineurs (Américium, Curium et Neptunium) et certains produits de fission (Technétium-99, Césium-135, Iode-129, ...). Souvent, le Plutonium et l'Uranium réintègrent la filière du combustible et n'entrent donc pas dans la catégorie des déchets nucléaires. Les autres sont actuellement vitrifiés dans du verre [3, 15].

**Remarque**

En comparaison avec les autres types de déchets nucléaires, les déchets de catégorie C sont à la fois caractérisés par des émissions intenses de rayonnements nocifs qui peuvent parfois durer pendant des milliers, voire des millions d'années, mais aussi par une

puissance thermique résiduelle importante (de part les rayonnements qu'ils émettent). Pour ces différentes raisons, la gestion finale de ces déchets est particulièrement délicate, à la fois du fait de leur extrême dangerosité, mais aussi de part les autres contraintes qu'ils imposent [2].

### 1.5. Inventaire radiotoxique

Lors des décroissances radioactives, les noyaux émettent des radiations ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ) qui déposent leur énergie dans la matière environnante. Dans le corps humain, ces radiations peuvent provoquer des lésions dans les tissus ou les organes. La radiotoxicité  $R(t)$ , exprimée en Sievert Sv (ou en Sv par tonne de combustible), mesure le risque potentiel lié à l'ingestion ou à l'inhalation de radionucléides et se calcule comme suit [7, 15] :

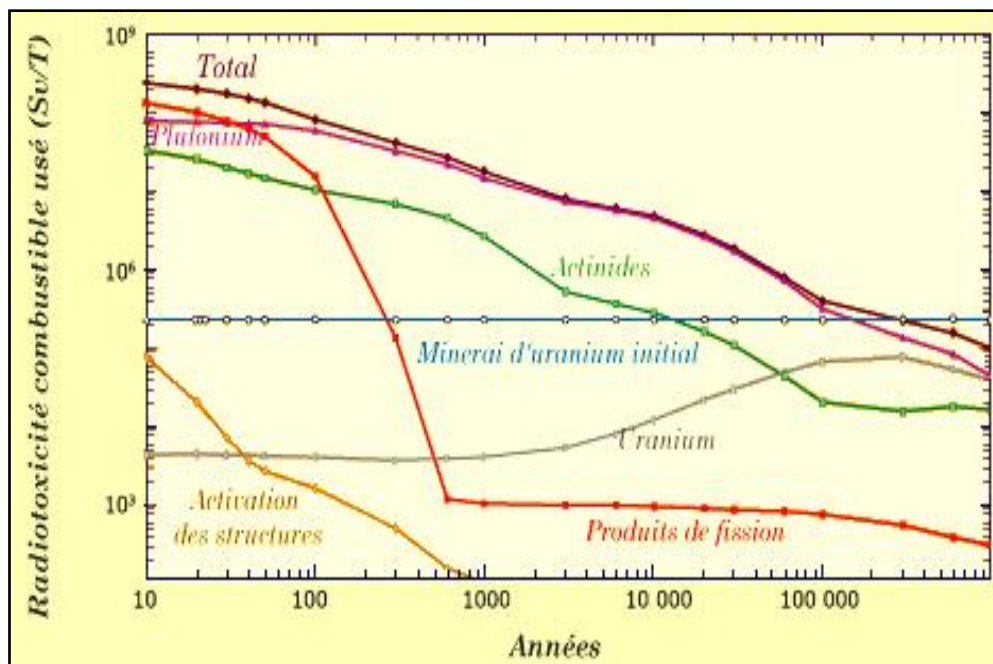
$$R(t) = \sum_i D_i A_i(t)$$

Où :  $D_i$  est le facteur de dose effective correspond à la toxicité relative induite par un Becquerel de radionucléide considéré  $i$ , en Sv/Bq. Il tient compte du métabolisme du radionucléide dans l'organisme, de la nature et de l'énergie des rayonnements émis, de la sensibilité des tissus, et du temps mis par l'organisme pour éliminer le radionucléide [3, 15].  $A_i(t)$  est l'activité en Becquerel (correspondant à une désintégration par seconde). L'activité d'un radionucléide  $i$  est le nombre de désintégrations de ses noyaux par seconde. Elle évolue au cours du temps en fonction du nombre de noyaux présents  $N_i(t)$  suivant cette relation [15] :

$$A_i(t) = \lambda_i N_i(t)$$

Où :  $\lambda_i$  est la constante de décroissance de ce radionucléide ( $s^{-1}$ ).

La figure 1.3 donne l'évolution de la radiotoxicité (ou l'inventaire radiotoxique) dans le temps d'un combustible  $UO_2$  irradié [17]. Cette dernière est due principalement aux produits de fission pendant environ trois centaines d'années, aux actinides mineurs pendant environ vingt milles ans et au Plutonium produit pendant environ trois cents milliers d'années [9].



**Fig.1.3.** Evolution au cours du temps de l'inventaire radiotoxique d'un combustible usé [17].

Le Plutonium est le principal contributeur à l'inventaire radiotoxique puisqu'il représente plus de 80 % après 300 ans. Viennent ensuite les actinides mineurs, dont la radiotoxicité dépasse celle des produits de fission (PF) dès 100 ans [3]. Néanmoins, leur toxicité potentielle nécessite des méthodes de gestion très spécifiques [9].

## 2. Gestion des déchets nucléaires

### 2.1. Objectif et principes

L'objectif de la gestion à long terme des déchets radioactifs est de protéger l'homme et son environnement contre les effets des matières les constituant et notamment contre les risques radiologiques. Il faut donc éviter toute émission ou dissémination de matières radioactives en isolant les déchets de l'environnement. Sommairement, cette gestion obéit aux principes suivants [9] :

- Produire le moins possible de déchets.
- Réduire autant que possible le caractère dangereux des déchets.
- Prendre en compte les spécificités de chaque catégorie de déchets.
- Choisir des dispositions qui minimisent les charges (de surveillance, de maintenance) pour les générations futures.



## 2.2. Cadre législatif

Certains pays, comme la France, ont élaborés un cadre juridique pour la gestion des déchets radioactifs. Les lois définissent les priorités et concernent la séparation et la transmutation, le stockage, le conditionnement et l'entreposage.

Un programme de recherche sur la gestion des déchets radioactifs a été initié en France par *la loi n°91-1381 du 30 décembre 1991*, connue sous le nom de « *loi Bataille* », du nom de son rapporteur au parlement [18]. Elle fixe un moratoire de 15 ans sur toute décision concernant le devenir à long terme des déchets de haute activité et à vie longue et stipule que le parlement doit se voir remettre un rapport global au cours de l'année 2006. Cette loi s'articule autour de trois axes complémentaires qui prennent en compte toute la chaîne de gestion des déchets, du tri jusqu'au stockage [3, 15]. Ils se définissent ainsi :

**Axe 1 : La séparation poussée et la transmutation des déchets**, dont l'objectif est de trier et d'extraire les radioéléments de haute activité à vie longue afin de les transformer en d'autres éléments, moins toxiques et à durée de vie plus courte [18].

**Axe 2 : Le stockage en formation géologique profonde**, dont l'objectif est de mettre au point des moyens de stockage définitif en sous-sol, en privilégiant les concepts permettant la réversibilité. Cette recherche passe par la création de laboratoires souterrains [18].

**Axe 3 : Le conditionnement et l'entreposage de longue durée**, dont l'objectif est de mettre au point les conditionnements des déchets radioactifs et leurs modalités d'entreposage de longue durée [18].

*La loi de 1991* fixait un rendez-vous 15 ans plus tard, pour réaliser un bilan des résultats obtenus, afin de proposer un projet de loi. Finalement, *le 28 juin 2006, la loi n°2006-739* relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs, a été votée [19]. Elle prolonge les recherches sur la réduction de la quantité et de la radioactivité des déchets, par leur séparation chimique plus poussée et leur transmutation. De même, les études sur l'entreposage et le stockage doivent mener au choix d'un site afin de commencer sa construction en 2015. La loi impose également une réversibilité du stockage durant au moins cent ans. Cette loi prévoit également l'élaboration tous les trois ans, d'un plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs. Il doit faire le point sur les modes de gestion existants, les besoins prévisibles en installations d'entreposage et de stockage. Puis, il fixe les nouveaux objectifs à atteindre [15, 19]. La loi demande l'évaluation par les exploitants des

charges financières futures pour le démantèlement et la gestion des déchets. Elle fonde également la Commission Nationale d'Evaluation Financière (CNEF) et reconduit la Commission Nationale d'Evaluation (CNE) créée par la loi de 1991 [15].

### **3. Les différentes voies de la gestion**

#### **3.1. La séparation des radionucléides à vie longue**

##### **3.1.1. Principe**

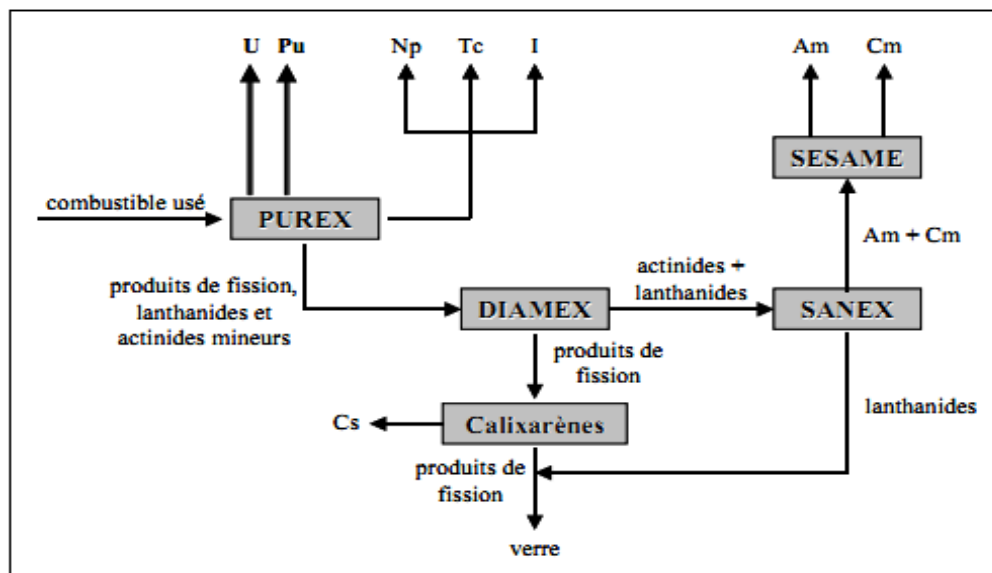
Une des raisons de la complexité du traitement des déchets nucléaires réside dans la très grande diversité des radionucléides, tant du point de vue de leurs propriétés physico-chimiques que de leur activité et de la nature de leurs rayonnements. Séparer ces radionucléides permettrait d'envisager des solutions spécifiques à chacun et ainsi de réduire considérablement le volume des colis de déchets de haute activité à vie longue. Le tri du combustible usé se fait en deux étapes. La première consiste à extraire ce qui peut être valorisé énergétiquement comme le Plutonium et l'Uranium. Il subsiste alors les déchets ultimes, qui peuvent subir une séparation plus poussée en vue d'une gestion sélective [3, 20].

##### **3.1.2. Les procédés pour la séparation poussée**

Deux voies de séparation poussée ont été explorées : *l'hydrométallurgie*, basée sur des procédés de séparation par solvants en phase aqueuse, qui s'inscrit dans la continuité du procédé PUREX actuel, et *la pyrochimie* qui s'appuie sur des procédés de séparation en milieu sels fondus [9].

La voie d'exploration principale est celle utilisant *les procédés hydrométallurgiques* consistant à extraire les radioéléments à partir d'une solution dans laquelle les déchets ont été préalablement dissous. La figure 1.4 présente le schéma de principe de la séparation des radionucléides à vie longue. L'extraction s'effectue à l'aide de molécules présentant des affinités sélectives pour les radionucléides. Ainsi, l'extraction de l'Uranium et du Plutonium est réalisée grâce au procédé PUREX qui tire partie de l'affinité du phosphate de tributyle (TBP) pour ces deux éléments [13]. Par ailleurs, les recherches montrent qu'il est possible d'utiliser les propriétés d'extraction du TBP pour l'Iode, le Technétium et le Neptunium. Le combustible usé ne se retrouve plus alors composé que de produits de fission, de lanthanides et d'actinides mineurs. L'extraction des produits de fission met en jeu le procédé DIAMEX (DIAMide EXtraction) qui emploie des molécules de la famille des diamides. De ces produits

de fission, il est nécessaire de retirer le Césium, dont deux des isotopes posent problème. Le  $^{135}\text{Cs}$  possède une période élevée (2.3 millions d'années) tandis que le  $^{137}\text{Cs}$  possède une période faible (30 ans) mais présente un très fort pouvoir thermogène. L'extraction du Césium des autres produits de fission est réalisée par emploi des molécules calixarènes. La séparation de l'Américium et du Curium du reste des déchets, constitués d'un mélange actinides + lanthanides, s'effectue en deux étapes supplémentaires. La première a pour but la séparation lanthanides - actinides par le procédé SANEX (Selective ActiNide EXtraction) qui met en jeu l'utilisation d'agents extractants discriminants (bis-triazinyl-pyridine par exemple). Enfin, le procédé SESAME (Selective Extraction and Separation of Americium by Means of Electrolysis), basé sur une oxydation et une complexation sélective de l'Américium, permet la séparation Américium-Curium [20].



**Fig.1.4.** Schéma simplifiant les différents procédés de la séparation poussée [3].

Le niveau de performance assigné à la séparation poussée est de récupérer [9, 20] :

- ✓ 99.9 % de l'Américium et du Curium contenus dans la solution de haute activité issue du traitement du combustible usé par le procédé PUREX.
- ✓ plus de 99 % du Neptunium et de l'Iode présents dans le combustible usé.
- ✓ plus de 99 % de la fraction du Technétium et 99.9 % de celle du Césium.

*Les procédés pyrochimiques* (procédés à haute température entre 250 °C et 1 200 °C en milieu sel fondu) ont été étudiés comme une alternative innovante adaptée au traitement de

certaines combustibles et cibles de transmutation difficilement solubles dans l'acide nitrique utilisé avec le procédé PUREX [9, 20].

Compte tenu des résultats obtenus, la séparation des éléments à vie longue est possible. De nouvelles molécules et de nouveaux procédés d'extraction ont été définis et testés en milieu radioactif. Les performances de séparation en laboratoire sont très satisfaisantes et conformes aux objectifs initiaux des recherches avec la récupération des actinides mineurs et des produits de fission [20].

### **3.2. La transmutation nucléaire**

La transmutation est un traitement qui a pour but de transformer les radionucléides de haute activité à vie longue en éléments de période plus courte et d'activité plus faible. Elle concerne les actinides mineurs (Neptunium, Américium et Curium) et peut être étendue à certains produits de fission (Technétium-99, l'Iode-129 et Césium-137 par exemple) [3].

La transmutation consiste à bombarder le noyau cible avec des particules. Le neutron est la particule la plus favorable à la transmutation puisqu'elle est non chargée et qu'elle se trouve en très grande quantité dans les réacteurs nucléaires. De ce fait, il est envisageable de transmuter les éléments radioactifs dans les réacteurs mêmes où ils sont produits. La transmutation se fait [2, 3] :

- Par capture neutronique pour les produits de fission.
- Par fission pour les actinides mineurs.

Cette voie sera plus détaillée ultérieurement dans le deuxième chapitre de ce manuscrit.

### **3.3. Le conditionnement des radionucléides à vie longue**

#### **3.3.1. Principe**

Le conditionnement a pour objet de mettre le déchet sous forme solide et stable afin de confiner sa radioactivité. Il consiste à placer les radionucléides dans une matrice dont les qualités de confinement et de résistance aux agressions, externes aussi bien qu'internes, peuvent être garanties durant toute la durée du risque, durée qui dépend de la période et de l'activité des éléments radioactifs considérés [3, 14]. On distingue deux types de matrices de conditionnement : les matrices globales comme les verres, à l'intérieur desquelles sont incorporés les radioéléments non séparés, et les matrices spécifiques comme les céramiques,

destinées au conditionnement des radionucléides purs issus des étapes de la séparation poussée [3].

### **3.3.2. La vitrification des déchets**

La vitrification des déchets nucléaires est un procédé de confinement mis en place dès les années 60. Le verre, de par sa structure désordonnée, est en mesure d'accueillir tous les éléments présents dans les déchets issus du traitement par le procédé PUREX. A ce niveau du traitement, les déchets sont composés de produits de fission et d'actinides mineurs. Le confinement dans les verres se déroule en deux étapes : évaporation-calcination des solutions issues du traitement de combustible usé suivie de la vitrification du calcinat obtenu. En France, le verre utilisé est le verre R7T7, composé à environ 80 % de  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Na}_2\text{O}$ . Le taux d'incorporation d'oxyde de produits de fission varie de 12 à 18 % [3].

### **3.3.3. Le conditionnement spécifique dans des matrices céramiques**

Pour les actinides mineurs, principaux contributeurs à l'inventaire radiotoxique, mais également pour l'Iode et le Césium, éléments difficilement confinables du fait de leur très grande mobilité, des procédés de conditionnement spécifique sont envisagés. A l'issue de l'étape de séparation poussée, ces éléments sont disponibles sous forme de composés purs (oxalates et oxydes pour les actinides mineurs, iodure de Sodium pour l'Iode et nitrates pour le Césium). Il est alors possible de les incorporer dans des matrices minérales. L'intérêt est que le radioélément fait partie intégrante de la structure cristallographique de la matrice. La nature et l'énergie des liaisons ainsi formées sont une garantie de la stabilité à long terme du colis [3].

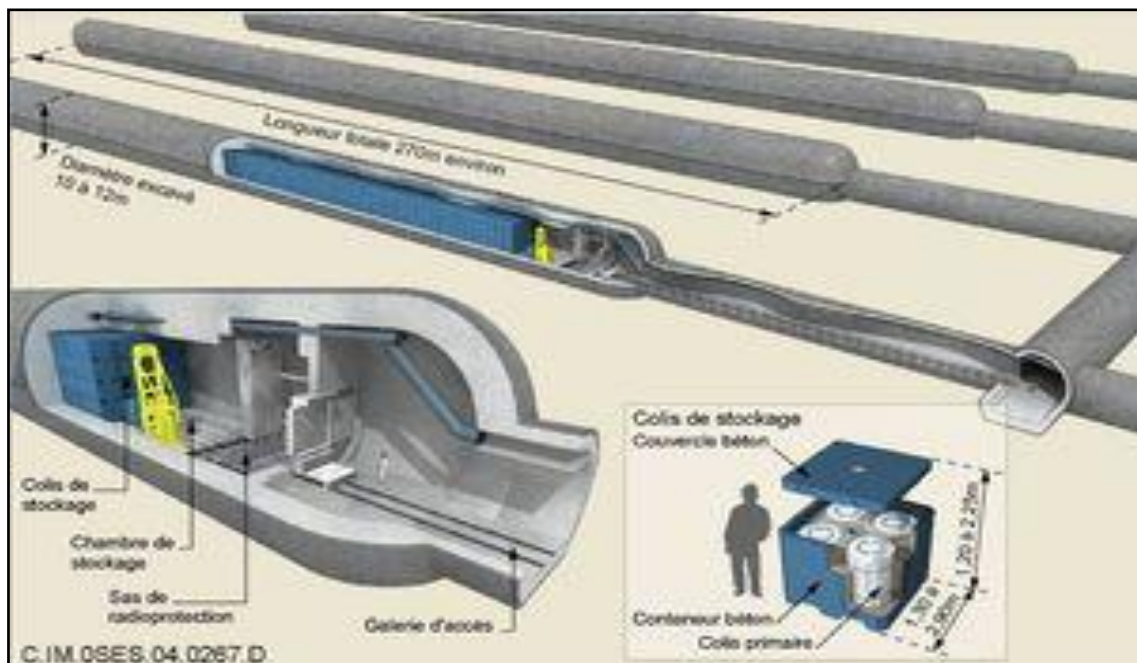
### **3.4. L'entreposage**

Par définition un entreposage est temporaire, correspond à des solutions provisoires de gestion. Il demande une maintenance et suppose donc que la société en assure le contrôle pendant des siècles. Comme la stabilité de la société ne peut être supposée sur de telles périodes, il faut prendre en compte le cas où cette maintenance serait interrompue pendant des périodes assez longues (10 ans) sans diminuer la sûreté de l'entreposage. Ceci implique que les déchets entreposés soient conditionnés et que les composants soient aussi simples et passifs que possible. Concernant les HAVL, les études ont retenu l'utilisation de conteneurs collectifs en acier pouvant accueillir plusieurs colis CSD (Conteneur Standard de Déchets). La

corrosion de ces conteneurs est estimée (dans les conditions normales) à 0.8 % de leur épaisseur en 350 ans. Les colis ne produisant pas ou peu de chaleur (MAVL) seraient placés dans un conteneur collectif en béton. L'entreposage se ferait alors en surface ou en subsurface, comme il peut être de longue durée (100 à 300 ans) [21].

### 3.5. Le stockage en formation géologique profonde

Le stockage en formation géologique profonde est une solution alternative à la transmutation envisagée aujourd'hui pour les déchets de haute activité et à vie longue. Cela permet de placer les colis dans un environnement stable sur des échelles de temps géologiques et ainsi de s'affranchir de la surveillance humaine qu'il est impossible de garantir sur des longues périodes. Le principe du stockage en formation géologique profonde dans des alvéoles (galeries) repose sur un concept multi-barrière [3, 5], voir la figure 1.5. Le colis dans lequel est présent le radionucléide constitue la première barrière. Vient ensuite la barrière ouvragée, faite de matériaux rapportés (argiles compactées, bétons...). Enfin, la roche même constitue la troisième barrière (barrière géologique). Le rôle de ces trois barrières est de retarder l'arrivée de l'eau, de retenir les radioéléments afin qu'ils n'intègrent pas la biosphère et aussi d'éviter toute intrusion humaine ou animale, accidentelle ou volontaire [3, 5].



**Fig.1.5.** Stockage en formation géologique profonde dans des alvéoles (galeries) [22].

### **3.5.1. Barrière géologique**

Les formations géologiques susceptibles d'accueillir les déchets sont choisies pour leur stabilité à l'échelle géologique et pour leur aptitude à accueillir une installation suffisamment grande et à prévenir ou réduire considérablement toute libération éventuelle de radioactivité. Une caractéristique essentielle de ces formations est la lenteur de l'écoulement des eaux souterraines parce que c'est potentiellement la voie de migration la plus probable vers l'environnement humain. Les principaux types de formations étudiées jusqu'à présent sont les formations salines, les formations sédimentaires (argiles et schistes), les formations cristallines (granite) et les formations volcaniques (basalte, tuf) [5].

### **3.5.2. Barrières ouvragées**

Les barrières ouvragées sont destinées à compléter les barrières naturelles pour assurer le confinement physique et chimique des colis de déchets. Elles sont complétées par l'emballage d'acier ou de béton et par le matériau de remplissage qui enrobe les conteneurs dans le site de stockage. De nombreux modèles de conteneurs et de matériaux ont été proposés en fonction de l'environnement géologique et de leur fonction de sûreté spécifique. Les barrières ouvragées visent à ralentir la migration vers les eaux souterraines. Elles peuvent aussi créer des conditions chimiques qui garantissent que dans le cas improbable d'une fuite du colis de déchets, le déchet ne pourra pas se dissoudre facilement et que tout déchet dissous sera immobilisé [5].

## Chapitre II

### Transmutation des actinides mineurs

#### 1. Généralités sur les actinides

##### 1.1. Présentation et caractéristiques

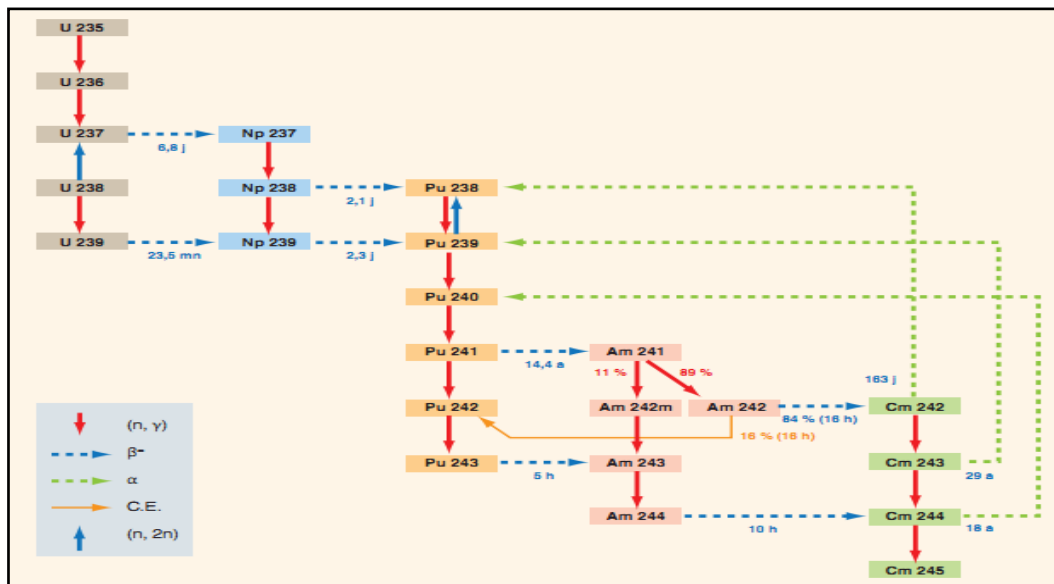
Les actinides sont une série de 15 éléments chimiques du tableau périodique, de l'Actinium ( $z = 89$ ) au Lawrencium ( $z = 103$ ), présentés dans le tableau 2.1. Ces éléments possèdent des propriétés chimiques voisines et sont des métaux lourds, tous radioactifs. Ils sont tous fissibles en neutrons rapides et quelques-uns en neutrons thermiques [7, 23]. Les actinides abondants à l'état naturel, sont l'Uranium, le Thorium, l'Actinium et le Protactinium [23]. Le reste des actinides sont des éléments artificiels plus lourds que l'Uranium, appelés les Transuraniens. Ils sont formés dans les réacteurs nucléaires par captures successives sur les isotopes d'Uranium ( $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ ) suivies par différents processus de désintégration naturelle (captures électroniques, désintégrations  $\alpha$ ,  $\beta^+$  et  $\beta^-$ ) [7, 23].

Actinides	Numéro atomique du noyau	Isotopes connus	Isotope le plus stable	Période de l'isotope le plus stable	Etat d'oxydation
Ac	89	3	227	21.8 ans	2, 3
Th	90	9	232	14 $10^9$ ans	2, 3, 4
Pa	91	5	231	23500 ans	2, 3, 4, 5
U	92	9	238	4.47 $10^9$ ans	2, 3, 4, 5, 6
Np	93	4	237	2.14 $10^6$ ans	3, 4, 5, 6, 7
Pu	94	5	244	80.8 $10^6$ ans	3, 4, 5, 6, 7, 8
Am	95	19	243	7370 ans	2, 3, 4, 5, 6, 7
Cm	96	8	247	15.6 $10^6$ ans	2, 3, 4, 6, 8
Bk	97	2	247	1400 ans	2, 3, 4
Cf	98	5	251	900 ans	2, 3, 4
Es	99	-	252	1.29 ans	2, 3, 4
Fm	100	-	257	100.5 jours	2, 3
Md	101	-	258	52 jours	2, 3
No	102	-	259	58 minutes	2, 3
Lr	103	-	262	3.6 heures	3

**Tab.2.1.** Propriétés des actinides [23].



La chaîne de formation des actinides dans un réacteur nucléaire à partir de l'Uranium est présentée dans la figure 2.1 [24]. L'actinide produit, le plus abondamment, est le Plutonium, avec en tête son principal isotope le  $^{239}\text{Pu}$ . Mais les réacteurs génèrent aussi d'autres actinides qui sont appelés « mineurs », fortement radioactifs. La qualification de « mineurs » rend compte du fait que ces éléments sont présents dans le combustible irradié en bien moins grandes proportions ( $\sim 0.1\%$ ) que les actinides « majeurs » ( $\sim 95\%$ ) : Uranium et Plutonium [23].



**Fig.2.1.** Chaîne de formation des actinides dans un réacteur nucléaire [24].

## 1.2. Les actinides naturels

L'**Uranium** fut découvert en 1789 par le chimiste allemand *Martin Heinrich Klaproth* à partir de minerai de pechblende. Il baptisa cette matière «Uranium» en référence à la planète Uranus. Il obtint un précipité jaune (du di-uranate de Sodium) par dissolution de la pechblende dans de l'acide nitrique, puis en neutralisant la solution obtenue par de l'hydroxyde de Sodium. Il réduisit alors ce précipité jaune avec du Charbon de bois, et obtint une poudre noirâtre (oxyde d'Uranium) [23].

L'oxyde de **Thorium** a été découvert par *Friedrich Wöhler* dans un minerai de Norvège en 1827. Ce minerai fut analysé par le chimiste suédois *Jöns Jacob Berzelius* en 1828. Par réduction du tétrachlorure de Thorium avec du Potassium, il obtint un métal qu'il appela Thorium [23].

L'**Actinium** a été découvert par *André Louis Debierne* en 1899, un assistant de *Marie Curie*, dans les restes de pechblende qui avaient été traités pour en extraire le Radium et le Polonium. Il décrivit initialement cette substance comme similaire au Titane puis (en 1900) comme similaire au Thorium. Le terme «Actinium» vient du grec (*aktis, aktinos*) qui signifie un rayon lumineux [23].

Le **Protactinium** fut peut-être isolé en 1900 par *William Crookes*. Son nom est composé du mot grec « premier » et « actinium ». L'isotope  $^{234}\text{Pa}$  a été identifié en 1913 par *Kasimierz Fajans* et *Oswald Helmuth Gôhring* dans leur étude de la chaîne de désintégration de  $^{238}\text{U}$ . Ils appelèrent initialement ce nouvel élément « brevium ». En 1918 deux groupes de scientifiques conduits par l'autrichienne *Lise Meitner*, l'allemand *Otto Hahn* et l'anglais *John Cranston* firent indépendamment la découverte de l'isotope  $^{231}\text{Pa}$ , et lui donnèrent le nom de *protoactinium* (du grec, signifie le premier des rayonnants) [23].

### 1.3. Les transuraniens

La série des actinides transuraniens a été découverte aux débuts de la physique nucléaire, entre les années 1940 et 1965 :

Le **Neptunium** fut découvert par *Edwin M. McMillan* et son collaborateur *Philip H. Abelson* en 1940 à Berkeley, en Californie. Ils produisirent l'isotope  $^{239}\text{Np}$  (d'une demi-vie de 2.4 jours) en bombardant une couche mince de  $^{238}\text{U}$  avec des neutrons lents [7]. Ils baptisèrent cette substance « Neptunium » en référence à la planète Neptune, la planète suivant Uranus qui avait donné son nom à l'Uranium. Ce fut le premier transuranien produit artificiellement [23].

Le **Plutonium** fut découvert en 1941, lorsque *Glenn Seaborg* et ses collaborateurs ont observé une activité produite avec une période de 50 ans, en bombardant une cible de  $^{238}\text{U}$  par du Deutérium au cyclotron de Berkeley. Ils ont identifié l'isotope  $^{238}\text{Pu}$  produit lors de cette réaction [7, 23].

Le **Curium** ( $^{242}\text{Cm}$ ) a été découvert en 1944 par *Glenn T. Seaborg* et ses collègues *Ralph A. James* et *Albert Ghiorso*, en bombardant le  $^{239}\text{Pu}$  par des particules  $\alpha$  accélérées dans le cyclotron de Berkeley [7, 23].

L'**Américium** ( $^{241}\text{Am}$ ) a été synthétisé en 1945 par *Glenn T. Seaborg, Leon Morgan, Ralph James* et *Albert Ghiorso*. Il a été obtenu par des captures successives sur le  $^{239}\text{Pu}$  par des neutrons dans un réacteur nucléaire, suivies de décroissance  $\beta^-$  [7]. L'Américium a été nommé en référence au continent américain, par analogie avec l'Europium, élément de la famille des lanthanides dont il est l'homologue chimique [23].

Ensuite s'est succédée la découverte du reste des actinides. Le **Berkélium** a été synthétisé pour la première fois en 1949 et le **Californium** en 1950. L'**Einsteinium** et le **Fermium** ont été découverts en 1952 et le **Mendélévium** fut obtenu en 1955. Le **Nobélium** a été produit en 1958 et identifié six ans plus tard, puis le dernier de la série, le **Lawrencium** qui a pu être produit en 1961 avant d'être identifié en 1965 [7, 23].

## 2. Les actinides mineurs et le combustible utilisé

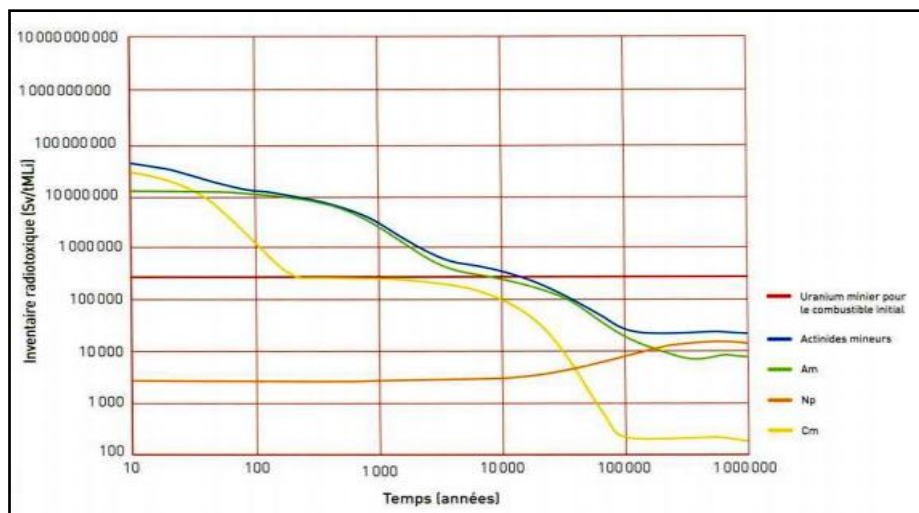
### 2.1. Principaux actinides mineurs

Les actinides mineurs constituent une partie des déchets de haute activité à vie longue (HAVL) présents dans le combustible nucléaire utilisé. Les réacteurs nucléaires sont la source principale de leur production. Les trois actinides mineurs, les plus abondants dans le combustible irradié, sont :

- **Le Neptunium** : c'est exclusivement le  $^{237}\text{Np}$ , qui est l'actinide mineur le plus important en quantité, après le Plutonium, dans un combustible utilisé. Il est généré à partir de captures successives sur l' $^{235}\text{U}$ , mais il est de loin le moins radiotoxique. Sa période étant de 2.15 millions d'années, voir la figure 2.2. Les isotopes  $^{238}\text{Np}$  et  $^{239}\text{Np}$  sont d'une période de décroissance inférieure à 3 jours [7, 25].

- **L'Américium** : ses principaux isotopes  $^{241}\text{Am}$  et  $^{243}\text{Am}$  sont beaucoup plus radioactifs. Le plus abondant est  $^{241}\text{Am}$ , d'une période radioactive de 432 ans. Il est issu de la désintégration  $\beta^-$  du  $^{241}\text{Pu}$ , qui a une durée de vie de 14 ans. L'isotope  $^{242\text{m}}\text{Am}$ , d'une période de 141 ans, est produit en quantité très faible [7, 26].

- **Le Curium** : c'est un fort émetteur alpha. Ses principaux isotopes sont  $^{243}\text{Cm}$  et  $^{244}\text{Cm}$ . Le  $^{244}\text{Cm}$  est très actif, en raison de sa courte durée de vie (18 ans). Il contribue au départ à environ 60 % de la radioactivité des actinides mineurs, bien qu'il soit produit en très petite quantité [7, 27].



**Fig.2.2.** Evolution de la radiotoxicité des actinides mineurs présents dans une tonne de combustible usé UOX déchargé à 60 GWj/t [9].

Après cinq ans de refroidissement, une tonne de combustible usé UOX déchargé à 60 GWj/t contient 785 g d'Américium (dont 62.4 %  $^{241}\text{Am}$ , 37.4 %  $^{243}\text{Am}$  et 0.2 %  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ) et 135 g de Curium [9].

## 2.2. Risques et dangers liés aux actinides mineurs

De façon générale, les actinides mineurs représentent les déchets radioactifs qui posent les majeurs problèmes, notamment au niveau du stockage des déchets radioactifs en couche géologique profonde pour les raisons suivantes [23] :

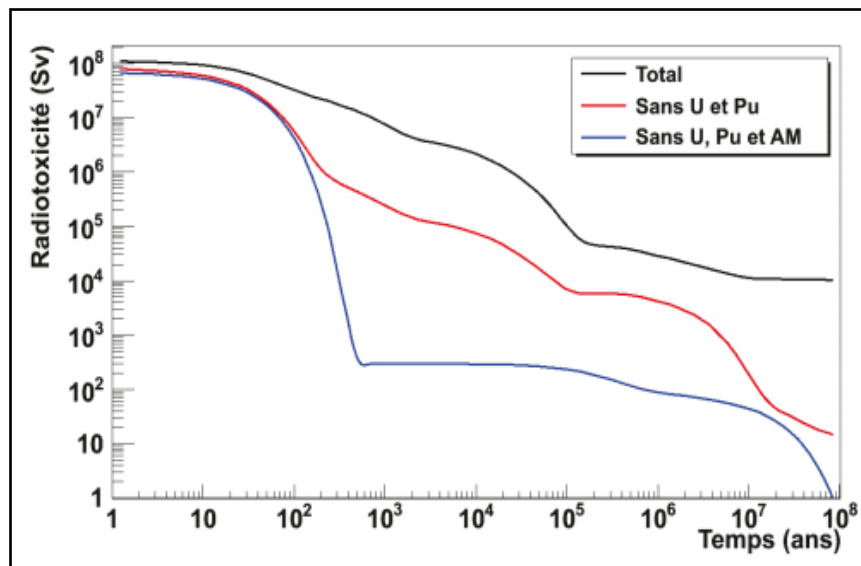
- En tant qu'émetteurs alpha, ils présentent une forte toxicité chimique et radiologique si l'élément entre dans la chaîne alimentaire (inhalé, injecté ou ingéré).
- Ils dégagent une forte chaleur due à leur haute activité (leurs émissions alpha sont toutes à une énergie élevée de l'ordre de 4.5 à 5.5 MeV).
- Ils dégagent de l'Hélium, qui est suspecté de pouvoir dégrader la cohésion du verre de conditionnement des déchets.

En revanche il est établi qu'ils n'ont qu'une très faible mobilité dans les sols et l'environnement où ils se trouveraient dispersés [23].

## 2.3. Potentiel radiotoxique des actinides mineurs

Les actinides mineurs sont principalement étudiés à cause de leurs importantes contributions à la radiotoxicité à long terme des déchets de haute activité et à vie longue. En effet, les produits de fission ont une grande influence au cours des premiers siècles sur la

radiotoxicité des déchets, mais, ensuite, ce sont les contributions des actinides mineurs et du Plutonium qui dominent. Pour illustrer cela, la figure 2.3 représente l'évolution temporelle de la radiotoxicité du combustible usé de type UOX (Oxyde d'Uranium) pour une irradiation de 3 ans dans un réacteur de type REP et de puissance électrique 1300 MW et un facteur de charge de 80 % [15]. Les valeurs de la radiotoxicité obtenues correspondent à la nocivité de l'ingestion ou de l'inhalation de l'ensemble des radioéléments contenus dans le combustible étudié sur l'organisme humain. La courbe noire est l'évolution de la radiotoxicité de l'ensemble du combustible. Les résultats de la courbe rouge sont obtenus avec la séparation de l'Uranium et du Plutonium. Pour ceux de la courbe bleue, les actinides mineurs sont également extraits [15].



**Fig.2.3.** Evolution de la radiotoxicité du combustible usé sans et avec retraitement [15].

D'après cette figure, l'élément dont l'impact est le plus important après plusieurs dizaines de millions d'années est le Plutonium (ses isotopes  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{240}\text{Pu}$ , puis leurs descendants). Nous observons, en effet, lorsqu'il est présent (courbe noire) que les valeurs restent très élevées. Si le Plutonium est extrait afin d'être recyclé, la principale contribution est celle des actinides mineurs. Nous remarquons la forte différence entre les courbes rouge et bleue. Cette dernière, sans la contribution des actinides mineurs, décroît très rapidement au delà de quelques centaines d'années. La forte radiotoxicité initiale est principalement liée aux produits de fission. Donc, si nous arrivons à supprimer les actinides mineurs et à multi-recycler le Plutonium, la radiotoxicité serait nettement diminuée au-delà de quelques centaines d'années [15].

La forte chaleur résiduelle des actinides mineurs, notamment de l'Américium et du Curium, qui est due à l'énergie déposée dans la matière par les particules émises lors des processus de désintégrations radioactives pose un problème pour le stockage des déchets [5]. En effet, pour des contraintes de sécurité, la température des colis ne doit pas être trop élevée afin de ne pas détériorer les caractéristiques du site de stockage. Le volume réservé à chaque colis est donc calculé en fonction de sa puissance thermique. En éliminant les actinides, la température des colis de déchets est plus faible, il est alors possible de placer plus de colis sur un volume équivalent. Le potentiel de stockage du site est augmenté si les actinides mineurs sont transmutés [15].

#### **2.4. La séparation chimique des actinides mineurs**

Les résultats obtenus, dans le cadre de la séparation des actinides mineurs présents dans les solutions de traitement des combustibles usés, montrent que sa faisabilité est acquise avec les rendements visés (99.9 %) [9]. Le Neptunium peut être extrait par le procédé PUREX. Pour récupérer l'Américium et le Curium, la voie mettant en œuvre des procédés d'extraction par solvant est privilégiée. La stratégie retenue repose sur une extraction liquide-liquide en trois étapes. A chaque étape est employé un procédé différent, du fait des propriétés chimiques voisines des actinides et lanthanides trivalents, de la variété d'éléments présents dans le milieu initial, de leurs concentrations respectives et de la forte acidité de la solution [9]. Les étapes de séparation sont résumées comme suit [20] :

**Etape 1 :** On sépare conjointement les actinides (Am et Cm) et les lanthanides des autres produits de fission à l'aide du procédé DIAMEX.

**Etape 2 :** Par la suite, le procédé SANEX réalise la séparation simultanée de l'Américium et du Curium des lanthanides.

**Etape 3 :** On sépare l'Américium du Curium par le procédé SESAM basé sur l'extraction électrochimique.

#### **2.5. Les caractéristiques neutroniques des actinides mineurs**

Dans le cœur d'un réacteur nucléaire, les actinides mineurs peuvent à la fois subir des réactions de fission et de capture sous un flux neutronique. Par fission, ils sont fragmentés en produits de fission, majoritairement à vie courte ou stables. Par capture, ils sont transformés en d'autres actinides à vie longue, qui se transforment eux-mêmes par désintégration naturelle, mais aussi par capture et fission. Dans l'option de transmuter les actinides mineurs pour

diminuer leur radiotoxicité à long terme, il faut favoriser leur fission, plutôt que la capture neutronique. Les fissions produisent des neutrons supplémentaires, utilisables pour entretenir les réactions nucléaires au cœur d'un réacteur [9, 15]. Le tableau 2.2 indique les valeurs des sections efficaces des actinides mineurs en deux spectres neutroniques : un spectre du réacteur à neutrons thermiques et un autre du réacteur à neutrons rapides [4]. De cette comparaison, on distingue les points suivants [4, 28] :

***Pour les actinides Np, Am et Cm-244 :***

- Dans les réacteurs à neutrons thermiques, ces isotopes se comportent comme des poisons neutroniques. Ils pénalisent le bilan neutronique et se transmutent essentiellement en des autres actinides.
- Dans les réacteurs à neutrons rapides, le rapport capture/fission est environ dix fois plus faible que dans les réacteurs thermiques. Donc, les réacteurs rapides sont plus efficaces pour transmuter les actinides mineurs par fission directe.

***Pour l'isotope Cm-245 :***

- Les rapports capture/fission sont similaires dans les deux types de réacteurs. Il se transmute majoritairement en produits de fission à vie courte.

	Réacteur à neutrons thermiques Flux de neutrons : $3 \cdot 10^8 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$			Réacteur à neutrons rapides Flux de neutrons : $4 \cdot 10^9 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$		
	$\sigma_f$	$\sigma_c$	$\sigma_c / \sigma_f$	$\sigma_f$	$\sigma_c$	$\sigma_c / \sigma_f$
Np-237	0.52	33	63	0.32	1.7	5.3
Am-241	1.1	110	100	0.27	2	7.4
Am-243	0.44	49	111	0.21	1.8	8.6
Cm-244	1	16	16	0.42	0.6	1.4
Cm-245	116	17	0.15	5.1	0.9	0.18

**Tab.2.2.** Sections efficaces des actinides mineurs [4].

On conclut que le **spectre rapide** permet de minimiser les réactions de capture "parasites" et favorise les réactions de fission pour l'ensemble des actinides. En **spectre thermique**, les actinides mineurs subissent essentiellement la capture neutronique mis à part le Cm-245 et le Cm-243 [28]. Cette analyse reste élémentaire dans la mesure où elle repose uniquement sur l'impact de la première interaction neutronique. Cependant elle met en évidence l'avantage intrinsèque du spectre à neutrons rapides. Il est nécessaire d'examiner

l'influence des réactions successives au cours de l'irradiation en réacteurs, pour avoir une réelle évaluation de l'efficacité globale de la transmutation.

Une première approche théorique est de considérer le nombre de neutrons nécessaires pour transformer un isotope initial (et tous les isotopes produits par réactions successives à partir de cet isotope initial) en isotopes stables ou produits de fission [28].

### **3. La transmutation des actinides mineurs**

L'objectif de la transmutation des actinides mineurs comme le Neptunium, l'Américium et le Curium est de diminuer leurs contributions dans la toxicité radioactive des déchets sur le long terme [29]. Comme le montre la figure 2.3, les différents scénarios prédictifs de la radiotoxicité des déchets nucléaires mettent en évidence l'intérêt de la transmutation des actinides mineurs. La transmutation, contrairement aux "axes" de la séparation, du stockage, du conditionnement et de l'entreposage qui ont recours à des techniques industrielles éprouvées, est une technique beaucoup plus délicate et difficile car elle s'attaque au noyau de l'atome. C'est une technique nucléaire [29].

#### **3.1. Les bases physiques de la transmutation**

Le principe de la transmutation consiste à modifier les éléments à vie longue vers des éléments stables ou à durée de vie nettement plus courte présentant une radiotoxicité moindre. Pour ce faire, il est nécessaire de bombarder les noyaux considérés par des particules élémentaires [28].

##### **a. L'utilisation de photons**

En bombardant une cible avec un faisceau d'électrons fournis par un accélérateur, il est possible d'obtenir par effet Bremsstrahlung des photons qui peuvent donner lieu à des réactions ( $\gamma, X n$ ), 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 (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 du courant d'électrons nécessaire, qui reste aujourd'hui hors d'atteinte, cette voie n'est pas retenue [28].



### **b. L'utilisation de protons**

L'interaction proton-noyau induit une réaction complexe, appelée « spallation » qui conduit à la fragmentation du noyau et à la libération d'un certain nombre de particules, dont des neutrons de haute énergie [30]. La transmutation par interaction directe des protons n'est pas rentable, car elle nécessite pour surmonter la barrière coulombienne des protons de très haute énergie (1 à 2 GeV) pour lesquels l'énergie dépensée pour leur production est supérieure à celle qui est récupérée lors du processus qui a conduit à la génération du déchet [28].

En revanche, la transmutation indirecte, en utilisant les neutrons de haute énergie produits lors de la spallation (au nombre d'une trentaine environ, suivant la nature de la cible et l'énergie du proton incident) permet d'améliorer très sensiblement les rendements. 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 (Accelerator Driven System ADS) [28].

### **c. L'utilisation de neutrons**

De par l'absence de charge électrique, le neutron est la particule qui satisfait au mieux les critères recherchés pour induire des réactions de transmutation. Les neutrons sont présents et disponibles en grande quantité dans les réacteurs nucléaires où ils sont produits et assurent le maintien de la réaction en chaîne et produisent ainsi de l'énergie [28].

Lorsqu'un neutron entre en collision avec un noyau, il peut rebondir sur le noyau ou bien pénétrer dans celui-ci. Dans ce second cas, le noyau, en capturant le neutron, acquiert un excès d'énergie qu'il va libérer de différentes manières [9] :

- ✓ En éjectant des particules (un neutron par exemple) et en émettant un rayonnement.
- ✓ En émettant seulement un rayonnement, on parle dans ce cas de réaction de capture puisque le neutron reste captif du noyau.
- ✓ En se scindant en deux noyaux de taille plus ou moins égale et en émettant simultanément deux à trois neutrons, on parle ici de réaction de fission (nommée incinération) durant laquelle une importante quantité d'énergie est délivrée.

La probabilité pour qu'un neutron induit une réaction de capture ou de fission d'un noyau est donnée par sa section efficace de capture ou de fission, respectivement. Les sections efficaces sont en fonction de la nature du noyau et de l'énergie du neutron incident [9]. Les

noyaux de petite taille (comme les produits de fission) ne sont sujets qu'aux réactions de capture, les noyaux de grande taille (comme les actinides) sont susceptibles aux réactions de capture et de fission. L'énergie des neutrons émis par fission est d'environ 2 MeV, ce qui correspond à une vitesse de 19600 km/s. A cette vitesse, ils interagissent peu avec les noyaux. A plus faible vitesse, la probabilité qu'ils interagissent avec un noyau augmente [9].

### 3.2. Le bilan neutronique du réacteur

L'introduction des actinides mineurs à transmuter dans un réacteur n'est pas sans conséquence sur le bilan neutronique du cœur. Le tableau 2.3 illustre cet impact pour deux types de réacteurs (réacteur à neutrons thermiques et réacteur à neutrons rapides) [9]. Les valeurs des quantités reportées sont négatives, lorsque la transmutation consomme des neutrons, et positives lorsqu'elle en fournit. La transmutation des actinides mineurs est à la fois consommatrice (par des captures) et génératrice (par des fissions) de neutrons. Son impact dépend du type de réacteur considéré.

Dans un réacteur à neutrons rapides, la transmutation de l'ensemble des actinides mineurs apporte un surplus de neutrons alors qu'elle en consomme dans un réacteur à neutrons thermiques [28]. Il est indispensable de sur-enrichir le combustible du réacteur à neutrons thermiques en matière fissile pour transmuter les actinides mineurs. Ce résultat est directement lié aux valeurs de sections efficaces des actinides mineurs reportées dans le tableau 2.2.

	Réacteur à neutrons thermiques REP	Réacteur à neutrons rapides RNR
Np-237	-1.1	+0.6
Am-241	-1.1	+0.5
Am-243	-0.3	+0.7
Cm-244	+0.7	+1.5
Cm-245	+2.3	+2.7
Ensemble des actinides mineurs	-0.9	+0.6

**Tab.2.3.** Nombre de neutrons consommés (valeurs négatives) ou produits (valeurs positives) par la transmutation des actinides mineurs [9].

### 3.3. Modes de transmutation

L'ajout d'actinides mineurs dans le cœur d'un réacteur modifie son comportement neutronique et peut de ce fait nécessiter de nouvelles configurations d'assemblages. Deux

modes de transmutation sont distingués, *homogène* et *hétérogène*. Le choix entre ces deux modes dépend, d'une part, du comportement de chaque élément dans le réacteur, et d'autre part, de son influence sur le cycle du combustible [4, 31, 32].

Dans *Le mode homogène*, décrit à la figure 2.4, les actinides mineurs à transmuter sont mélangés au combustible standard du cœur du réacteur dans de faibles proportions (< 5 %) de façon à limiter leur influence sur la neutronique du cœur. Cette voie a aussi l'inconvénient d'aligner la durée d'irradiation des radionucléides à vie longue sur celle de l'irradiation du combustible (qui peut être insuffisante si le rendement de transmutation est faible) et d'introduire ces radionucléides dans toutes les installations du cycle [4, 31, 32].

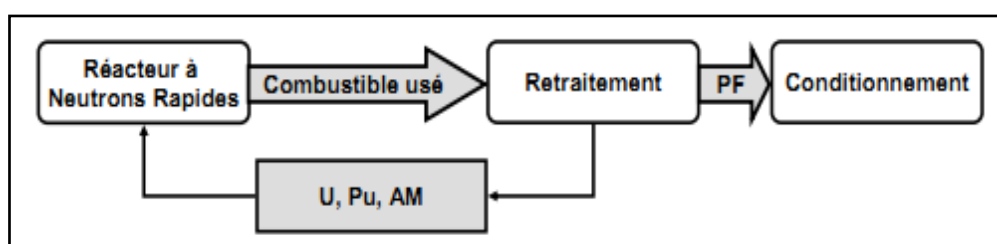


Fig.2.4. Transmutation en mode homogène [4].

*Le mode hétérogène* consiste à séparer les actinides du combustible et à les concentrer dans des assemblages spécifiques placés en périphérie du cœur, avec des teneurs beaucoup plus élevées que celles du recyclage homogène [4], figure 2.5. On peut changer le nombre, la teneur et la position des cibles pour minimiser leur impact sur la neutronique du cœur [9]. Ces éléments peuvent être mélangés à un support en Uranium (on parle alors de Couvertures Chargées en Actinides Mineurs CCAM) ou à un support inerte (on parle alors de cibles) [9, 31].

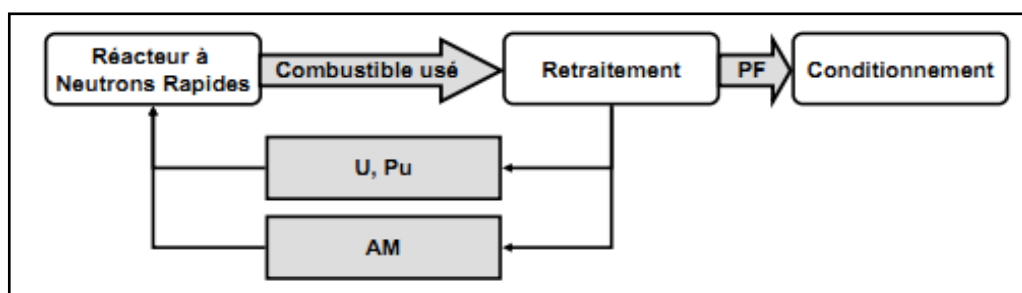
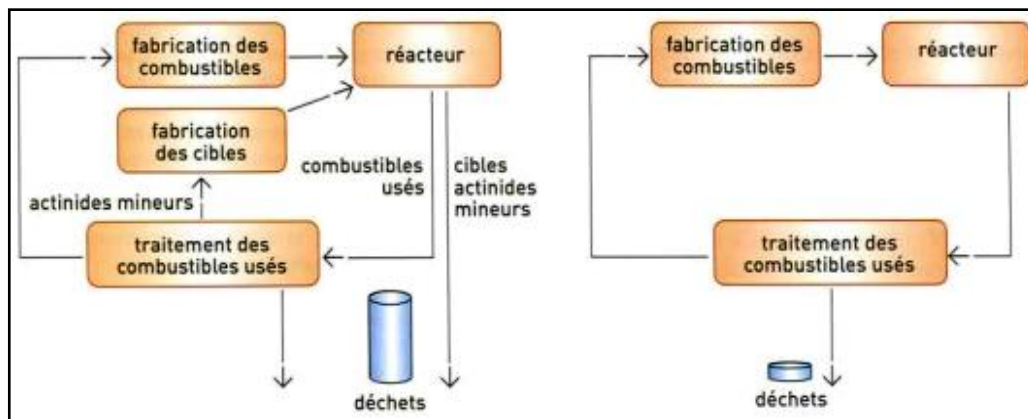


Fig.2.5. Transmutation en mode hétérogène [4].

De plus, on peut envisager soit *le mono-recyclage* (appelé aussi "once-through") soit *le multi-recyclage* des radionucléides à vie longue, comme il est indiqué à la figure 2.6. *Le mono-recyclage* consiste à transmuter en un seul passage en réacteur les radionucléides à vie

longue. Dans ce cas, on cherchera à transformer la plus grande partie (au moins 90 %) des radionucléides, puisque la part non transmutée est destinée aux déchets, en ajoutant aussi ceux provenant du traitement des combustibles usés [9]. **Le multi-recyclage** consiste à transmuter en plusieurs passages en réacteur les radionucléides à vie longue pour aboutir à une réduction plus importante des quantités de radionucléides rejoignant les déchets, qui ne sont plus constitués que des seules pertes provenant du traitement des combustibles usés [9].



**Fig.2.6.** Principe de la transmutation des actinides en mono-recyclage dans des cibles (à gauche) et en multi-recyclage dans les combustibles (à droite) [9].

### 3.4. Les réacteurs de transmutation

Pour la mise en œuvre de la transmutation, les études ont porté sur l'utilisation :

- Des **filières des réacteurs existants**, c'est à dire les réacteurs du parc actuel (réacteurs à eau sous pression REP) et à venir (les réacteurs à neutrons rapides à caloporteur Sodium RNR), dont la technologie est maîtrisée [9, 32].
- Des **réacteurs de technologie innovante**, ce sont les réacteurs nucléaires à neutrons rapides développés dans le cadre de l'initiative internationale « Génération IV » pour la production d'énergie à l'horizon 2035, citant les réacteurs à neutrons rapides à caloporteur gaz et les réacteurs à sels fondus [9, 32].
- Les **systèmes hybrides**, ce sont des réacteurs sous critiques couplés à des accélérateurs (ADS), qui sont encore à l'étude [9, 32].

Les travaux menés dans ce cadre ont montré que la transmutation en réacteurs à neutrons thermiques est techniquement peu efficace. Par contre, les caractéristiques des réacteurs à neutrons rapides permettent d'envisager la transmutation des actinides mineurs, en utilisant des combustibles contenant des quantités significatives d'actinides mineurs (2.5 % à

5 %) [33]. Les ADS sont des réacteurs originaux mais complexes qui ont des potentialités en tant que réacteurs dédiés à la transmutation. Ces potentialités doivent être démontrées expérimentalement. Les études se poursuivent en ce sens. Leur performance en termes de production d'électricité étant limitée, ils se positionnent donc en complément des réacteurs producteurs d'électricité (réacteurs électrogènes) [33].

#### 4. Fabrication des cibles de transmutation

Le mode hétérogène de transmutation consiste à concentrer les radionucléides à transmuter (actinides mineurs) dans un combustible spécifique, appelé cible. Cette cible est constituée d'une matrice support, qui est transparente aux neutrons et permettant d'ajuster la puissance volumique du combustible, et d'un composé chimique contenant l'élément à transmuter [32]. La transmutation en mode hétérogène est possible en REP ou RNR. Elle est optimale en RNR lorsqu'on associe les flux élevés de neutrons disponibles dans ces réacteurs à une modération de l'énergie des neutrons rapides. Plusieurs expériences d'irradiation ont été réalisées ou sont en cours pour [9, 32] :

- Sélectionner le composé chimique d'actinides (oxyde, nitrure ou carbure).
- Sélectionner le matériau de la matrice (parmi  $MgAl_2O_4$ ,  $MgO$ ,  $ZrYO_2$ ).
- Sélectionner le matériau du modérateur ( $B_4C$ ,  $CaH_x$ ).
- Etudier le mode de dispersion du composé d'actinides dans la matrice sous forme de particules (soit de taille inférieure à quelques microns, soit de taille supérieure à quelques dizaines de microns).

##### 4.1. Sélection des matériaux de matrice

La conception des cibles et notamment le choix du matériau (matrice) inerte, du point de vue neutronique, c'est-à-dire dont l'absorption neutronique est faible et ne conduit pas à la formation de nouveaux éléments radioactifs, doivent prendre en compte [9] :

- ✓ La puissance dégagée lors de la transmutation.
- ✓ Le gonflement sous irradiation.
- ✓ L'évolution des propriétés thermiques.
- ✓ L'interaction chimique entre la matrice et le composé d'actinides.
- ✓ L'interaction chimique et mécanique entre les cibles et la gaine.
- ✓ La production et le relâchement d'hélium et des gaz de fission.

La démarche consiste à effectuer d'abord une sélection des matrices inertes sur la base de leurs propriétés physico-chimiques et thermodynamiques (conductivité thermique, température de fusion, compatibilité chimique avec la gaine et le caloporteur . . .) et de leur comportement sous irradiation [9]. Parmi les matrices présentant à priori des propriétés intéressantes, *l'alumine* a tout d'abord été évaluée puis écartée en raison de son important gonflement sous l'irradiation. En 1998, quatre composés réfractaires ont été retenus comme matériaux de référence : *le spinelle*  $MgAl_2O_4$ , *la magnésie*  $MgO$ , *la zirconeytriée*  $(Zr, Y)O_7$  et une structure de type *pyrochlore*  $AnZr_2O_7$ . Parmi les quatre matrices retenues, le spinelle et la magnésie sont celles qui ont été les plus étudiées sous irradiation [9, 32].

Trois concepts de cibles sont à l'étude. Le premier concept dit à *solution solide*, dont l'actinide est intégré au réseau cristallin de la matrice, avec l'avantage de la simplicité de fabrication, mais l'inconvénient d'un endommagement généralisé de la cible sous irradiation [9]. Dans le second concept, dit *microdispersé*, l'actinide fait partie d'un composé, qui est dispersé sous forme de particules microscopiques dans le matériau de matrice inerte. Comme le précédent, le procédé de fabrication reste proche de celui des combustibles usuels et l'endommagement sous irradiation est généralisé. Cependant, dans ce concept, la matrice n'a pas à remplir la fonctionnalité de support de l'actinide et peut être optimisée vis-à-vis des propriétés recherchées (conductivité thermique, gonflement . . .) [9]. Dans le troisième concept, dit *macrodispersé*, l'actinide fait partie d'un composé, qui est dispersé sous forme de particules "macroscopiques" d'une taille d'au moins plusieurs dizaines de microns. Le procédé de fabrication est plus difficile à maîtriser, mais ce concept permet une réduction des effets d'endommagement de la matrice par rapport aux deux précédents [9].

L'étude des dommages d'irradiation dans les matériaux est très complexe. Les matrices inertes subissent simultanément plusieurs effets secondaires tels : les flux de neutrons nécessaires à la transmutation et les effets des noyaux de recul chargés, des produits de fission et des particules alpha [32]. Les interactions nucléaires à l'échelle atomique peuvent être à l'origine d'un gonflement des matériaux. Les produits de fission sont à l'origine d'interactions électroniques et produisent des traces de structure très désordonnée et parfois même amorphe. C'est la cause la plus importante de l'endommagement des matrices. Cet endommagement reste limité à une zone de moins d'une dizaine de microns autour de l'atome fissile. C'est pour cette raison que le concept *macrodispersé* a été développé [9, 32].

## 4.2. Sélection des composés d'actinides

Pour choisir le composé d'actinide d'une cible d'incinération, des études de base sont particulièrement utiles. Elles permettent de déterminer les propriétés physico-chimiques des matériaux (propriétés thermiques, thermomécaniques, structurales, ...) et de développer les procédés de leur fabrication [9].

**Les oxydes :** Pour la transmutation des actinides mineurs, l'oxyde  $\text{AmO}_x$  (avec  $1.5 < x < 2$ ) est le composé le mieux approprié en tant que support de l'Américium. Cet oxyde demeure aujourd'hui le composé d'actinide de référence pour les cibles. Cependant, son diagramme de phase est très complexe et son potentiel d'Oxygène ainsi que son activité chimique peuvent entraîner des interactions avec les matrices inertes, les gaines ou encore le caloporteur Sodium [9, 32]. Les composés où les actinides sont incorporés dans une solution solide à base de zircone  $(\text{Am, Zr, Y})\text{O}_x$ , ou dans une structure de type pyrochlore  $\text{Am}_7\text{Zr}_2\text{O}_7$  sont aussi envisagés [9].

**Les nitrures :** Le principal intérêt des nitrures réside dans leur conductivité thermique plus élevée que celle des oxydes. Ils présentent toutefois un risque de dissociation à haute température et de gonflement relativement important sous irradiation [32]. Ces matériaux, qui ne réagissent pas avec le Sodium, rendent possible de concevoir, pour des applications en RNR à caloporteur Sodium, des aiguilles au sein desquelles le jeu entre les pastilles et la gaine est rempli de Sodium. Par l'introduction du Sodium entre les pastilles et la gaine, les échanges thermiques sont améliorés. Il est possible d'accroître l'espacement entre les pastilles et la gaine afin d'accommoder un gonflement de la matrice qui peut être important sous irradiation [9].

**Les carbures :** Comme pour les nitrures, les carbures présentent de bonnes propriétés thermiques. Ils n'ont toutefois pas été actuellement retenus pour les études sur la transmutation, car le caractère hautement pyrophorique des poudres de carbure rend leur fabrication délicate à mettre en œuvre. Dans le cadre des recherches sur les combustibles pour les réacteurs à caloporteur gaz, ces composés sont à nouveau étudiés [9].

## 4.3. Sélection des matériaux modérateurs

Dans le cas du recyclage hétérogène en RNR, les actinides à transmuter sont concentrés dans des assemblages dits "transmuteurs" composés d'aiguilles "cibles" contenant l'Américium et le Curium (le Neptunium étant recyclé sous forme homogène dans le combustible) et d'aiguilles modératrices dont le rôle est d'améliorer le rendement de

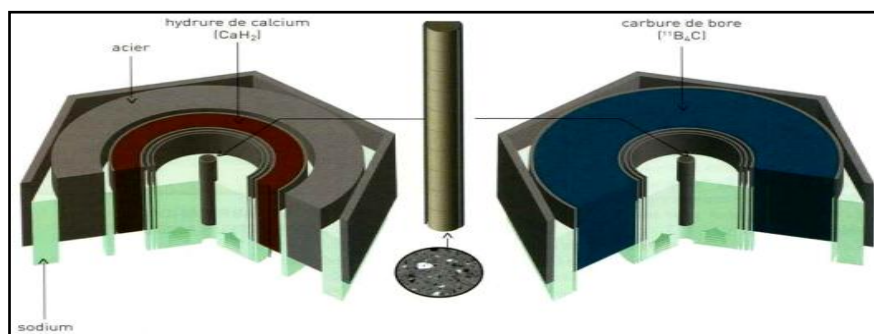
transmutation (grâce à un niveau des flux élevé propre aux RNR et aux plus grandes sections efficaces des neutrons ralentis) [9, 32]. La figure 2.7 illustre le positionnement du modérateur et de l'aiguille cible contenant les actinides mineurs dans un assemblage combustible [9].

De manière qualitative et schématique et d'un point de vue neutronique, sont retenues deux familles de matériaux modérateurs [9] :

- Les substances solides ou liquides hydrogénées qui privilégient l'efficacité de la modération, tels les hydrures de métaux ou les hydroxydes.
- Les autres substances, moins absorbantes, permettent de favoriser la disponibilité en neutrons modérés, avec comme exemple l'eau lourde ( $D_2O$ ). Elles ont cependant une moindre efficacité de modération.

Des études préliminaires, prenant en compte les nombreuses contraintes spécifiques de fonctionnement en RNR, ont conduit à ne retenir qu'un nombre restreint de candidats dans chacune de ces deux familles, couvrant cependant les besoins neutroniques nécessaires à la transmutation des actinides mineurs [9]. Il s'agit de :

- Le  $B_4C$ , carbure de Bore très fortement enrichi en Bore-11 ( $> 99.65\%$ ), appartenant à la seconde famille et qui présente l'avantage d'être immédiatement utilisable sur la base des connaissances acquises au cours de son utilisation comme matériau absorbant dans les RNR.
- Trois hydrures appartenant à la première famille : un hydrure ionique de Calcium ( $CaH_x$ ) et deux hydrures métalliques de Zirconium et d'Yttrium ( $ZrH_x$  et  $YH_x$ ).



**Fig.2.7.** Positionnement du modérateur et de l'aiguille cible contenant les actinides mineurs dans un assemblage combustible [9].

Les hydrures sont des matériaux fragiles mécaniquement, peu stables thermiquement et relâchant de l'Hydrogène, ce qui est très pénalisant en réacteur. Dans ce contexte, l'hydrure d'Yttrium  $YH_x$  semble être le meilleur candidat grâce à sa plus grande stabilité thermique,



même si sa densité en atome d'Hydrogène est moindre que celle de l'hydrure de Zirconium. Pour éviter la perte d'Hydrogène, dont la diffusivité est très élevée dans les conditions d'irradiation, il est inévitable d'avoir recours à un confinement par revêtement étanche des gaines des aiguilles modératrices. La meilleure efficacité de l'hydrure de Calcium par rapport au carbure de Bore est clairement mise en évidence par les études menées dans cet objectif [9].

### **5. La faisabilité scientifique de la transmutation des actinides mineurs**

La transmutation est un procédé qui prend du temps et exige des réacteurs à flux élevé et/ou à flux de neutrons énergétiques. De tels flux neutroniques existent dans les réacteurs à haut flux et les réacteurs rapides [10]. De nombreuses études menées à la fois en REP et en RNR ont été entreprises afin de comprendre les conséquences de l'introduction d'actinides mineurs dans le combustible sur le fonctionnement, le contrôle et la sûreté des réacteurs. Pour cela, l'ensemble des propriétés de ces matériaux et leurs comportements sous irradiation sont étudiés [9]. La transmutation de certains actinides mineurs, comme l'Américium et le Neptunium, a été démontrée sur le plan scientifique. Par contre, la transmutation du Curium, très radioactif, difficile à manipuler, continue de poser de gros problèmes [29]. Selon la Commission Nationale d'Evaluation (CNE), la faisabilité de la fabrication de matériaux nucléaires propres à la transmutation à grande échelle d'actinides mineurs n'est pas non plus démontrée [29].

Les premiers démonstrateurs des réacteurs de Génération IV et des ADS consacrés à la transmutation sont attendus entre les années 2020-2030. Une coopération internationale très active, impliquant la Russie, le Japon, les Etats-Unis et de nombreux pays européens, s'est mise en place. Compte tenu des délais de mise au point de ces installations et des vérifications à effectuer, la transmutation à l'échelle industrielle d'actinides mineurs est envisageable au mieux en 2040 [29]. Dans cette logique, il est apparu nécessaire d'étudier la conception d'entrepôts destinés à accueillir les actinides mineurs séparés pendant une période de quelques dizaines d'années [9].

## Chapitre III

### Méthode d'évaluation

#### 1. Simulation de la transmutation nucléaire

Le processus de transmutation des éléments radiotoxiques, en particulier les actinides mineurs, concerne directement leur évolution sous irradiation dans un réacteur nucléaire. Les modèles mathématiques décrivant les abondances et les activités dans une chaîne de transmutation (ou de filiation) en fonction du temps sont *les équations de Bateman*. La résolution de ces équations est effectuée par diverses méthodes dont le choix est dicté par la nature du problème considéré [24] :

- Recherche d'une solution analytique sous la forme d'une combinaison linéaire d'exponentielles.
- Méthode de l'exponentielle de matrice utilisant un développement limité de la fonction exponentielle.
- Méthodes numériques utilisant une discrétisation du temps (ou de la variable qui y est associée).

Toutes ces méthodes sont extrêmement compliquées et nécessitent des codes de calcul neutronique avancés pour les appliquer. Ces derniers utilisent des données de bibliothèques nucléaires, lors de leurs processus de calcul.

#### 1.1. Les équations de Bateman

L'évolution temporelle des concentrations des radionucléides d'un milieu sous flux neutronique, est régie par des équations différentielles couplées du premier ordre, connues sous le nom *d'équations de Bateman* (du nom du mathématicien anglais *Harry Bateman*, qui a fourni une solution générale aux équations différentielles de décroissance radioactive) [24, 34]. L'équation résultante fait le bilan des disparitions et des apparitions des noyaux  $i$  de concentration  $N_i(t)$  sur un intervalle de temps  $dt$  autour de l'instant  $t$  [34] :

$$\frac{dN_i}{dt} = -\sigma_i^{abs} \varphi N_i + \sum_{j \neq i} \sigma_{j \rightarrow i} \varphi N_j - \lambda_i N_i + \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j$$

Le premier terme correspond à la disparition du noyau  $i$  par réaction nucléaire (capture, fission...). Le deuxième représente sa formation par des interactions subies par un noyau  $j$ . Le troisième terme est la perte de l'isotope considéré par décroissance naturelle et le dernier correspond à sa création par l'ensemble des noyaux  $j$  dont les canaux de décroissances mènent à l'isotope  $i$  [34].

Avec :

$N_i$  : le nombre de noyaux  $i$ .

$\sigma_i^{abs} \varphi$  : le taux de réaction d'absorption du noyau  $i$ .

$\sigma_{j \rightarrow i} \varphi$  : le taux de réaction du noyau  $j$  produisant  $i$ .

$\lambda_i$  : la constante de décroissance totale du noyau  $i$ .

$\lambda_{j \rightarrow i}$  : la constante de décroissance du noyau  $j$  vers le noyau  $i$ .

Dans la notation utilisée pour l'écriture *d'équations de Bateman*, les taux de réaction  $\sigma_i^{abs} \varphi$  et  $\sigma_{j \rightarrow i} \varphi$  sont définis par l'équation suivante :

$$\sigma \varphi = \frac{\int \sigma(E) \varphi(E) dE}{\int dE}$$

Dans cette expression,  $\sigma(E)$  et  $\varphi(E)$  sont la section efficace ( $\sigma_i^{abs}$  ou  $\sigma_{j \rightarrow i}$ ) et le flux neutronique en fonction de l'énergie du neutron incident.

Cette équation peut également s'écrire sous forme matricielle, où  $\vec{N}$  est un vecteur contenant l'ensemble des noyaux du système et  $A$  une matrice décrivant l'ensemble des contributions de chacun :

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = A \vec{N}$$

Chaque élément  $A_{ij}$  de la matrice correspond à la création du noyau  $i$  par le noyau  $j$  et les éléments  $A_{ii}$  déterminent les disparitions du noyau  $i$  par décroissances et réactions nucléaires :

$$A_{ij} = \sigma_{j \rightarrow i} \varphi + \lambda_{j \rightarrow i}$$

$$A_{ii} = -\lambda_i - \sigma_i^{abs} \varphi$$

*Harry Bateman* a trouvé une formule explicite générale pour les quantités en prenant la transformée de Laplace de ces variables [35] :

$$N_n(t) = \sum_{i=1}^n \left[ N_i(0) \times \left( \prod_{j=i}^{n-1} \lambda_j \right) \times \left( \sum_{j=i}^n \left( \frac{e^{-\lambda_j t}}{\prod_{p=i, p \neq j}^n (\lambda_p - \lambda_j)} \right) \right) \right]$$

## 1.2. Les codes de calcul et les bases de données nucléaires

Les études de transmutation actuellement menées se basent sur des calculs à l'aide de codes de simulation neutronique (e.g. DARWIN, MCNP, APPOLO, ChainSolver, etc.) qui s'appuient sur des bases (des bibliothèques) de données nucléaires. Celles-ci regroupent une grande quantité de données nucléaires, citant par exemple les sections efficaces d'interaction avec un flux de particules (e.g. neutrons, protons, alpha, ...) ou de rayons électromagnétiques gamma, les propriétés de décroissance (temps de demi-vie, modes de décroissances, noyaux formés, ...), etc [7]. Elles sont réparties par zones géographiques. Les principales bases de données nucléaires évaluées sont [2] :

- ✓ ENDF/B : Evaluated Nuclear Data File, Etats-Unis.
- ✓ JEFF : Joint Evaluated Fission and Fusion file, Europe de l'Ouest.
- ✓ JENDL : Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Japon.
- ✓ CENDL : Chinese Evaluated Nuclear Data Library, Chine.
- ✓ BROND : Biblioteka Rekomendovannykh Otsenjonnykh Nejtronnykh Dannykh, Russie.

L'ensemble des données présentées dans ces bibliothèques nucléaires ont été évaluées à partir de mesures expérimentales. Lorsque la mesure d'un paramètre n'a pas encore été effectuée, celle-ci est substituée par des prédictions de modèles théoriques éprouvés sur d'autres réactions connues [15]. Les plus grands obstacles auxquels se heurte l'évaluateur sont le désaccord entre les mesures identiques faites avec des techniques différentes et les problèmes de résolution en énergie [7]. Ces bibliothèques pouvant différer dans certaines gammes d'énergie et pour certains isotopes [15].

## 2. Les outils numériques employés

La faisabilité de transmutation d'un radioélément sous l'irradiation neutronique au sein d'un réacteur nucléaire est estimée à partir d'un paramètre, qui exprime la quantité transmutée pendant la période d'irradiation, qui est le *taux de transmutation*.

La détermination de ce paramètre se fait soit expérimentalement soit par évaluation numérique grâce à un code de calcul adapté. Dans le présent travail, le code de calcul utilisé pour évaluer le taux de transmutation de l'Américium-241 est le code : ChainSolver, version 2.34. Les courbes des sections efficaces présentées sont obtenues à partir du code JANIS.

### 2.1. Le code de calcul ChainSolver 2.34

Le code ChainSolver, développé par *E. G. ROMANOV*, permet d'étudier la simulation numérique de différents processus de la transmutation nucléaire d'un radioélément soumis à des flux neutroniques [36]. Il est destiné à la réalisation de calculs concrets pour la dernière étape avant une irradiation ou avant la livraison des isotopes au client. Il prend en considération les paramètres suivants : la dépression du flux de neutrons thermiques, la résonance d'auto-protection des isotopes au cours de l'irradiation et la période d'irradiation. A chaque étape d'irradiation, les flux neutroniques spécifiques (thermique, épi-thermique et rapide), les périodes d'irradiation et les structures initiales des produits à transmuter doivent être comptés séparément. Ces calculs permettent de spécifier les produits et les impuretés inévitables résultants ainsi que le mode choisi pour l'irradiation. Au cours des calculs de transmutation, le réacteur nucléaire est considéré comme une source de neutrons, en supposant que les changements dans la composition dans son cœur sont insignifiants [36, 37].

Le programme ChainSolver est basé sur la résolution *des équations différentielles de Bateman*, décrivant la chaîne de transformation d'un isotope selon les modes de désintégrations spontanées et les transmutations nucléaires induites par les réactions de capture neutronique. L'interface de ce programme est construite d'une base du *composant visuel Delphi*, qui affiche cinq pages complémentaires. Chaque page est destinée à effectuer un ensemble de tâches nécessaires pour le calcul des quantités accumulées et/ou dérivées [36, 37].

### a. La page « Chain »

Cette page (Fig 3.1) permet aux utilisateurs de créer et d'éditer la chaîne de transmutation. Cette dernière est construite en introduisant les états des éléments, dont l'utilisateur doit taper le nom de l'isotope dans le panneau d'édition « States » et appuyer ensuite sur l'instruction « Add ». Il est possible d'ajouter automatiquement des autres nucléides à l'aide du bouton d'expansion « ... ». Pour la construction du lien entre les états, il faut vérifier l'instruction « Build Links » en choisissant les types de liens appropriés : « Decay » pour une désintégration radioactive, « Capture » pour une capture neutronique, « Fission » pour une fission induite par neutron, « Seuil » pour une réaction de seuil. Les données nucléaires disponibles dans le fichier ORIP\_XXI (bibliothèque interne de données) sont chargées automatiquement dans ce programme en sélectionnant la case « Load DB ». Elles sont présentées selon le lien (ou l'état) choisi dans la partie inférieure de la page sur le panneau « Link ». L'enregistrement ou le rechargement de chaîne construite se font par les instructions « Save Chain » ou « Load Chain », respectivement [36, 37].

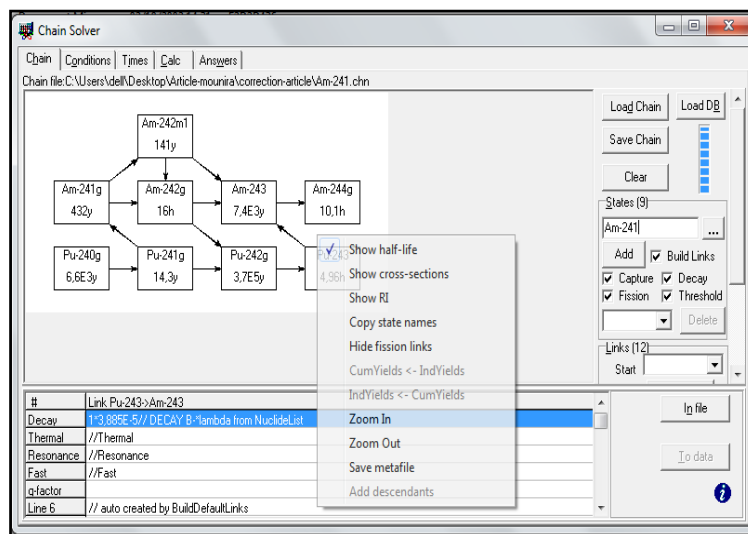
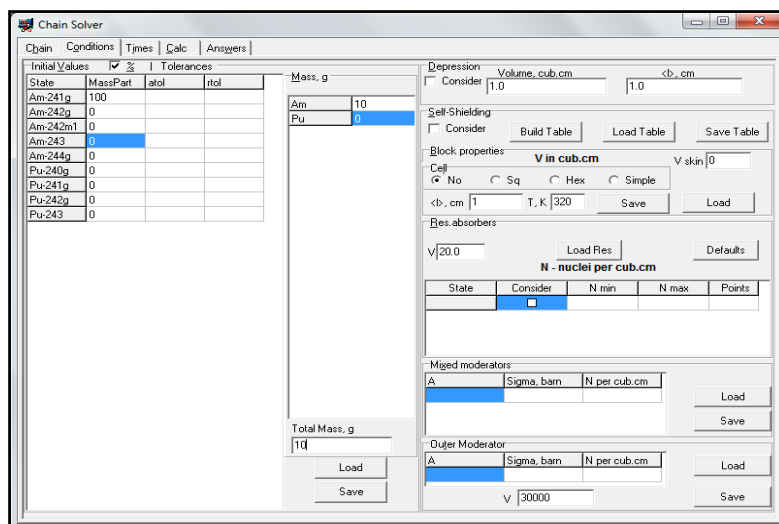


Fig.3.1. La page « Chain ».

### b. La page « Conditions »

La page des conditions, donnée à la figure 3.2, nous permet d'introduire les caractéristiques des différents composants de l'échantillon à irradier : les masses initiales des nucléides, leur dépression de flux thermique et leur auto-protection des résonances (self-shielding). Dans le tableau gauche de la page « Initial values », les poids des nucléides présents dans la chaîne sont placés (en gramme). Les masses des éléments sont définies dans

le tableau « masses, g ». La valeur de la masse totale de l'échantillon est placée dans la case « Total mass, g ». Ces informations sont utilisées pour l'élaboration des résultats finaux. Les paramètres des colonnes « atol » et « rtol » définissent les tolérances absolues et relatives pour chaque variable du système des équations différentielles ordinaires décrivant la transmutation nucléaire (*équations de Bateman*). Si les champs "atol" et "rtol" sont vides, des valeurs par défaut sont utilisées (environ  $10^{-7}$ ). Pour tenir compte de la dépression du flux, il est nécessaire de sélectionner le panneau « Dépression » et d'entrer le volume de l'échantillon à irradier. Les calculs qui tiennent compte de l'auto-protection des résonances sont extrêmement compliqués et demandent un grand nombre de paramètres supplémentaires [36, 37].



**Fig.3.2.** La page « Conditions ».

### c. La page « Time »

La page « Time », illustrée à la figure 3.3, permet d'introduire les paramètres et les conditions d'irradiation. Dans l'éditeur « Time interval » on introduit des paires de valeurs : la période d'irradiation (jours) et la puissance du réacteur correspondante (MW). Au dessous, la température du gaz neutronique en Kelvin est introduite dans la case « Tn.g ». Dans les cases « Th », « Res » et « Fast » sont donnés les flux : thermique, de résonance et rapide. Ainsi la puissance nominale du réacteur est mentionnée dans la case « Nominal » [36].

Le programme donne la possibilité d'effectuer l'irradiation à plusieurs étapes, lorsque l'échantillon à transmuter est placé dans différentes positions d'irradiation dans un même réacteur, ou dans différents réacteurs avec des flux et des puissances différents. Pour cela deux boutons sont utilisés, le bouton « New » permet d'ajouter une nouvelle étape

d'irradiation, et le bouton « Del » permet de supprimer la dernière étape introduite. Il est nécessaire de terminer les périodes d'irradiation par une paire de valeurs qui définit la durée du stockage après l'irradiation avec une valeur de puissance nulle. Il y a aussi deux boutons « Save » et « Load », qui sont destinés à enregistrer et à rappeler le fichier portant les étapes multiples d'irradiation [36, 37].

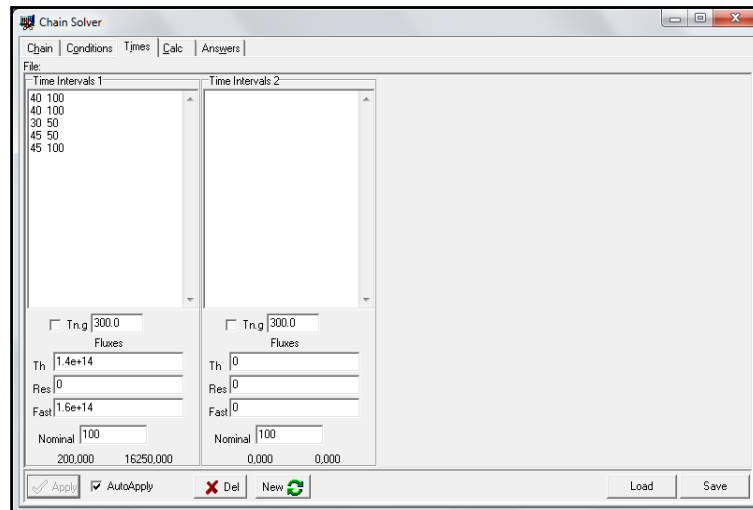


Fig.3.3. La page « Time ».

#### d. La page « Calc »

La page de calcul « Calc », présentée à la figure 3.4, donne l'interface aux différentes méthodes utilisées pour résoudre le système *des équations différentielles ordinaires de Bateman*, qui décrit la chaîne de transmutation du nucléide étudié. Quatre sous-programmes solutionneurs sont disponibles dans cette page : VODE, LSODA, RADAU et MEBDF, qui font appel à des bibliothèques dynamiquement chargées « DLL ». Les solutionneurs emploient des méthodes de calcul du Jacobien, en sélectionnant la case « JAC » [36, 37].

Après le choix du solutionneur, le calcul commence en pressant le bouton « Calc ». Dans un tableau, les poids calculés de tous les isotopes présents dans la chaîne construite pour chaque intervalle de temps sont affichés, en indiquant les flux thermiques correspondants.



Time	Flux therm.	Am-241g	Am-242g	Am-242m1	Pu-242g	Pu-240g	Pu-241g
0	1.4E14	10	0	0	0	0	0
40	1.4E14	7.5083	0.043269	0.047238	0.34915	0	0
80	7E13	5.6376	0.032488	0.036115	0.61469	0	0
110	7E13	5.0628	0.01516	0.03245	0.70111	0	0
155	1.4E14	4.3086	0.012902	0.027619	0.81011	0	0
200	1.4E14	3.1209	0.017985	0.020008	0.96998	0	0

Fig.3.4. La page « Calc ».

### e. La page « Answers »

La page des réponses présente les résultats de calculs effectués, voir la figure 3.5. La case à cocher "A\_Z" permet le classement alphabétique des noms des états du nucléide. Le choix de l'unité des activités obtenues est possible sur la case « Activity Units » : en Curie (Ci) ou en Becquerel (Bq). Le type de mesure sera affiché dans le tableau et déterminé à partir du choix effectué dans le groupe « What » :

"Nuclei" : le nombre de noyaux des isotopes de la chaîne pour chaque intervalle temporel.

"Mass" : les poids (en grammes).

"Activity A" : l'activité alpha.

"Activity B" : l'activité bêta.

"Activity CE" : l'activité résultante de désintégrations par capture électronique ou  $\beta^+$ .

"Activity IT" : l'activité résultante de désintégrations par transition isomérique.

"Activity Total" : l'activité totale.

"Activity per element g" : l'activité totale pour une gramme de la masse de l'élément.

"Isotope parts" : la partition isotopique des éléments présents dans la chaîne.

"Masse yield" : le rendement de masse par gramme des éléments initiaux.

"Depression" : les facteurs de dépression.

"SSK (slow!!!)" : les facteurs de l'auto-protection des résonances.

"Fiss.engr.(Mev, 200)" : la valeur de l'énergie de fission (MeV).

Tous les résultats obtenus sont enregistrés dans un fichier de type feuille Excel, en sélectionnant le menu « Save slow results », puis en appuyant sur le bouton « Excel » [36, 37].

Time	Flux (therm)	Am-241g	Am-242g	Am-242m1	Am-243	Am-244g	Pu-240g	Pu-241g
0	1,4E14	10	0	0	0	0	0	0
40	1,4E14	7,5083	0,043269	0,047238	0,15715	3,7979E-6	0	0
80	7E13	5,6376	0,032488	0,036115	0,28256	6,8846E-6	0	0
110	7E13	5,0628	0,01516	0,03245	0,30627	3,8008E-6	0	0
155	1,4E14	4,3086	0,012902	0,027619	0,33642	4,1765E-6	0	0
200	1,4E14	3,1209	0,017985	0,020008	0,41227	1,0081E-5	0	0

Fig.3.5. La page « Answers ».

## 2.2. Le programme de présentation JANIS

JANIS (JAVA-based Nuclear Information Software) est un programme de présentation, qui permet d'accéder aux données contenues dans les grandes bases de données expérimentales EXFOR et les fichiers d'évaluation principaux ENDF/B, JEF(F), JENDL, BROND, ..etc, et de les comparer entre eux [38]. La figure 3.6 montre la feuille principale du programme JANIS, qui présente le tableau des nucléides. Les propriétés du nucléide sélectionné sont affichées à l'aide de documents textuels, graphiques ou tableaux. Les sous sections suivantes décrivent les caractéristiques générales de ce code [39].

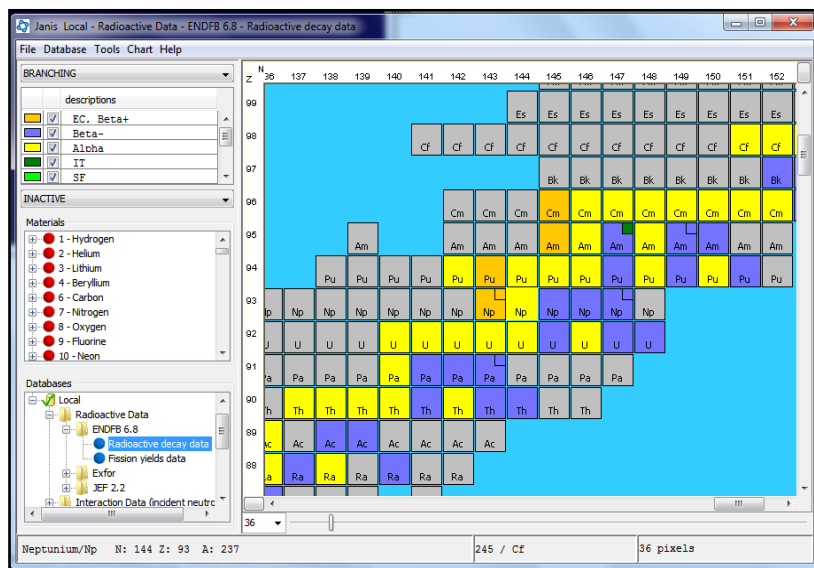
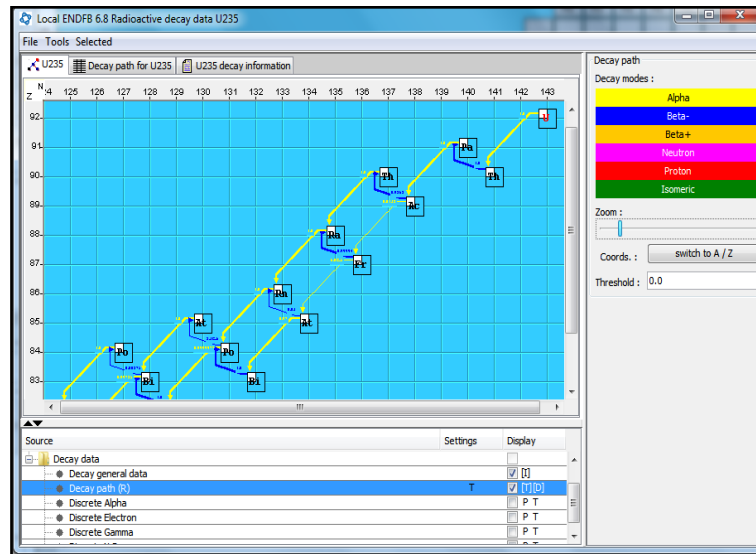


Fig.3.6. La fenêtre de navigation du programme JANIS.

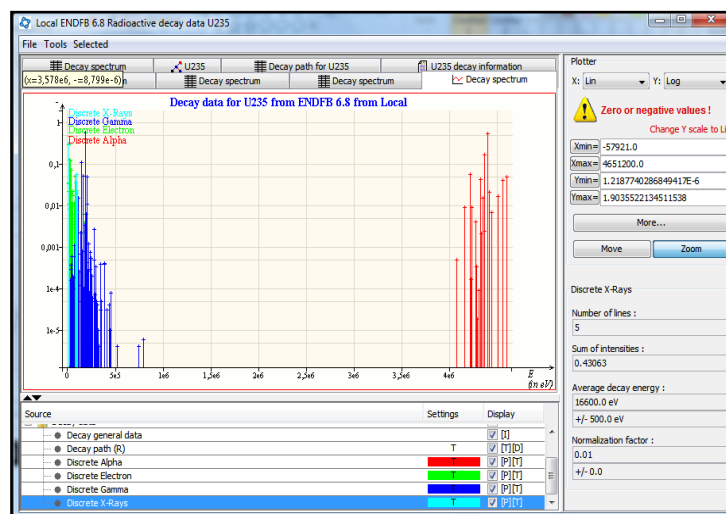
### 2.2.1. Données de décroissance radioactive

Les propriétés importantes des données de décroissance radioactive des radionucléides sont fournies : la masse de l'isotope, l'énergie d'excitation, le spin, la parité, la demi-vie, les énergies et les modes possibles de désintégration, qui sont donnés avec leur rapport d'embranchement et leur nucléide produit. La chaîne de filiation du radio-isotope vers la stabilité est ainsi montrée [38, 39], voir la figure 3.7.



**Fig.3.7.** La fenêtre de la chaîne de filiation de la base ENDFB 6.8 (exemple U-235).

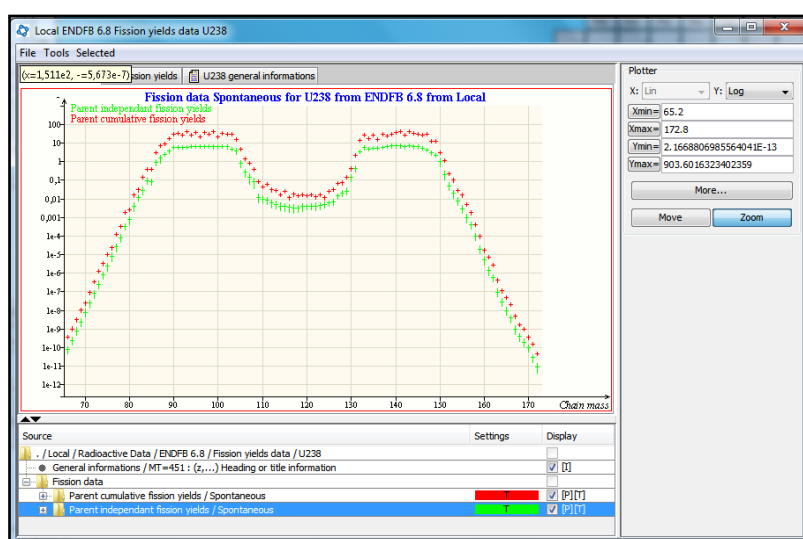
Les spectres discrets et continus des particules émises (rayons-X et gamma, les particules alpha, bêta+ et bêta-) sont représentés dans JANIS à l'aide de tableaux et de graphiques, voir la figure 3.8 [38, 39].



**Fig.3.8.** La fenêtre présentant les spectres discrets des particules émises donnés par la base ENDFB 6.8 (exemple U-235).

### 2.2.2. Données des produits de fission

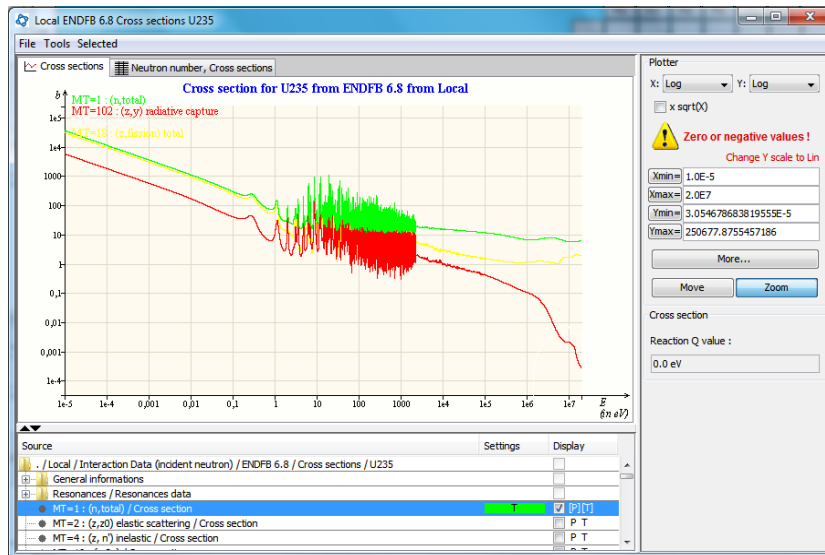
Il existe des données de produits de fission comme des produits indépendants (qui sont directement produits par fission avant les neutrons retardés, désintégration bêta, etc.) et des produits cumulatifs (qui représentent toutes les branches de décomposition après la fission). JANIS affiche ces produits à l'aide de tableaux et de graphiques, voir la figure 3.9. Ces produits dépendent de l'énergie des neutrons, qui provoquent la fission. Les produits cumulatifs et indépendants sont donnés selon les spectres neutroniques voulus (fission induite par neutron thermique, ou par neutron rapide..). Les produits de fission spontanée sont également fournis [38, 39].



**Fig.3.9.** La fenêtre présentant le spectre de produits de fission donné par la base ENDFB 6.8 (exemple U-238).

### 2.2.3. Données d'interaction

Les données principales affichées dans cette catégorie sont les sections efficaces d'interactions, présentées à la figure 3.10. Elles comprennent aussi les incertitudes associées, les paramètres de résonance, les distributions de l'énergie, les distributions angulaires et les distributions corrélées énergie-angle. Les données expérimentales peuvent être tracées ainsi, avec des options de recherche combinant les identificateurs de réaction, le laboratoire et la date d'expérience [38, 39].



**Fig.3.10.** La fenêtre présentant le spectre de sections efficaces d'interaction (exemple U-235).

## Chapitre IV

### Transmutation de l' $^{241}\text{Am}$ dans le réacteur HFR de Petten

#### 1. Généralités sur l'Américium-241

L'Américium-241, noté  $^{241}\text{Am}$ , est l'isotope le plus important des 19 isotopes connus de l'Américium ( $^{231}\text{Am}$  à  $^{249}\text{Am}$ ) [40], du numéro atomique 95 et du nombre de masse 241, avec un spin 5/2- pour une masse atomique de 241.0568291 g/mol [41]. Il est caractérisé par un excès de masse de  $52\,930\,224 \pm 1\,957 \text{ eV}/c^2$  et une énergie de liaison nucléaire de  $1\,817\,935\,000 \pm 1\,984 \text{ eV}$  [41].

#### 1.1. Caractéristiques

• **Chimiques** : L'Américium est un métal blanc argenté, fortement électro-négatif. Il s'oxyde rapidement en présence d'Oxygène. En solution aqueuse, l'Américium existe aux états d'oxydation III, IV, V, VI et VII, où l'état trivalent est le plus stable [26, 42].

• **Nucléaires** : L'Américium est un produit dérivé du Plutonium. Le  $^{239}\text{Pu}$  capture deux neutrons produisant du  $^{241}\text{Pu}$  qui se désintègre à son tour à 99.99755 % par émission  $\beta^-$  en  $^{241}\text{Am}$  avec une demi-vie relativement courte de 14.32 ans [43]. L' $^{241}\text{Am}$  se désintègre avec une demi-vie de 432.2 années en Neptunium-237, qui est radioactif, en émettant principalement des particules alpha, mais aussi des rayons gamma [41, 44]. Sa chaîne de filiation se termine par le Bismuth-209 (stable), figure 4.1 [41].

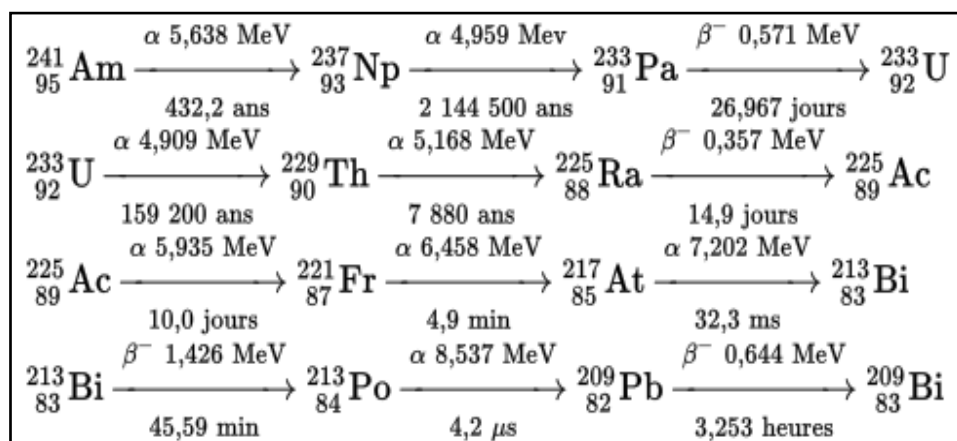


Fig.4.1. Chaîne de filiation de  $^{241}\text{Am}$  [41].

Le spectre énergétique de la désintégration de l'<sup>241</sup>Am en <sup>237</sup>Np étant cependant complexe avec de nombreuses transitions différentes possibles, génère au total plus de 200 raies d'émissions alpha, gamma et X [41, 45] (voir l'annexe A). L'<sup>241</sup>Am subit également une fission spontanée avec une probabilité voisine de  $4 \cdot 10^{-10}$  [41]. Il présente une radioactivité de 127.0 GBq/g [41].

## 1.2. Origines

L'Américium est un élément totalement artificiel. Son isotope <sup>241</sup>Am mesuré dans l'environnement peut provenir d'un rejet direct ou de la décroissance du <sup>241</sup>Pu. Les principaux rejets sont :

- **Les expositions nucléaires atmosphériques** : La plupart de l'Américium-241 dans l'environnement provient des essais atmosphériques d'armes nucléaires pendant les années 1945 et 1960 [44]. Depuis les premiers essais d'armes nucléaires,  $3 \cdot 10^{11}$  Bq de <sup>241</sup>Am auraient été déposés avec les retombées atmosphériques, répartis essentiellement dans l'hémisphère Nord [42, 43].

- **Les rejets d'installations nucléaires** : L'Américium est produit artificiellement dans les réacteurs nucléaires. Les rejets dans l'environnement ont principalement lieu lors du retraitement des combustibles irradiés [42].

- **Les rejets accidentels** : Les accidents nucléaires provoquent une contamination de l'environnement. Citant, les deux accidents d'avions B52 à Palomares (Espagne, 1966) et à Thulé (Groenland, 1968) [42]. En ce qui concerne les installations nucléaires, des rejets accidentels ont eu lieu aux USA et en Oural (complexe de Tchéliabinsk). Il faut également noter l'accident du réacteur de Windscale (Sellafield, Grande Bretagne) en 1956, mais surtout celui de Tchernobyl (Ukraine) en 1986, au cours duquel la quantité de <sup>241</sup>Am déposée sur la zone d'exclusion, à l'exception de la centrale et des stockages de déchets, serait de  $1.8 \cdot 10^{13}$  Bq en 2000 [42, 43].

## 1.3. Mobilité et biodisponibilité

- **Dans les sols** : L'Américium est un radioélément très peu mobile dans les écosystèmes terrestres, il tend à rester en surface. Sa rétention étant très élevée, celle-ci dépend du type de sol et, en particulier, elle augmente avec le pH du sol. Les composés organiques insolubles (humine, acides humiques) tendent à retarder la migration, alors que les acides fulviques et les molécules organiques de faible taille solubles pourront la favoriser, par formation de

complexes mobiles [42]. L'association chimique ou biologique avec les colloïdes peut également augmenter le transport dans les macropores du sol, l'action des carbonates, en sol alcalin, tendrait en revanche à immobiliser le radionucléide. Les facteurs essentiels du déplacement seraient l'activité biologique (macrofaune, racines, productions de substances organiques complexantes) et les pratiques agricoles (labours). Les facteurs de transfert racinaires sont relativement bien connus, mais la dispersion des valeurs atteint plusieurs ordres de grandeurs, ils sont d'autant plus élevés que le pH du sol diminue, tout en restant faibles ( $10^{-3}$  à  $10^{-5}$ ) [42].

• **Dans les eaux continentales :** L'Américium est prédominant dans la fraction particulaire. Sa solubilité est augmentée pour les pH acides et en présence de molécules organiques. Il forme aisément des colloïdes avec des molécules organiques et inorganiques, ce qui tend à favoriser sa mobilité [42]. Dans les sédiments, il est lié aux particules fines, argiles et limons. Sa remobilisation vers la colonne est favorisée par la bioturbation, les courants et les oxy-hydroxydes de fer. Les facteurs de transfert trophiques sont d'autant plus faibles qu'on s'élève dans les niveaux trophiques. Pour les organismes ayant un rapport surface/volume élevé, l'accumulation est gouvernée par l'adsorption. Pour les poissons, la contamination par voie trophique domine la voie directe dans un contexte de contamination chronique. Aucune bioamplification de l'Américium n'a été mise en évidence, les facteurs de transfert trophique s'échelonnant de  $0.2$  à  $2 \cdot 10^{-3}$ . Les tissus les plus contaminés sont le squelette, le tube digestif, les reins, et à un degré moindre, les muscles [42].

## 2. Le recyclage de l'<sup>241</sup>Am dans un réacteur nucléaire

L'Américium-241 est l'actinide mineur qui contribue principalement, à court et à long terme, à la radiotoxicité potentielle du combustible utilisé après retraitement. Il est donc souhaitable d'envisager de prolonger le retraitement du combustible afin de le récupérer et de le recycler en réacteur.

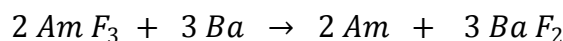
### 2.1. Extraction de l'Américium du combustible utilisé

Le comportement chimique de l'Américium, similaire au Curium et aux Lanthanides, caractérisé par une valence III très stable, rend difficile son extraction. Des nombreuses études sont menées dans le but de synthétiser des nouvelles molécules extractantes afin d'arriver à l'extraction sélective de l'Américium avec un rendement de 99.9 %. L'Américium peut également être isolé à l'aide d'une série de procédés chimiques complémentaires, qui suivent le procédé PUREX, déjà tous discutés en détail dans le chapitre I. Il a été démontré qu'un

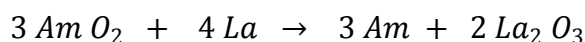


grand nombre de ligands hétérocycliques contenant des atomes donneurs N-soft sont capables de séparer les ions actinides trivalents (Am(III) et Cm(III)) des ions lanthanides trivalents Ln(III) [46, 47, 48]. La séparation de l'Am du Cm peut être réalisée en traitant la suspension de leurs hydroxydes, où l'Am(III) s'oxyde en Am(IV) qui peut être séparé du Cm(III) [47]. D'autre part, il est possible d'extraire Am(III) à partir du Cm(III) en utilisant la chromatographie employant des résines organiques [46, 47].

L'Américium métallique est obtenu par la réduction de ses composés. Le fluorure d'Américium(III) a été utilisé à priori pour cette tâche. La réaction a été réalisée en utilisant comme réducteurs de Baryum élémentaire dans l'eau et l'Oxygène de l'environnement à l'intérieur d'un appareil fait de Tantale et de Tungstène [49] :



Une méthode alternative, qui est la réduction du dioxyde de l'Américium par le Lanthane métallique ou le Thorium [49] :



## 2. 2. Scénarios de recyclage de l'Américium

Le recyclage de l'Américium-241, en mode homogène n'est pas privilégié en raison d'un grave impact sur les performances et la contamination de l'ensemble du cycle du combustible par les isotopes de Pu et Cm produits, par contre en mode hétérogène semble être particulièrement intéressant [50]. Dans ce dernier cas, la cible peut se présenter sous forme d'oxyde, de métal, de nitrure ou de carbure [51].

- **Oxydes** : C'est sous sa forme oxyde que l'Américium a été le plus étudié et en particulier sous sa forme dioxyde AmO<sub>2</sub> [51].
- **Métalliques** : L'Américium présente des inconvénients pour être utilisé directement comme cible, dû à son comportement défavorable sous irradiation (gonflement), au nombre de transition de phase et à son faible point de fusion (1446 K) [51].
- **Nitrures** : Les nitrures d'Américium ont été beaucoup moins étudiés que les oxydes d'Américium. Jusqu'à présent, aucune étude n'a été publiée sur des nitrures d'Américium ternaires. L'information existante est limitée à des données de base du mononitrure d'Américium AmN [51].

- **Carbures** : Peu d'études ont été réalisées sur les carbures d'Américium. Le seul composé identifié est le sesquicarbure  $\text{Am}_2\text{C}_3$  isomorphe de  $\text{NP}_2\text{C}_3$  [51].

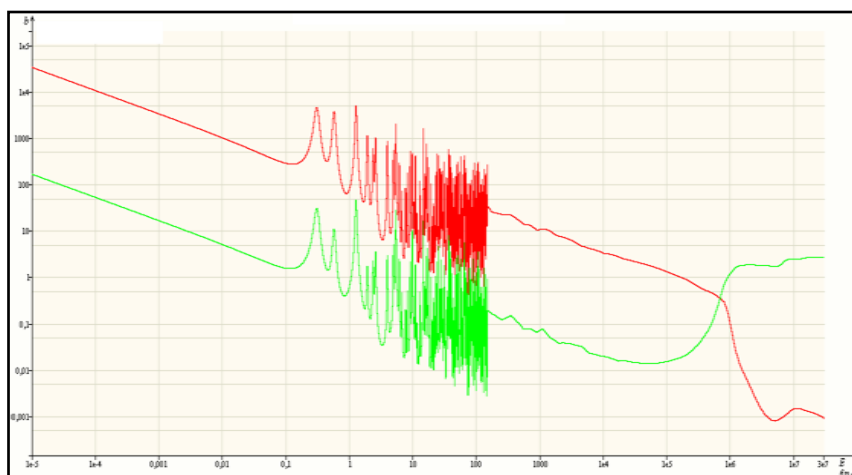
Les conséquences du recyclage de l'Am sur la sécurité du cœur et le cycle du combustible de plusieurs catégories de réacteurs font l'objet de nombreuses études. Parmi lesquelles, on cite quelques études effectuées dans les réacteurs thermiques à eau pressurisée REP [52], dans les réacteurs à eau bouillante REB [53], dans les réacteurs rapides (réacteur à sel fondu [54], réacteur refroidi au Sodium [55] et les réacteurs expérimentaux JOYO [56] et BOR-60 [57]) et aussi dans les systèmes hybrides ADS [58]. Par conséquent, le recyclage multiple de cet actinide dans un réacteur rapide ainsi que son mono-recyclage dans un réacteur thermique à flux de neutrons thermiques (et/ou épi-thermiques) élevé sont considérés en priorité [50].

### 2.3. Le comportement de l'Américium sous irradiation

Dans un réacteur nucléaire et sous flux neutronique,  $^{241}\text{Am}$  pourra suivre trois transformations nucléaires différentes : réaction de capture neutronique ( $n, \gamma$ ), réaction de fission ( $n, f$ ) et désintégration naturelle.

#### 2.3.1. Les sections efficaces de $^{241}\text{Am}$

La figure 4.2 donne les sections efficaces de l'Américium-241 en fonction de l'énergie des neutrons incidents. Pour des neutrons d'énergie inférieure à 1 eV (domaine des neutrons lents ou thermiques), les sections efficaces de capture sont prédominantes, la capture est environ cent fois plus probable que la fission. C'est également le cas pour des énergies allant de 1 eV à 1 MeV (domaine des neutrons épi-thermiques où les captures ou les fissions se produisent à des niveaux précis d'énergies, expliquant les oscillations). Au-delà de 1 MeV (domaine des neutrons rapides), pour le noyau  $^{241}\text{Am}$ , les fissions deviennent plus probables que les captures [9].



**Fig.4.2.** Sections efficaces de capture (en rouge) et de fission (en vert) pour  $^{241}\text{Am}$ , obtenues par le code JANIS grâce à la bibliothèque de données ENDF B 6.8.

De ce fait, La transmutation de l'Américium, par des réactions de capture neutronique suivies de fission, est privilégiée dans les réacteurs thermiques et/ou épi-thermiques, en tenant compte de ses très grandes sections efficaces de capture dans ces domaines énergétiques. L'annexe B présente les courbes des sections efficaces de l'ensemble des actinides présents dans la chaîne de transmutation de  $^{241}\text{Am}$  discutée dans le paragraphe, qui suit.

### 2.3.2. La chaîne de transmutation de $^{241}\text{Am}$

Une représentation simplifiée de la chaîne d'évolution de l'Américium-241 dans un réacteur à neutrons thermiques est reportée sur la figure 4.3 [59].  $^{241}\text{Am}$  peut se transmuter par capture neutronique en  $^{242\text{m}}\text{Am}$  (fortement fissile) qui disparaît majoritairement par fission, et en  $^{242}\text{Am}$  qui décroît (période de 16 heures) principalement par désintégration bêta<sup>-</sup> en  $^{242}\text{Cm}$ , qui peut aussi donner naissance à  $^{243}\text{Am}$  par capture neutronique. Le  $^{242}\text{Cm}$  se transforme rapidement par désintégration alpha en  $^{238}\text{Pu}$  (fertile) et par capture en  $^{243}\text{Cm}$  (fissile) qui, lui-même, disparaît majoritairement par fission.  $^{238}\text{Pu}$  se transforme par capture en  $^{239}\text{Pu}$  (fortement fissile) qui disparaît majoritairement par fission. L'isotope  $^{243}\text{Am}$  peut être détruit par capture neutronique en donnant le  $^{244}\text{Cm}$  via  $^{244}\text{Am}$  [9, 59, 60].

En tout cas, plusieurs neutrons sont nécessaires pour transmuter  $^{241}\text{Am}$  en isotopes fissiles du Plutonium et du Curium. Par conséquent, la transmutation de cet actinide doit être effectuée en priorité dans les réacteurs à haut flux (HFR), caractérisés par leur haute densité de neutrons thermiques (et/ou épi-thermiques). Après l'ajout de  $^{241}\text{Am}$  au cœur du réacteur thermique HFR, les neutrons thermiques diminuent et les neutrons à haute énergie

augmentent [52].  $^{241}\text{Am}$  peut agir comme un poison dans les réacteurs thermiques, en réduisant la concentration de l'acide borique dans le liquide de refroidissement et en augmentant le coefficient de réactivité négative, toutes ces conséquences peuvent réduire considérablement la possibilité d'un accident dans le cycle du combustible. Ainsi, la distribution hétérogène des cibles de l'Américium dans le cœur peut éviter considérablement la diminution de la réactivité initiale après l'ajout de  $^{241}\text{Am}$  [52].

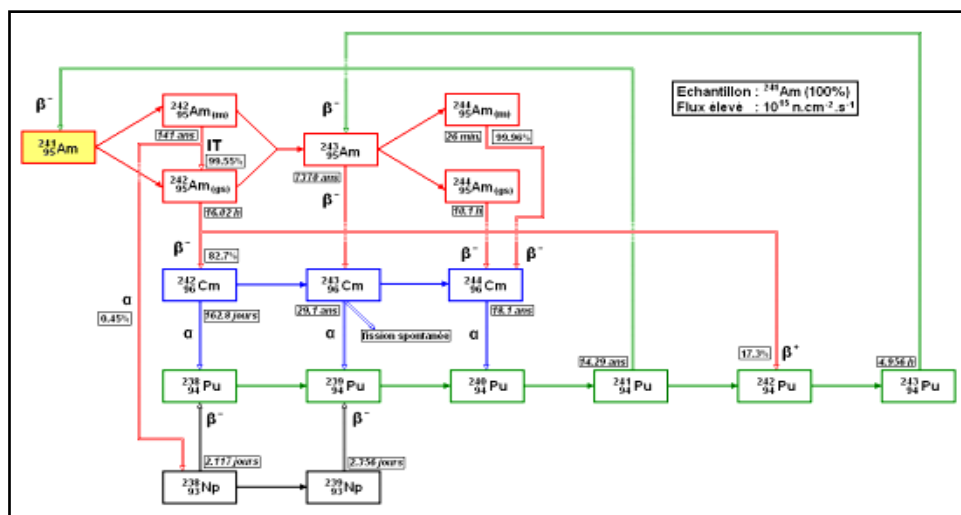


Fig.4.3. Chaîne d'évolution de l'Américium-241 dans un réacteur nucléaire [59].

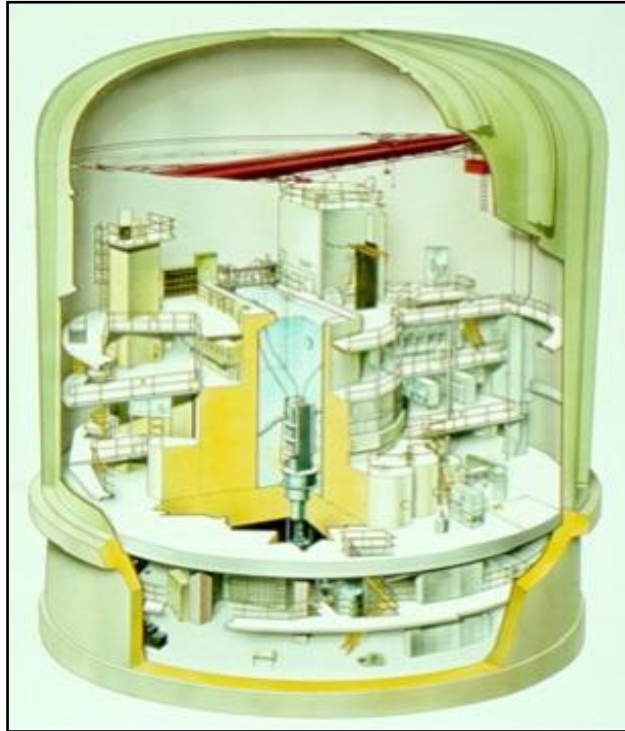
### 3. La transmutation de $^{241}\text{Am}$ dans le réacteur à haut flux de Petten

#### 3.1. Description du réacteur HFR de Petten

La construction du réacteur de recherche a débuté en 1957 à Petten, Pays-Bas (Hollande). Le réacteur à haut flux (High Flux Reactor HFR) est mis en service quatre ans plus tard en 1961. Afin de garantir un accès à la recherche internationale, le réacteur avait été subordonné à la Commission Européenne alors qu'il était encore en construction [61]. Sa puissance thermique initiale de 20 MW a été portée à 30 MW en 1966, puis à 45 MW au cours des années 1970 [62]. Exploité par le groupe NRG (the Nuclear Research and Consultancy Group) depuis 2005, le HFR est devenu incontournable aujourd'hui tant pour la production d'isotopes que pour la recherche. Il est le premier producteur de radio-isotopes à des fins médicales en Europe et figure en deuxième position dans le monde. Un nouveau réacteur est encore à l'étude pour prendre le relais du HFR (projet PALLAS) [61].

Le réacteur de Petten, décrit à la figure 4.4, est constitué d'une cuve contenant de l'eau légère, qui sert comme modérateur et caloporteur [63, 64]. Le cœur du réacteur est constitué

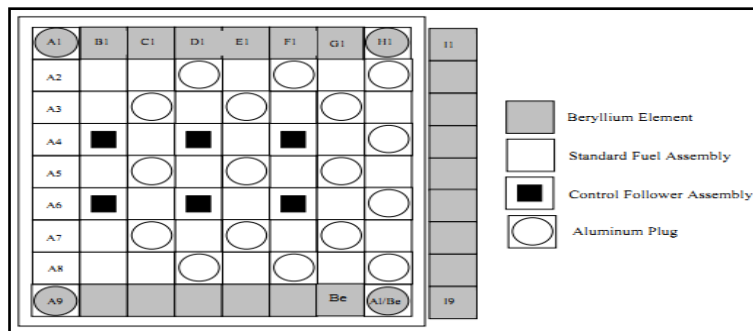
au total de 33 éléments de combustible, 6 tiges de commande en Cadmium, 25 éléments de réflecteur en Béryllium (9 éléments sont placés à l'extérieur de la zone de base de la cuve du réacteur) et 17 positions destinées pour les expériences d'irradiation [64, 65, 66]. La figure 4.5 donne la configuration du cœur de ce réacteur [66, 67].



**Fig.4.4.** Structure simplifiée du réacteur HFR de Petten [63, 64].

Les assemblages combustibles (section horizontale 81 mm x 77 mm et hauteur 924 mm) contiennent verticalement un arrangement parallèle de 23 plaques de combustible et d'une hauteur de 625 mm. Chaque plaque est constituée d'une couche d'alliages en Uranium et Aluminium, gainée d'Aluminium. L'Uranium est enrichi d'environ 93 % en  $^{235}\text{U}$ . La teneur des assemblages de combustible frais en  $^{235}\text{U}$  est de 420 g [66]. La période d'un cycle d'irradiation en HFR est de 31.5 jours, avec 28 jours en pleine puissance (45 MW). Le nombre annuel de cycles est de 10. Une description détaillée des caractéristiques opérationnelles du réacteur et de ses installations expérimentales est donnée dans les références [66, 68].

Parmi les principaux programmes de recherche réalisés au réacteur Petten HFR, on cite les tests d'irradiation étudiant la transmutation des actinides et des produits de fission à longue durée de vie, en particulier l'incinération du Pu et de l'Am [63].



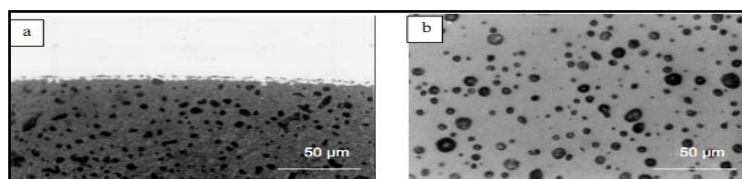
**Fig.4.5.** Arrangement du cœur de réacteur de Petten [67], dimension (729 mm x 750.4 mm) [66].

### 3.2. Les expériences d'irradiation de $^{241}\text{Am}$

Dans le cadre des études de transmutation de l'Américium-241, deux expériences d'irradiation, organisées par la collaboration EFTTRA (Experimental Feasibility of Targets for TRAnsmutation), ont été effectuées au sein du réacteur HFR de Petten, nommées T4 et T4bis [9]. Le travail de groupe EFTTRA est consacré à améliorer les rendements de transmutation, tester et développer les matrices inertes et les combustibles [69].

#### 3.2.1. Test EFTTRA T4

Il s'agit de la première irradiation (1996 -1997) d'une cible contenant 0.68 gramme d'oxyde d'Américium ( $\text{AmO}_x$ ). Préparée par le groupe EFTTRA et réalisée dans le réacteur HFR, elle est mise en œuvre avec des cibles d' $\text{AmO}_2$  micro-dispersé dans une matrice spinelle, sous une fluence comprenant une composante de neutrons rapides égale à  $1.7 \cdot 10^{26}$  neutrons/m<sup>2</sup> [9]. Un gonflement important du matériau (de l'ordre de 18 %) et une déformation de la gaine se sont produits : le gonflement est lié à la fois à l'effet des dommages sur le spinelle (amorphisation) et à la forte rétention, dans les porosités, de l'Hélium et des gaz produits par fission, figure 4.6. En dépit du gonflement important des pastilles, il ne s'est produit ni rupture de gaine, ni fusion de la cible malgré des conditions de fabrication et des propriétés du matériau non optimisées et des conditions d'utilisation insuffisamment adaptées (température trop faible pour permettre le relâchement des gaz de fission) [70, 71, 72].



**Fig.4.6.** Céramographie montrant la porosité des pastilles de l'expérience T4. (a) périphérie de la pastille ; (b) centre de la pastille [71].

### 3.2.2. Test EFTTRA T4bis

Lors de cette irradiation avec la même composition de cible que celle de T4, une fluence ayant une composante rapide égale à  $3.1 \cdot 10^{26}$  neutrons/m<sup>2</sup> a conduit à un taux de transmutation de l'Américium supérieur à 99 % et à un taux de fission de 72 %. Ainsi, six recyclages seraient suffisants pour fissionner 99.9 % de l'Américium initial [9, 73]. Cette expérience constitue à ce jour le record mondial de taux de transmutation atteint sur une cible et démontre la faisabilité expérimentale de la transmutation de l'Américium. Une déformation diamétrale de la gaine et un gonflement des pastilles (voisin de 24 %) ont cependant été observés, malgré une concentration initiale en Américium peu élevée de 0.4 g/cm<sup>3</sup>, ce qui a conduit à rechercher des optimisations de ces cibles en termes de choix des matériaux, de leur structure (micro et macrodispersion) et des conditions d'irradiation. Des examens destructifs ont été lancés sur les cibles T4bis afin de vérifier l'impact d'une transmutation très poussée de l'Américium sur les caractéristiques physiques de ces cibles. Le relâchement d'Hélium à l'origine de la déformation diamétrale de la gaine constatée pour ce crayon est à relier à la quantité importante de pores de taille nanométrique détectée. Plusieurs fissures sont également perceptibles au centre des pastilles, mais celles-ci semblent avoir été comblées du fait de la viscoplasticité accrue du spinelle à cause de l'irradiation [9, 73, 74].

## 4. Evaluation du taux de transmutation de $^{241}\text{Am}$ dans le réacteur HFR de Petten

La transmutation est une technique difficile dans la pratique. Pour améliorer ses performances, il faut que l'énergie des neutrons soit telle que leur section efficace d'interaction soit la plus élevée possible et que les flux de neutrons soient importants. On cherchera donc des réacteurs spécialisés ayant des flux de neutrons thermiques et épi-thermiques élevés. Car dans ces deux domaines énergétiques l'Américium possède des sections efficaces de capture très importantes par rapport à celles de la fission, donc ils sont les mieux pour le transmuter par des réactions de capture suivies de fission. Pour une grande efficacité de transmutation, on a besoin des flux de neutrons élevés. Pour ces raisons, on a privilégié d'utiliser la conception de réacteur à haut flux HFR (High Flux Reactor), qui semble être la meilleure filière pour la destruction des actinides mineurs, en particulier l'Américium.

Dans cette étude, on a simulé les deux tests d'irradiation T4 et T4bis, présentés précédemment, en utilisant le code de calcul de transmutation ChainSolver, version 2.34, pour d'une part évaluer la faisabilité de ce code dans les calculs obtenus au cours des processus de

transmutation d'un radio-isotope ( $^{241}\text{Am}$  dans notre cas) soumis aux flux neutroniques (les concentrations de masse de tous les isotopes présents dans sa chaîne d'évolution, et leurs activités accumulées en fonction des différentes périodes d'exposition, ...), et d'autre part étudier les performances de sa transmutation dans un réacteur nucléaire à haut flux.

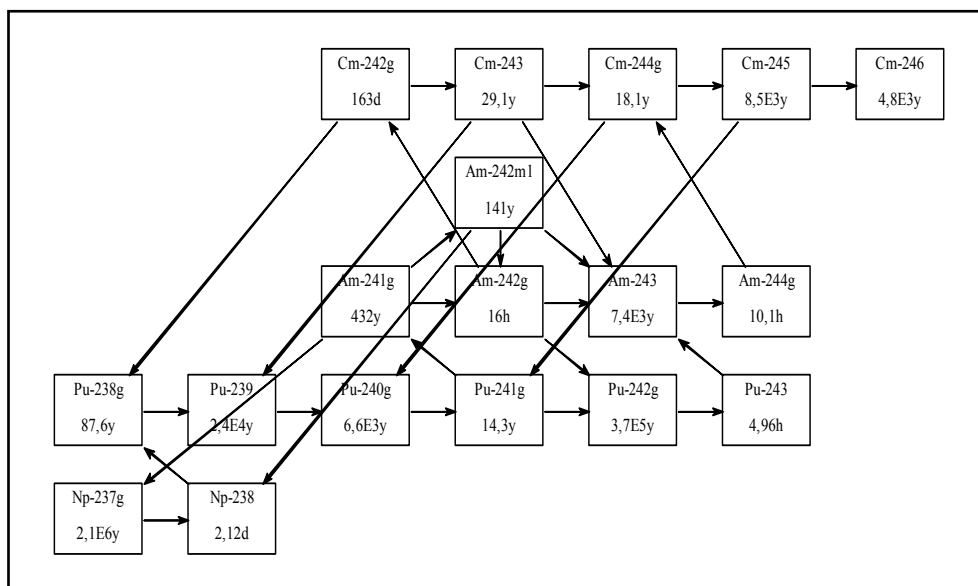
Le paramètre, le mieux adapté pour ces objectifs, est *le taux de transmutation*  $R_{Am}(t)$  exprimé en %, qui est défini à partir de la variation de masse du radionucléide concerné,  $^{241}\text{Am}$ , sous l'exposition neutronique selon l'expression suivante :

$$R_{Am}(t) = \frac{m(0) - m(t)}{m(0)} \times 100$$

$$R_{Am}(t) = \left( 1 - \frac{m(t)}{m(0)} \right) \times 100$$

Où :  $m(t)$  est la masse de l' $\text{Am}^{241}$  à l'instant  $t$ , et  $m(0)$  : sa masse initiale.

L'analyse numérique des processus de transmutation de l'Américium incorporé au sein du réacteur HFR de Petten par le code ChainSolver débute par la création de sa chaîne d'évolution dans la fenêtre « Chain », présentée à la figure 4.7, décrivant les différentes réactions nucléaires possibles produites lors de son irradiation aux flux neutroniques.



**Fig.4.7.** Chaîne de transmutation construite dans le code ChainSolver.

Les échantillons de l'Américium à irradier, supposés dans notre travail, sont composés de 100 % de radio-isotope  $^{241}\text{Am}$  pure de masse égale à 10 g (ces caractéristiques sont



introduites au code grâce à la fenêtre « Conditions ». Ils sont placés dans deux positions d'irradiation au sein du cœur du réacteur HFR de Petten, caractérisées par leurs flux neutroniques (thermique et rapide) durant deux différentes périodes.

Les conditions d'irradiation, concernant les durées d'exposition et les valeurs de flux, appliquées à la page « Times » du code, sont celles effectuées et mesurées expérimentalement aux tests T4 et T4bis, présentées au tableau 4.1 [72, 73, 74].

		T4	T4bis
Temps d'irradiation (JPP)		358.4	652.6
Flux cumulatif $10^{25} \times (\text{m}^{-2})$	Thermique ( $E < 0.683 \text{ eV}$ )	5.21	9.72
	Rapide ( $E > 0.1 \text{ MeV}$ )	16.8	21.28
Flux moyen $10^{14} \times (\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1})$	Thermique ( $E < 0.683 \text{ eV}$ )	1.683	1.724
	Rapide ( $E > 0.1 \text{ MeV}$ )	5.425	3.774

**Tab.4.1.** Conditions d'irradiation appliquées aux tests T4 et T4bis.

Notant que, le temps d'irradiation s'exprime en JPP (Jours en Pleine Puissance), c'est-à-dire que le réacteur fonctionne avec sa puissance nominale (45 MW) durant l'irradiation. Le flux moyen  $\varphi_{\text{moy}}$  est calculé, en divisant le flux cumulatif  $\varphi_{\text{cum}}$  sur le temps d'irradiation  $t_{\text{irr}}$ , comme suit :

$$\varphi_{\text{moy}} = 1.1574 \cdot 10^{-9} \times \left( \frac{\varphi_{\text{cum}}}{t_{\text{irr}}} \right)$$

En respectant les unités des grandeurs mentionnées au tableau ci-dessus, un facteur de multiplication est ajouté pour équilibrer cette égalité.

#### 4.1. Présentation des résultats obtenus

En résolvant *les équations de Bateman*, on peut déterminer les quantités des radionucléides, déjà présents et ainsi produits, lors de l'irradiation des échantillons de l'Américium. Le code affiche les résultats de ces calculs concernant les deux simulations (simulation T4 et simulation T4bis), qui sont indiqués par les deux tableaux présentatifs ci-après 4.2 et 4.3, respectivement. Notant que les résultats de calcul obtenus par les quatre solveurs sont très proches, et compatibles avec les résultats expérimentaux.

Temps (j)	Masses (g)								
	Am-241	Am-242	Am-242m	Am-243	Am-244	Cm-242	Cm-243	Cm-244	Cm-245
0	10	0	0	0	0	0	0	0	0
20	8.4097	0.0574	0.0493	0.1100	$3.1235 \cdot 10^{-6}$	0.9795	0.0021	0.0001	$8.1720 \cdot 10^{-8}$
40	7.0723	0.0483	0.0448	0.2122	$6.1326 \cdot 10^{-6}$	1.7555	0.0076	0.0004	$7.7784 \cdot 10^{-7}$
60	5.9475	0.0406	0.0381	0.2973	$8.6396 \cdot 10^{-6}$	2.3253	0.0147	0.0010	$2.7386 \cdot 10^{-6}$
80	5.0017	0.0341	0.0320	0.3677	$1.0713 \cdot 10^{-5}$	2.7291	0.0225	0.0020	$6.4316 \cdot 10^{-6}$
100	4.2062	0.0287	0.0270	0.4256	$1.2419 \cdot 10^{-5}$	2.9999	0.0301	0.0034	$1.2108 \cdot 10^{-5}$
120	3.5373	0.0241	0.0227	0.4731	$1.3817 \cdot 10^{-5}$	3.1651	0.0372	0.0050	$1.9830 \cdot 10^{-5}$
140	2.9749	0.0203	0.0191	0.5118	$1.4957 \cdot 10^{-5}$	3.2468	0.0434	0.0070	$2.9517 \cdot 10^{-5}$
160	2.5018	0.0171	0.0160	0.5431	$1.5881 \cdot 10^{-5}$	3.2636	0.0485	0.0091	$4.0995 \cdot 10^{-5}$
180	2.1039	0.0143	0.0135	0.5683	$1.6624 \cdot 10^{-5}$	3.2306	0.0527	0.0115	$5.4021 \cdot 10^{-5}$
200	1.7694	0.0121	0.0114	0.5883	$1.7213 \cdot 10^{-5}$	3.1595	0.0557	0.0139	$6.8325 \cdot 10^{-5}$
220	1.4880	0.0102	0.0095	0.6040	$1.7676 \cdot 10^{-5}$	3.0604	0.0579	0.0165	$8.3631 \cdot 10^{-5}$
240	1.2514	0.0086	0.0080	0.6160	$1.8032 \cdot 10^{-5}$	2.9413	0.0591	0.0191	$9.9670 \cdot 10^{-5}$
260	1.0524	0.0072	0.0067	0.6251	$1.8299 \cdot 10^{-5}$	2.8085	0.0596	0.0218	$1.1619 \cdot 10^{-4}$
280	0.8852	0.0060	0.0057	0.6316	$1.8491 \cdot 10^{-5}$	2.6669	0.0594	0.0244	$1.3296 \cdot 10^{-4}$
300	0.7445	0.0051	0.0048	0.6360	$1.8622 \cdot 10^{-5}$	2.5209	0.0587	0.0270	$1.4979 \cdot 10^{-4}$
320	0.6262	0.0043	0.0040	0.6387	$1.8701 \cdot 10^{-5}$	2.3733	0.0575	0.0295	$1.6649 \cdot 10^{-4}$
340	0.5268	0.0036	0.0034	0.6398	$1.8738 \cdot 10^{-5}$	2.2268	0.0559	0.0320	$1.8293 \cdot 10^{-4}$
358.4	0.4489	0.0031	0.0029	0.6399	$1.8741 \cdot 10^{-5}$	2.0944	0.0541	0.0342	$1.9770 \cdot 10^{-4}$

Temps (j)	Masses (g)								
	Cm-246	Np-237	Np-238	Pu-238g	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242g	Pu-243
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
20	$1.8857 \cdot 10^{-9}$	0.0008	$4.7077 \cdot 10^{-6}$	0.0390	0.0018	$3.9758 \cdot 10^{-5}$	$6.4538 \cdot 10^{-7}$	0.2137	$1.7103 \cdot 10^{-5}$
40	$3.7468 \cdot 10^{-8}$	0.0014	$9.1013 \cdot 10^{-6}$	0.1416	0.0127	$5.8291 \cdot 10^{-4}$	$1.8644 \cdot 10^{-5}$	0.4010	$3.2345 \cdot 10^{-5}$
60	$2.0168 \cdot 10^{-7}$	0.0019	$1.2535 \cdot 10^{-5}$	0.2809	0.0363	0.0026	$1.1770 \cdot 10^{-5}$	0.5570	$4.5045 \cdot 10^{-5}$
80	$6.4762 \cdot 10^{-7}$	0.0022	$1.5175 \cdot 10^{-5}$	0.4372	0.0722	0.0070	$4.1144 \cdot 10^{-4}$	0.6868	$5.5609 \cdot 10^{-5}$
100	$1.5637 \cdot 10^{-6}$	0.0025	$1.7161 \cdot 10^{-5}$	0.5965	0.1181	0.0146	$1.0376 \cdot 10^{-3}$	0.7945	$6.4379 \cdot 10^{-5}$
120	$3.1538 \cdot 10^{-6}$	0.0027	$1.8609 \cdot 10^{-5}$	0.7493	0.1708	0.0258	$2.1307 \cdot 10^{-3}$	0.8838	$7.1646 \cdot 10^{-5}$
140	$5.6199 \cdot 10^{-6}$	0.0028	$1.9615 \cdot 10^{-5}$	0.8892	0.2270	0.0408	$3.7998 \cdot 10^{-3}$	0.9576	$7.7655 \cdot 10^{-5}$
160	$9.1506 \cdot 10^{-6}$	0.0029	$2.0259 \cdot 10^{-5}$	1.0123	0.2837	0.0594	$6.1173 \cdot 10^{-3}$	1.0185	$8.2613 \cdot 10^{-5}$
180	$1.3912 \cdot 10^{-5}$	0.0030	$2.0612 \cdot 10^{-5}$	1.1166	0.3386	0.0813	$9.1104 \cdot 10^{-3}$	1.0687	$8.6703 \cdot 10^{-5}$
200	$2.0047 \cdot 10^{-5}$	0.0030	$2.0728 \cdot 10^{-5}$	1.2016	0.3897	0.1059	0.0128	1.1100	$9.0062 \cdot 10^{-5}$
220	$2.7667 \cdot 10^{-5}$	0.0030	$2.0654 \cdot 10^{-5}$	1.2676	0.4356	0.1327	0.0170	1.1439	$9.2825 \cdot 10^{-5}$
240	$3.6856 \cdot 10^{-5}$	0.0030	$2.0428 \cdot 10^{-5}$	1.3154	0.4755	0.1609	0.0218	1.1718	$9.5094 \cdot 10^{-5}$
260	$4.7673 \cdot 10^{-5}$	0.0029	$2.0083 \cdot 10^{-5}$	1.3464	0.5088	0.1898	0.0271	1.1947	$9.6960 \cdot 10^{-5}$
280	$6.0153 \cdot 10^{-5}$	0.0028	$1.9646 \cdot 10^{-5}$	1.3622	0.5355	0.2190	0.0326	1.2136	$9.8496 \cdot 10^{-5}$
300	$7.4307 \cdot 10^{-5}$	0.0027	$1.9140 \cdot 10^{-5}$	1.3646	0.5555	0.2476	0.0384	1.2292	$9.9765 \cdot 10^{-5}$
320	$9.0130 \cdot 10^{-5}$	0.0027	$1.8581 \cdot 10^{-5}$	1.3552	0.5693	0.2754	0.0442	1.2421	$1.0082 \cdot 10^{-4}$
340	$1.0760 \cdot 10^{-4}$	0.0026	$1.7986 \cdot 10^{-5}$	1.3358	0.5771	0.3017	0.0500	1.2529	$1.0170 \cdot 10^{-4}$
358.4	$1.2509 \cdot 10^{-4}$	0.0025	$1.7416 \cdot 10^{-5}$	1.3104	0.5797	0.3244	0.0552	1.2614	$1.0239 \cdot 10^{-4}$

**Tab.4.2.** Résultats obtenus par le solveur VODE du code ChainSolver, concernant la simulation T4.

Temps (j)	Masses (g)									
	Am-241	Am-242	Am-242m	Am-243	Am-244	Cm-242	Cm-243	Cm-244	Cm-245	
0	10	0	0	0	0	0	0	0	0	
40	7.0198	0.0490	0.0448	0.2207	6.5305 10 <sup>-6</sup>	1.7886	0.0079	0.0004	8.473 10 <sup>-7</sup>	
80	4.9280	0.0344	0.0316	0.3811	1.1364 10 <sup>-5</sup>	2.7718	0.0233	0.0022	6.9425 10 <sup>-6</sup>	
120	3.4598	0.0241	0.0222	0.4887	1.4611 10 <sup>-5</sup>	3.2053	0.0384	0.0054	2.1291 10 <sup>-5</sup>	
160	2.4296	0.0169	0.0156	0.5596	1.6749 10 <sup>-5</sup>	3.2961	0.0499	0.0097	4.3832 10 <sup>-5</sup>	
200	1.7057	0.0119	0.0109	0.6049	1.8115 10 <sup>-5</sup>	3.1837	0.0570	0.0147	7.2806 10 <sup>-5</sup>	
240	1.1974	0.0084	0.0077	0.6323	1.8943 10 <sup>-5</sup>	2.9579	0.0602	0.0202	1.0586 10 <sup>-4</sup>	
280	0.8408	0.0059	0.0054	0.6472	1.9396 10 <sup>-5</sup>	2.6769	0.0603	0.0257	1.4083 10 <sup>-4</sup>	
320	0.5906	0.0041	0.0038	0.6537	1.9592 10 <sup>-5</sup>	2.3781	0.0581	0.0310	1.7591 10 <sup>-4</sup>	
360	0.4149	0.0029	0.0027	0.6543	1.9613 10 <sup>-5</sup>	2.0841	0.0544	0.0361	2.0978 10 <sup>-4</sup>	
400	0.2913	0.0020	0.0019	0.6510	1.9516 10 <sup>-5</sup>	1.8079	0.0498	0.0408	2.4154 10 <sup>-4</sup>	
440	0.2047	0.0014	0.0013	0.6451	1.9341 10 <sup>-5</sup>	1.5557	0.0449	0.0450	2.7068 10 <sup>-4</sup>	
480	0.1442	0.0010	0.0009	0.6376	1.9114 10 <sup>-5</sup>	1.3301	0.0398	0.0487	2.9697 10 <sup>-4</sup>	
520	0.1015	0.0007	0.0007	0.6290	1.8859 10 <sup>-5</sup>	1.1317	0.0350	0.0520	3.2032 10 <sup>-4</sup>	
560	0.0717	0.0005	0.0005	0.6199	1.8586 10 <sup>-5</sup>	0.9589	0.0305	0.0549	3.4083 10 <sup>-4</sup>	
600	0.0507	0.0003	0.0003	0.6106	1.8305 10 <sup>-5</sup>	0.8100	0.0263	0.0574	3.5866 10 <sup>-4</sup>	
640	0.0359	0.0002	0.0002	0.6012	1.8024 10 <sup>-5</sup>	0.6824	0.0226	0.0595	3.7402 10 <sup>-4</sup>	
652.6	0.0326	0.0002	0.0002	0.5982	1.7936 10 <sup>-5</sup>	0.6463	0.0215	0.0601	3.7839 10 <sup>-4</sup>	

Temps (j)	Masses (g)									
	Cm-246	Np-237	Np-238	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu-243	
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
40	4.1490 10 <sup>-8</sup>	0.0014	9.2631 10 <sup>-6</sup>	0.1441	0.0132	0.0006	2.0018 10 <sup>-5</sup>	0.4085	3.3755 10 <sup>-5</sup>	
80	7.2009 10 <sup>-7</sup>	0.0022	1.5379 10 <sup>-5</sup>	0.4433	0.0745	0.0074	4.4549 10 <sup>-4</sup>	0.6976	5.7862 10 <sup>-5</sup>	
120	3.4830 10 <sup>-6</sup>	0.0027	1.8782 10 <sup>-5</sup>	0.7569	0.1754	0.0271	2.2798 10 <sup>-3</sup>	0.8955	7.4364 10 <sup>-5</sup>	
160	1.0063 10 <sup>-5</sup>	0.0029	2.0370 10 <sup>-5</sup>	1.0187	0.2899	0.0622	6.4998 10 <sup>-3</sup>	1.0299	8.5573 10 <sup>-5</sup>	
200	2.1985 10 <sup>-5</sup>	0.0029	2.0769 10 <sup>-5</sup>	1.2043	0.3959	0.1104	0.0135	1.1207	9.3148 10 <sup>-5</sup>	
240	4.0323 10 <sup>-5</sup>	0.0029	2.0403 10 <sup>-5</sup>	1.3132	0.4804	0.1669	0.0229	1.1819	9.8246 10 <sup>-5</sup>	
280	6.5665 10 <sup>-5</sup>	0.0027	1.9562 10 <sup>-5</sup>	1.3553	0.5383	0.2261	0.0341	1.2231	1.0169 10 <sup>-4</sup>	
320	9.8199 10 <sup>-5</sup>	0.0026	1.8447 10 <sup>-5</sup>	1.3437	0.5696	0.2831	0.0460	1.2514	1.0405 10 <sup>-4</sup>	
360	1.3779 10 <sup>-4</sup>	0.0024	1.7193 10 <sup>-5</sup>	1.2927	0.5775	0.3339	0.0576	1.2714	1.0571 10 <sup>-4</sup>	
400	1.8407 10 <sup>-4</sup>	0.0022	1.5890 10 <sup>-5</sup>	1.2149	0.5664	0.3760	0.0681	1.2863	1.0695 10 <sup>-4</sup>	
440	2.3653 10 <sup>-4</sup>	0.0020	1.4593 10 <sup>-5</sup>	1.1207	0.5414	0.4081	0.0771	1.2979	1.0792 10 <sup>-4</sup>	
480	2.9458 10 <sup>-4</sup>	0.0019	1.3337 10 <sup>-5</sup>	1.0181	0.5068	0.4298	0.0841	1.3074	1.0871 10 <sup>-4</sup>	
520	3.5760 10 <sup>-4</sup>	0.0017	1.2148 10 <sup>-5</sup>	0.9136	0.4664	0.4416	0.0891	1.3156	1.0939 10 <sup>-4</sup>	
560	4.2499 10 <sup>-4</sup>	0.0015	1.1034 10 <sup>-5</sup>	0.8112	0.4231	0.4443	0.0920	1.3227	1.0999 10 <sup>-4</sup>	
600	4.9617 10 <sup>-4</sup>	0.0014	1.0003 10 <sup>-5</sup>	0.7142	0.3794	0.4393	0.0931	1.3290	1.1051 10 <sup>-4</sup>	
640	5.7059 10 <sup>-4</sup>	0.0013	9.0525 10 <sup>-6</sup>	0.6241	0.3369	0.4277	0.0925	1.3343	1.1095 10 <sup>-4</sup>	
652.6	5.9462 10 <sup>-4</sup>	0.0012	8.7703 10 <sup>-6</sup>	0.5973	0.3239	0.4229	0.0920	1.3358	1.1107 10 <sup>-4</sup>	

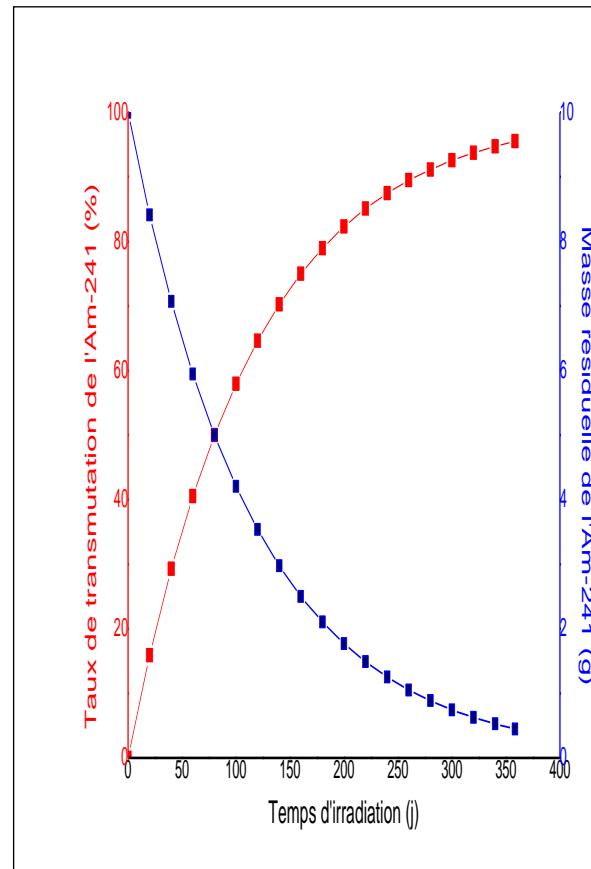
**Tab.4.3.** Masses des actinides calculées par le VODE du code ChainSolver au cours de l'irradiation, pour la simulation T4bis.

## 4.2. Discussion des résultats

Pour *la Simulation T4* et afin d'évaluer les efficacités et les performances de la destruction de l'actinide radiotoxique,  $^{241}\text{Am}$ , par son exposition durant 358.4 jours en pleine puissance à des flux neutroniques intenses au sein du cœur du réacteur HFR de Petten, on doit tout d'abord déterminer *ses taux de transmutation*. Le tableau 4.4 présente les valeurs des taux estimées à chaque période de 20 jours du début jusqu'à la fin de l'exposition.

Temps d'irradiation (j)	Taux de burn-up (%)
0	0
20	15.903
40	29.277
60	40.525
80	49.983
100	57.938
120	64.627
140	70.251
160	74.982
180	78.961
200	82.306
220	85.120
240	87.486
260	89.476
280	91.148
300	92.555
320	93.737
340	94.732
358.4	95.511

**Tab.4.4.** Variation du taux de transmutation de l'Am lors de l'irradiation, concernant la simulation T4.



**Fig.4.8.** Variation de masse résiduelle et de taux de transmutation de  $^{241}\text{Am}$  concernant la simulation T4.

Les variations du taux de transmutation de  $^{241}\text{Am}$  ainsi que sa masse sous irradiation neutronique sont illustrées sur la figure 4.8. Sa masse résiduelle décroît par des réactions de désintégration naturelle et des réactions provoquées selon une loi exponentielle, la loi de décroissance :

$$N(t) = N(0) e^{-(\lambda + \sigma \varphi)t}$$

Elle peut s'écrire aussi comme suit :

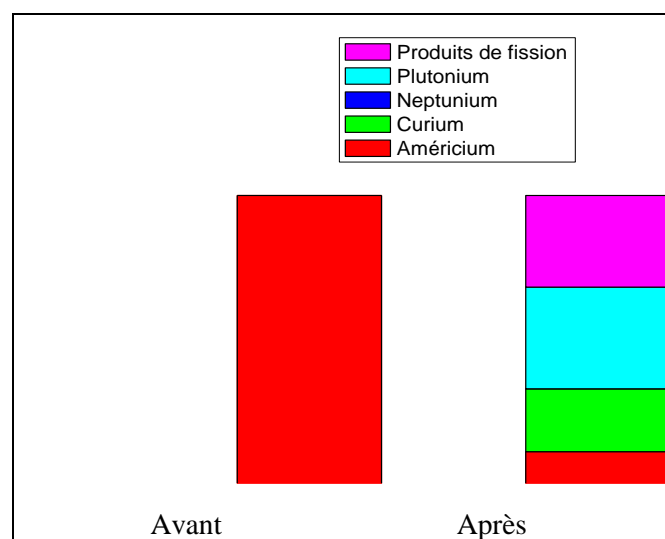
$$m(t) = m(0) e^{-\left(\frac{\ln 2}{T} + \sigma \varphi\right)t}$$

Où :  $N(t)$  et  $m(t)$  sont le nombre de noyaux de nucléide concerné et sa masse à l'instant  $t$ , tel que :  $m(t) = \frac{M N(t)}{N_{Av}}$  ; avec  $M$  sa masse molaire et  $N_{Av}$  le nombre d'Avogadro.  $\lambda$  est sa constante de décroissance naturelle, définie comme :  $\lambda = \frac{\ln 2}{T}$  ; avec  $T$  sa période radioactive (demi-vie).  $\sigma$  et  $\varphi$  sont sa section efficace de réaction provoquée (capture, fission..) et le flux neutronique incident, respectivement.

Le taux de transmutation est inversement proportionnel à la masse. Il croit rapidement au début puis il ralentit légèrement à la fin de l'irradiation selon une variation exponentielle comme suit :

$$R_{Am}(t) = \left(1 - e^{-\left(\frac{\ln 2}{T} + \sigma \varphi\right)t}\right) \times 100$$

Au cours de l'irradiation,  $^{241}\text{Am}$  est transmuté avec des pourcentages très importants, qui dépassent 95 %, après 358.4 jours en pleine puissance. L'échantillon irradié contient au total 6.812 g d'actinides (dont 1.095 g d'Américium, 2.183 g du Curium, 3.531 g du Plutonium et 0.0025 g du Neptunium) et 3.188 g de produits de fission. En fin,  $^{241}\text{Am}$  se transforme avec un pourcentage de 66.6 % en actinides et 33.4 % en produits de fission, voir la figure 4.9.



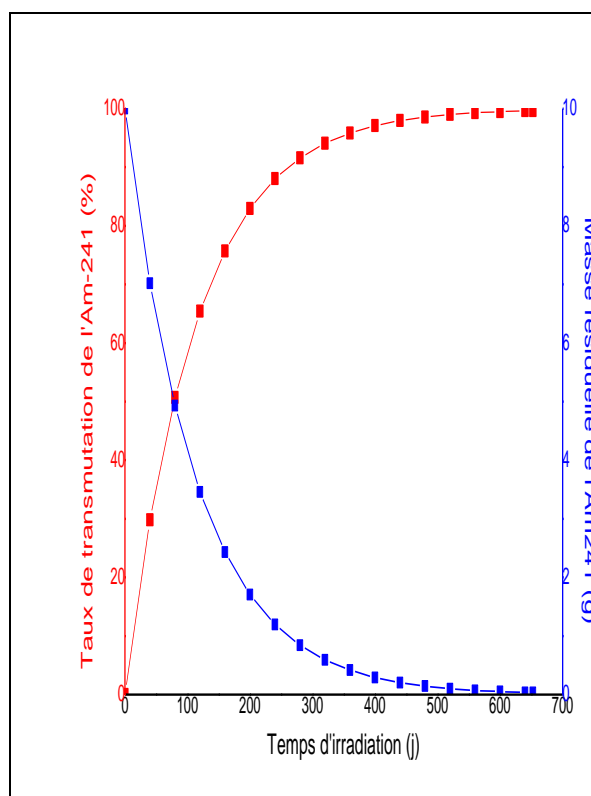
**Fig.4.9.** Changement du contenu de la cible après l'exposition neutronique, simulation T4.

**La simulation T4bis** consiste à étudier l'irradiation des échantillons, composés en totalité de l'actinide  $^{241}\text{Am}$  pure, incorporés dans le cœur du réacteur Petten HFR, mais cette fois durant une période plus longue, qui dépasse 650 jours en pleine puissance.

D'après le tableau présentatif 4.5, qui donne les pourcentages de destruction de l'Américium-241 au cours de son irradiation neutronique, on observe que l'allongement dans sa période d'exposition conduit typiquement à un accroissement dans son taux de burn-up. Ce dernier atteint 50 % durant 78 jours et 90 % durant 260 jours. La figure correspondante 4.10 montre bien que la variation du burn-up est plus rapide aux premières durées d'irradiation qu'aux dernières, car c'est une variation exponentielle. Durant 652.6 jours d'exposition neutronique en pleine puissance dans le Petten HFR, l'Américium disparaît presque totalement ( $\sim 99.68\%$ ), il ne reste que des traces ( $\sim 0.033\text{ g}$ ).

Temps (j)	Taux de transmutation (%)
0	0
40	29.802
80	50.720
120	65.402
160	75.704
200	82.943
240	88.026
280	91.592
320	94.094
360	95.851
400	97.087
440	97.953
480	98.558
520	98.985
560	99.283
600	99.493
640	99.641
652.6	99.674

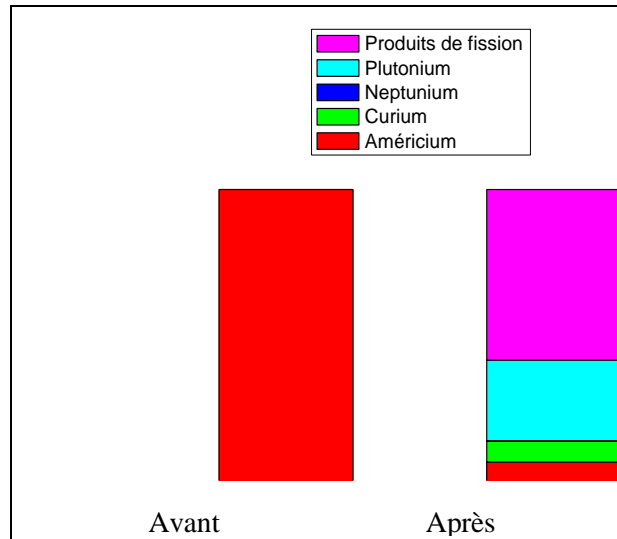
**Tab.4.5.** Taux de destruction l'Am lors de l'irradiation, simulation T4bis



**Fig.4.10.** Evolution du taux de burn-up de l'Am, simulation T4bis.

Le changement du contenu de ces échantillons sous l'effet des flux neutroniques incidents, est indiqué par la figure 4.11. On constate une accumulation considérable du Plutonium avec une quantité estimée à 2.772 g. Viennent ensuite le Curium et l'Américium avec des quantités de 0.729 g et de 0.631 g, respectivement. Le Neptunium ne pose aucun

risque lors du processus de transmutation de l'Américium, car il se produit avec des très faibles proportions, 0.003 g au maximum. La partie restante représente l'ensemble des produits de fission. A la fin de l'irradiation, l'Am se transmute de 41 % en actinides et de 59 % en produits de fission.



**Fig.4.11.** Contenu final de l'échantillon irradié durant 652.6 jours, simulation T4bis.

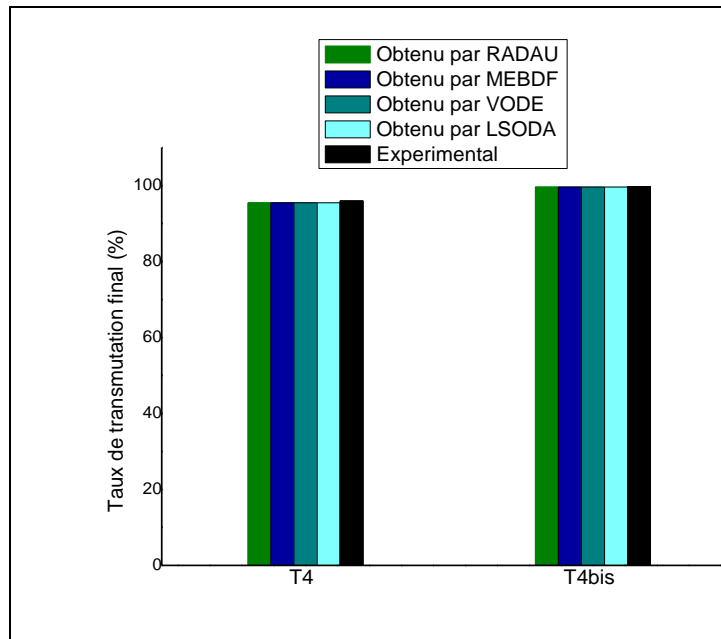
### 4.3. Comparaison avec les résultats expérimentaux

On termine cette partie de notre travail, consacrée à l'étude de la technique de transmutation nucléaire de l'actinide mineur,  $^{241}\text{Am}$ , irradié au sein du cœur du réacteur nucléaire de recherche à haut flux de Petten durant deux différentes périodes, par une comparaison entre les taux de burn-up estimés à partir des résultats de calcul obtenus par le code ChainSolver 2.34 et ceux mesurés expérimentalement par les tests d'irradiation dirigés dans le cadre de la collaboration EFTTRA : T4 et T4bis. Le tableau comparatif 4.6 montre qu'il y a un accord remarquable entre eux.

		T4	T4bis
Taux de burn-up (%)	Calculé	95.511	99.674
	Mesuré [72, 74]	96	99.8

**Tab.4.6.** Comparaison entre les taux de burn-up calculés et mesurés.

Notant que, ces calculs faits par le solutionneur VODE du code. Même ses trois autres solutionneurs (LSODA, RADAU et MEBDF) aboutissent à des résultats extrêmement proches de ceux déjà présentés, voir la figure 4.12.



**Fig.4.12.** Présentation des résultats des taux de transmutation obtenus par les quatre solveurs du code ChainSolver et ceux mesurés.

Par conséquent, le code ChainSolver a prouvé l'efficacité et la précision de ses solveurs disponibles dans les calculs de l'évolution de la population des nucléides présents lors d'une irradiation aux flux neutroniques, en résolvant *les équations de Bateman*. C'est un outil fiable pour simuler le processus de transmutation nucléaire d'un tel radio-isotope dans un tel réacteur nucléaire, connaissant les caractéristiques des échantillons à irradier et les conditions d'irradiation.



## Chapitre V

### Transmutation de l'<sup>241</sup>Am dans le réacteur SM3 HFR

#### 1. Concept d'un réacteur destructeur des déchets nucléaires

La transmutation est considérée comme l'objectif ultime pour la gestion des déchets nucléaires, mais qui sera difficile à atteindre. Les réacteurs adaptés pour la transmutation n'existent pas encore. Les flux de neutrons à haute intensité sont actuellement d'un grand intérêt dans les études de la transmutation des actinides mineurs ainsi que certains produits de fission. Les nouvelles générations des réacteurs nucléaires, en mode critique ou sous-critique, avec des flux neutroniques intenses présentent un intérêt particulier dans l'objectif de réduire la radiotoxicité potentielle et de diminuer le risque de prolifération lié aux déchets nucléaires.

Dans cette partie de notre travail, on propose un nouveau réacteur nucléaire destiné à la destruction des radionucléides de haute activité et à vie longue qui contribuent à la radiotoxicité du combustible usé, et plus particulièrement à la transmutation de l'actinide mineur, Américium-241.

#### 1.1. Les réacteurs à haut flux

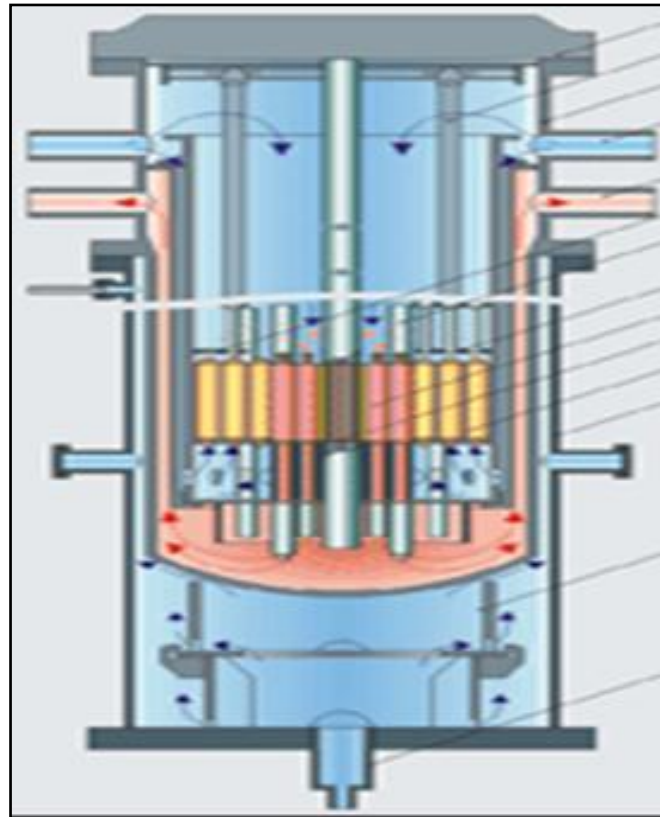
En ce qui concerne l'actinide mineur, <sup>241</sup>Am, sa transmutation par flux neutronique se fait soit par réaction de fission, soit par réaction de capture. La première permet de le scinder en fragments de fission, souvent à vie courte ou carrément stables, mais elle est faiblement probable même aux spectres rapides. De plus, la deuxième est caractérisée par des sections efficaces importantes aux spectres neutroniques thermiques et épi-thermiques, malheureusement elle conduit à la création d'un autre actinide à vie longue, en premier lieu. Mais si on suit la succession des captures neutroniques et des désintégrations naturelles accompagnées, on aboutit à la formation d'un ensemble des actinides comprenant des isotopes fertiles et autres fissiles. Ces derniers peuvent disparaître par fission. Les réactions de capture suivies de fission sont privilégiées pour la destruction de l'<sup>241</sup>Am.

Pour ces raisons, plus le flux thermique (et/ou épi-thermique) est intense plus le taux de transmutation de l'Américium est important, et donc sa destruction est plus rapide. Son

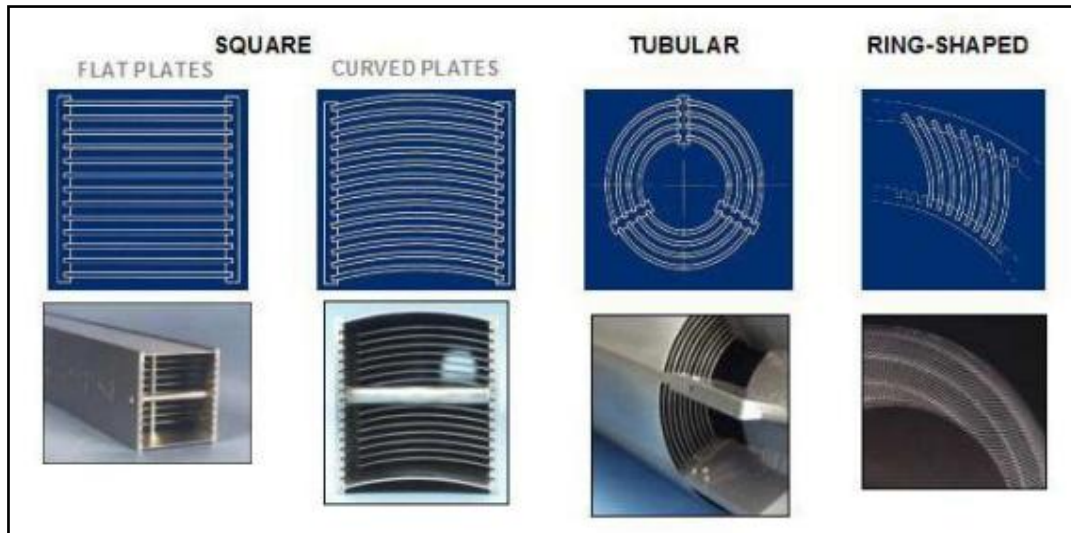
recyclage dans les réacteurs à haut flux de neutrons (à savoir qui ont des flux thermiques supérieurs à  $10^{15}$  neutrons/cm<sup>2</sup>s<sup>1</sup>) apparaît comme une stratégie parfaite, qui satisfait aux critères recherchés dans ce cadre.

## 1.2. Le réacteur SM3 HFR

C'est un réacteur de type piscine à caisson (contrairement à un réacteur piscine à ciel ouvert) de puissance thermique nominale 100 MW [75], voir la figure 5.1. Le caisson constitue son circuit primaire, qui fonctionne en boucle fermée sous pression. Pour permettre l'extraction de flux calorifiques importants, ce réacteur utilise des éléments combustibles feuilletés, constitués de plaques fines (épaisseur de 1.3 à 1.5 mm) serties parallèlement dans des boîtiers en Aluminium pour constituer les canaux de refroidissement, chaque plaque étant constituée d'un sandwich de matériau fissile (composé d'Aluminium et d'oxyde d'Uranium enrichi 90 % en  $^{235}\text{U}$  [75, 76]) gainé d'Aluminium, voir la figure 5.2. Ce réacteur modéré et refroidi à l'eau légère, est très bien adapté aux essais de combustibles et de matériaux pour les différentes filières de réacteurs de puissance [76].

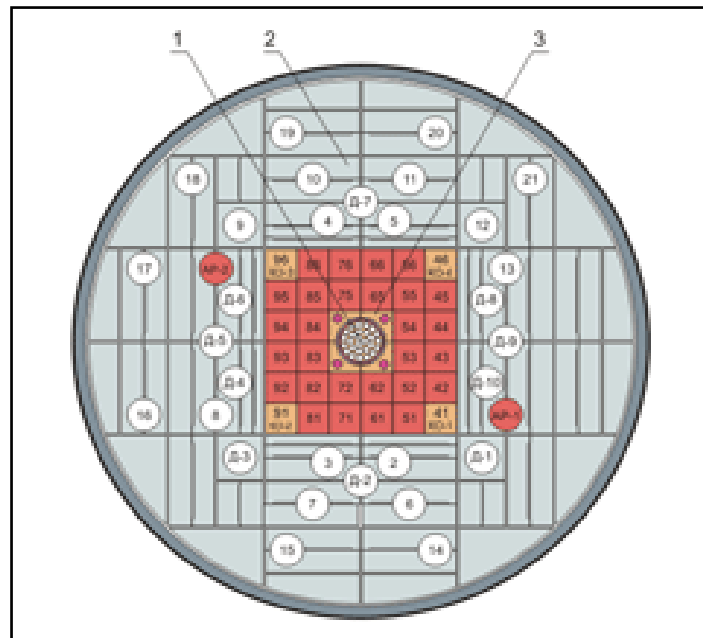


**Fig.5.1.** Présentation Structurale du réacteur SM3 HFR [75].



**Fig.5.2.** Eléments combustibles à plaques [76].

La densité de flux de neutrons thermiques dans les canaux expérimentaux verticaux varie entre  $(7.1 \cdot 10^{13} - 5.0 \cdot 10^{15}) \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  à une puissance de 100 MW. Il se trouve au cœur 30 canaux, 68 mm de diamètre, dans le réflecteur de Béryllium, et 27 canaux, 12 mm de diamètre, dans le bloc central et 24 canaux, 12 mm de diamètre, dans l'assemblage de combustible [75], voir la figure 5.3. Le réacteur a été mis en service en 1961 [75, 77].



**Fig.5.3.** Arrangement du cœur du réacteur SM3 [75].

1) le bloc central CBTT ; 2) la tige centrale de calage ; 3) les blocs réflecteurs en Béryllium.

## 2. la transmutation de $^{241}\text{Am}$ dans le réacteur à haut flux SM3

On cherchera dans cette étude d'améliorer beaucoup plus les performances de la transmutation de  $^{241}\text{Am}$  que celles déjà obtenues dans les tests d'irradiation EFTTRA effectués au sein du cœur du réacteur Petten HFR, où une disparation approximativement totale (99.8 %) de cet actinide a été obtenue, durant une période d'exposition très longue (environ 22 mois en pleine puissance). De ce fait, on propose de simuler l'irradiation des échantillons de l'Américium chargés en mode hétérogène dans le réacteur SM3 HFR par le code ChainSolver, afin d'obtenir de haut niveau de combustion de  $^{241}\text{Am}$  durant une période d'exposition neutronique plus courte, que possible. Notant que, ces échantillons sont placés dans deux différents canaux d'irradiation du réacteur, le premier est le canal du bloc central pour les cibles à transmuter CBTT (the Central Block of Transmutation Targets), et le deuxième est le canal du réflecteur. Leurs caractéristiques neutroniques, publiées en références [78, 79], sont présentées dans le tableau 5.1 suivant :

		Canal du réflecteur	Canal CBTT
Flux neutronique ( $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ )	Thermique	$8.8 \cdot 10^{14}$	$1.3 \cdot 10^{15}$
	Rapide	$5.4 \cdot 10^{14}$	$1.4 \cdot 10^{15}$

**Tab.5.1.** Caractéristiques neutroniques des canaux d'irradiation du réacteur SM3.

### 2.1. Evolution des cibles de $^{241}\text{Am}$ sous irradiation

Sous l'effet des hauts flux des neutrons incidents, en particulier les neutrons thermiques, les cibles, formées de 100 % en  $^{241}\text{Am}$ , subissent des changements dans leur contenu résultants par la formation des nouveaux nucléides lourds ou légers par une série des réactions de capture, de fission et de désintégration naturelle. Ces changements varient selon les valeurs des flux neutroniques et la durée d'irradiation.

Après plusieurs modifications dans les conditions et les périodes d'irradiation, on a aboutit à un bon résultat, qui satisfait mieux les objectifs voulus. Il nécessite uniquement une durée de 90 jours en pleine puissance sous irradiation au cœur du réacteur pour atteindre un haut taux de burn-up (plus que 99 %). Les résultats de calculs obtenus par le code employé pour les deux opérations d'irradiation, décrites plus haut, sont présentés dans les deux tableaux 5.2 et 5.3.

Temps (j)	Masse (g)								
	Am-241	Am-242	Am-242m	Am-243	Am-244	Cm-242	Cm-243	Cm-244	Cm-245
0	10	0	0	0	0	0	0	0	0
5	7.1722	0.2359	0.0455	0.7799	0.00013	1.0365	0.0039	0.0006	1.0151 10 <sup>-6</sup>
10	5.1440	0.1694	0.0330	1.3933	0.00025	1.8489	0.0136	0.0027	8.5315 10 <sup>-6</sup>
15	3.6897	0.1215	0.0236	1.8039	0.00033	2.3943	0.0249	0.0064	2.5373 10 <sup>-5</sup>
20	2.6465	0.0871	0.0170	2.0702	0.00038	2.7496	0.0355	0.0114	5.1298 10 <sup>-5</sup>
25	1.8986	0.0625	0.0122	2.2339	0.00040	2.9697	0.0446	0.0174	8.4867 10 <sup>-5</sup>
30	1.3618	0.0448	0.0087	2.3253	0.00043	3.0942	0.0519	0.0241	1.2440 10 <sup>-4</sup>
35	0.9766	0.0322	0.0063	2.3656	0.00043	3.1512	0.0573	0.0313	1.6824 10 <sup>-4</sup>
40	0.7004	0.0231	0.0045	2.3703	0.00044	3.1607	0.0611	0.0388	2.1495 10 <sup>-4</sup>
45	0.5024	0.0165	0.0032	2.3503	0.00043	3.1373	0.0635	0.0465	2.6334 10 <sup>-4</sup>
50	0.3603	0.0119	0.0023	2.3134	0.00043	3.0912	0.0649	0.0541	3.1244 10 <sup>-4</sup>
55	0.2584	0.0085	0.0017	2.2653	0.00042	3.0299	0.0654	0.0616	3.6153 10 <sup>-4</sup>
60	0.1854	0.0061	0.0012	2.2099	0.00041	2.9587	0.0652	0.0690	4.1003 10 <sup>-4</sup>
65	0.1331	0.0044	0.0009	2.1501	0.00039	2.8811	0.0646	0.0762	4.5753 10 <sup>-4</sup>
70	0.0955	0.0031	0.0006	2.0879	0.00039	2.8001	0.0636	0.0832	5.0375 10 <sup>-4</sup>
75	0.0685	0.0023	0.00044	2.0247	0.00037	2.7173	0.0623	0.0899	5.4846 10 <sup>-4</sup>
80	0.0492	0.0016	0.0003	1.9614	0.00036	2.6341	0.0608	0.0964	5.9154 10 <sup>-4</sup>
85	0.0353	0.0012	0.0002	1.8988	0.00035	2.5514	0.0592	0.1026	6.3290 10 <sup>-4</sup>
90	0.0246	0.0008	0.0002	1.8373	0.00034	2.4699	0.0576	0.1086	6.7250 10 <sup>-4</sup>

Temps (j)	Masse (g)								
	Cm-246	Np-237	Np-238	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu-243
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
5	4.4499 10 <sup>-8</sup>	0.00017	4.0219 10 <sup>-6</sup>	0.0095	0.0008	3.1615 10 <sup>-5</sup>	9.2701 10 <sup>-7</sup>	0.2192	0.00013
10	8.3174 10 <sup>-7</sup>	0.00028	8.0258 10 <sup>-6</sup>	0.0340	0.0052	0.0005	2.5039 10 <sup>-5</sup>	0.3961	0.00024
15	3.9768 10 <sup>-6</sup>	0.00035	1.0488 10 <sup>-5</sup>	0.0641	0.0135	0.0019	1.4386 10 <sup>-4</sup>	0.5202	0.00032
20	1.1293 10 <sup>-5</sup>	0.00038	1.1811 10 <sup>-5</sup>	0.0944	0.0243	0.0046	4.4600 10 <sup>-4</sup>	0.6067	0.00037
25	2.4413 10 <sup>-5</sup>	0.00039	1.2360 10 <sup>-5</sup>	0.1218	0.0361	0.0087	9.9576 10 <sup>-4</sup>	0.6662	0.00041
30	4.4660 10 <sup>-5</sup>	0.00039	1.2389 10 <sup>-5</sup>	0.1452	0.0477	0.0141	1.8142 10 <sup>-3</sup>	0.7064	0.00044
35	7.3018 10 <sup>-5</sup>	0.00037	1.2080 10 <sup>-5</sup>	0.1640	0.0581	0.0205	2.8802 10 <sup>-3</sup>	0.7330	0.00046
40	1.1017 10 <sup>-4</sup>	0.00036	1.1559 10 <sup>-5</sup>	0.1785	0.0670	0.0274	4.1438 10 <sup>-3</sup>	0.7498	0.00047
45	1.5653 10 <sup>-4</sup>	0.00033	1.0913 10 <sup>-5</sup>	0.1891	0.0743	0.0345	5.5413 10 <sup>-3</sup>	0.7599	0.00047
50	2.1233 10 <sup>-4</sup>	0.00031	1.0205 10 <sup>-5</sup>	0.1962	0.0799	0.0416	7.0061 10 <sup>-3</sup>	0.7652	0.00048
55	2.7761 10 <sup>-4</sup>	0.00029	9.4733 10 <sup>-6</sup>	0.2006	0.0840	0.0483	8.4762 10 <sup>-3</sup>	0.7671	0.00048
60	3.5229 10 <sup>-4</sup>	0.00027	8.7466 10 <sup>-6</sup>	0.2026	0.0868	0.0545	9.8996 10 <sup>-3</sup>	0.7668	0.00048
65	4.3621 10 <sup>-4</sup>	0.00025	8.0422 10 <sup>-6</sup>	0.2027	0.0884	0.0602	0.0112	0.7650	0.00048
70	5.2912 10 <sup>-4</sup>	0.00022	7.3713 10 <sup>-6</sup>	0.2013	0.0891	0.0651	0.0125	0.7621	0.00047
75	6.3075 10 <sup>-4</sup>	0.00020	6.7399 10 <sup>-6</sup>	0.1988	0.0891	0.0694	0.0135	0.7585	0.00047
80	7.4076 10 <sup>-4</sup>	0.00019	6.1509 10 <sup>-6</sup>	0.1955	0.0884	0.0729	0.0145	0.7545	0.00047
85	8.5882 10 <sup>-4</sup>	0.00017	5.6049 10 <sup>-6</sup>	0.1915	0.0872	0.0757	0.0153	0.7503	0.00047
90	9.8458 10 <sup>-4</sup>	0.00015	5.1014 10 <sup>-6</sup>	0.1871	0.0857	0.0779	0.0160	0.7459	0.00046

**Tab.5.2.** Variation des masses des actinides lors de l'irradiation au niveau du canal CBTT.

Temps (j)	Masse (g)								
	Am-241	Am-242	Am-242m	Am-243	Am-244	Cm-242	Cm-243	Cm-244	Cm-245
0	10	0	0	0	0	0	0	0	0
5	7.9874	0.2067	0.0491	0.4356	5.1998 10 <sup>-5</sup>	0.8467	0.0022	0.0002	2.7883 10 <sup>-7</sup>
10	6.3799	0.1652	0.0408	0.8332	0.00010	1.6051	0.0083	0.0011	2.6631 10 <sup>-6</sup>
15	5.0960	0.1320	0.0327	1.1400	0.00015	2.1837	0.0165	0.0028	8.7165 10 <sup>-6</sup>
20	4.0706	0.1054	0.0261	1.3742	0.00018	2.6195	0.0253	0.0051	1.9056 10 <sup>-5</sup>
25	3.2515	0.0842	0.0209	1.5507	0.00021	2.9420	0.0339	0.0081	3.3715 10 <sup>-5</sup>
30	2.5969	0.0672	0.0166	1.6815	0.00022	3.1749	0.0419	0.0117	5.2413 10 <sup>-5</sup>
35	2.0742	0.0537	0.0133	1.7759	0.00024	3.3368	0.0490	0.0157	7.4688 10 <sup>-5</sup>
40	1.6568	0.0429	0.0106	1.8415	0.00025	3.4426	0.0550	0.0201	1.0002 10 <sup>-4</sup>
45	1.3233	0.0343	0.0085	1.8844	0.00025	3.5045	0.0600	0.0248	1.2788 10 <sup>-4</sup>
50	1.0570	0.0274	0.0068	1.9093	0.00026	3.5318	0.0640	0.0297	1.5774 10 <sup>-4</sup>
55	0.8443	0.0218	0.0054	1.9201	0.00026	3.5322	0.0671	0.0348	1.8913 10 <sup>-4</sup>
60	0.6743	0.0174	0.0043	1.9199	0.00026	3.5117	0.0694	0.0340	2.2163 10 <sup>-4</sup>
65	0.5386	0.0139	0.0034	1.9111	0.00026	3.4752	0.0710	0.0452	2.5485 10 <sup>-4</sup>
70	0.4303	0.0111	0.0028	1.8957	0.00025	3.4264	0.0719	0.0504	2.8848 10 <sup>-4</sup>
75	0.3437	0.0089	0.0022	1.8752	0.00025	3.3684	0.0724	0.0557	3.2224 10 <sup>-4</sup>
80	0.2746	0.0071	0.0018	1.8508	0.00025	3.3036	0.0724	0.0608	3.5591 10 <sup>-4</sup>
85	0.2194	0.0057	0.0014	1.8235	0.00024	3.2340	0.0720	0.0659	3.8929 10 <sup>-4</sup>
90	0.1751	0.0045	0.0011	1.7941	0.00024	3.1609	0.0714	0.0709	4.2223 10 <sup>-4</sup>

Temps (j)	Masse (g)								
	Cm-246	Np-237	Np-238	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu-243
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
5	8.0277 10 <sup>-9</sup>	0.00019	3.1717 10 <sup>-6</sup>	0.0077	0.0004	1.1917 10 <sup>-5</sup>	2.4068 10 <sup>-7</sup>	0.1789	7.0888 10 <sup>-5</sup>
10	1.6840 10 <sup>-7</sup>	0.00032	6.9840 10 <sup>-6</sup>	0.0301	0.0033	0.0002	7.4924 10 <sup>-6</sup>	0.3433	1.4128 10 <sup>-4</sup>
15	8.7451 10 <sup>-7</sup>	0.00042	9.8451 10 <sup>-6</sup>	0.0609	0.0094	0.0009	4.8319 10 <sup>-5</sup>	0.4731	1.9688 10 <sup>-4</sup>
20	2.6565 10 <sup>-6</sup>	0.00049	1.1869 10 <sup>-5</sup>	0.0956	0.0187	0.0023	1.6668 10 <sup>-4</sup>	0.5754	2.4067 10 <sup>-4</sup>
25	8.7451 10 <sup>-7</sup>	0.00042	9.8451 10 <sup>-6</sup>	0.0609	0.0094	0.0009	4.8319 10 <sup>-5</sup>	0.4731	1.9688 10 <sup>-4</sup>
30	1.1716 10 <sup>-5</sup>	0.00056	1.4074 10 <sup>-5</sup>	0.1650	0.0432	0.0084	8.2786 10 <sup>-4</sup>	0.7183	3.0191 10 <sup>-4</sup>
35	2.0048 10 <sup>-5</sup>	0.00057	1.4523 10 <sup>-5</sup>	0.1965	0.0568	0.0131	1.4415 10 <sup>-3</sup>	0.7670	3.2280 10 <sup>-4</sup>
40	3.1516 10 <sup>-5</sup>	0.00057	1.4672 10 <sup>-5</sup>	0.2247	0.0702	0.0187	2.2641 10 <sup>-3</sup>	0.8046	3.3892 10 <sup>-4</sup>
45	4.6487 10 <sup>-5</sup>	0.00057	1.4592 10 <sup>-5</sup>	0.2492	0.0830	0.0253	3.2918 10 <sup>-3</sup>	0.8334	3.5127 10 <sup>-4</sup>
50	6.5256 10 <sup>-5</sup>	0.00056	1.4345 10 <sup>-5</sup>	0.2700	0.0949	0.0325	4.5064 10 <sup>-3</sup>	0.8552	3.6063 10 <sup>-4</sup>
55	8.8051 10 <sup>-5</sup>	0.00054	1.3975 10 <sup>-5</sup>	0.2873	0.1055	0.0402	5.8809 10 <sup>-3</sup>	0.8714	3.6764 10 <sup>-4</sup>
60	1.1504 10 <sup>-4</sup>	0.00052	1.3518 10 <sup>-5</sup>	0.3012	0.1147	0.0482	7.3820 10 <sup>-3</sup>	0.8834	3.7278 10 <sup>-4</sup>
65	1.4635 10 <sup>-4</sup>	0.00050	1.3001 10 <sup>-5</sup>	0.3119	0.1226	0.0562	8.9734 10 <sup>-3</sup>	0.8920	3.7647 10 <sup>-4</sup>
70	1.8204 10 <sup>-4</sup>	0.00048	1.2446 10 <sup>-5</sup>	0.3199	0.1291	0.0643	0.0106	0.8979	3.7902 10 <sup>-4</sup>
75	2.2214 10 <sup>-4</sup>	0.00046	1.1871 10 <sup>-5</sup>	0.3254	0.1344	0.0721	0.0123	0.9017	3.8069 10 <sup>-4</sup>
80	2.6666 10 <sup>-4</sup>	0.00043	1.1288 10 <sup>-5</sup>	0.3287	0.1384	0.0796	0.0139	0.9039	3.8167 10 <sup>-4</sup>
85	3.1556 10 <sup>-4</sup>	0.00041	1.0706 10 <sup>-5</sup>	0.3301	0.1414	0.0866	0.0156	0.9049	3.8213 10 <sup>-4</sup>
90	3.6879 10 <sup>-4</sup>	0.00039	1.0133 10 <sup>-5</sup>	0.3299	0.1434	0.0932	0.0171	0.9050	3.8218 10 <sup>-4</sup>

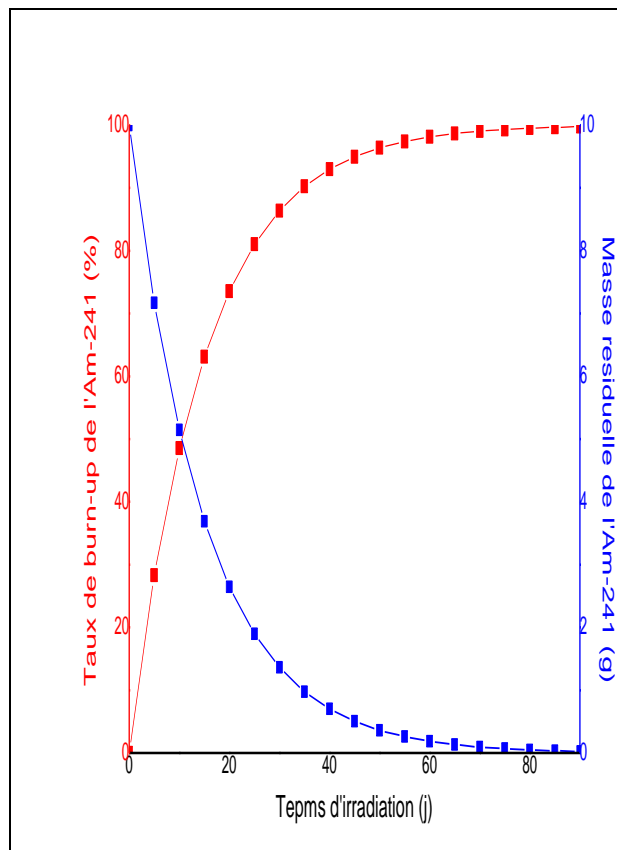
**Tab.5.3.** Variation des masses des actinides lors de l'irradiation au niveau du canal réflecteur.

## 2.2. Taux de transmutation de $^{241}\text{Am}$

*Au niveau du canal CBTT :* Le tableau 5.4 illustre les valeurs des taux de transmutation estimées tous les 5 jours durant la période d'irradiation. Comme il est montré, des niveaux de burn-up très élevés sont obtenus, dépassent 90 % au bout des premiers 35 jours. La figure 5.4 indique parallèlement l'évolution de la masse de l'actinide,  $^{241}\text{Am}$ , et celle de son taux de destruction en fonction du temps d'irradiation, qui sont logiquement inversement proportionnelles. Après environ 3 mois d'exposition neutronique au centre du cœur du réacteur SM3, l'Américium se transforme presque totalement avec un pourcentage de 99.75 %, en d'autres actinides et produits de fission. Il ne reste que des traces (0.0246 g).

Temps d'irradiation (JPP)	Taux de burn-up de $^{241}\text{Am}$ (%)
0	0
5	28.278
10	48.560
15	63.103
20	73.535
25	81.014
30	86.382
35	90.234
40	92.996
45	94.976
50	96.397
55	97.416
60	98.146
65	98.669
70	99.045
75	99.315
80	99.508
85	99.647
90	99.754

**Tab.5.4.** Taux de Burn-up de  $^{241}\text{Am}$  au canal CBTT.

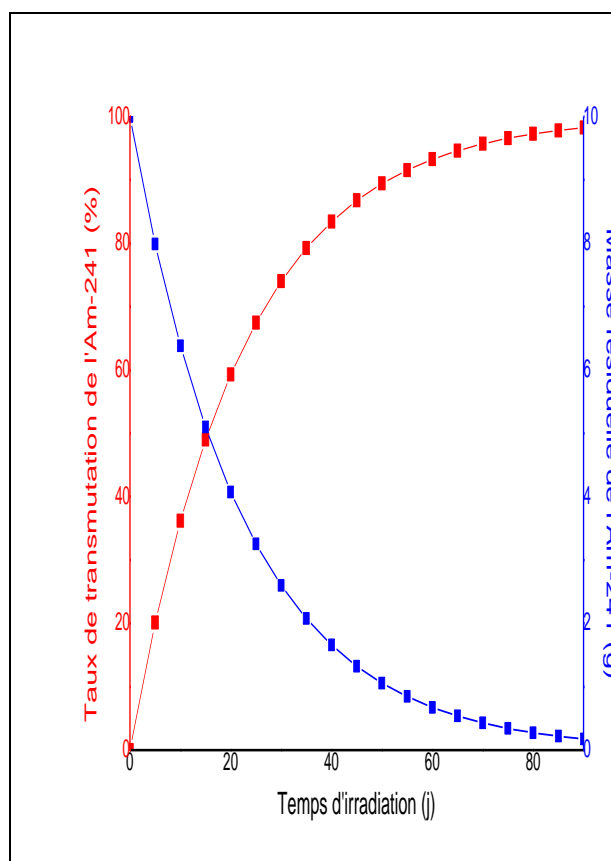


**Fig.5.4.** Evolution du taux et de masse de l'Am durant l'irradiation (CBTT).

En ce qui concerne les échantillons irradiés *au niveau du réflecteur*, les taux de transmutation de l'Américium, sont illustrés au tableau 5.5. Les valeurs obtenues sont un peu plus faibles que celles estimées au centre, en raison de la différence des flux neutroniques entre ces deux emplacements du réacteur. D'où, les variations de sa masse ainsi que son taux de burn-up soient sensiblement moins rapides, voir la figure 5.5. Ce résultat reste intéressant et satisfaisant. Il conduit à une disparition de 98.25 % de l'Américium après 90 jours sous l'irradiation aux neutrons.

Temps d'exposition (JPP)	Taux de destruction (%)
0	0
5	20.126
10	36.201
15	49.040
20	59.294
25	67.485
30	74.031
35	79.258
40	83.432
45	86.767
50	89.430
55	91.558
60	93.257
65	94.614
70	95.697
75	96.563
80	97.254
85	97.807
90	98.249

**Tab.5.5.** Taux de destruction de l'Am (réflecteur).



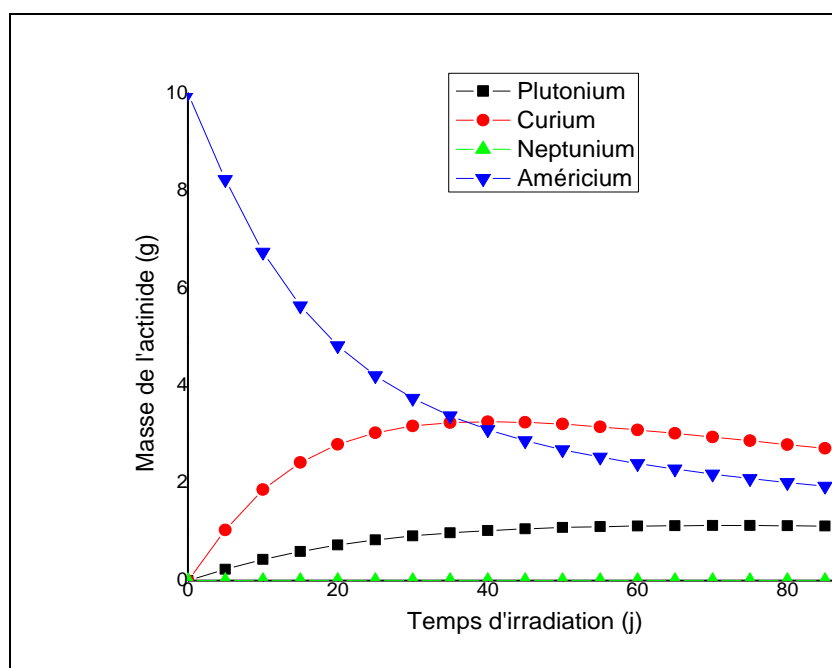
**Fig.5.5.** Variation du taux et de masse de l'Am en fonction du temps d'irradiation (réflecteur).

### 2.3. Evolution des actinides lors de l'irradiation

**Au niveau du canal CBTT** et d'après la figure 5.6 ci-après, indiquant la variation des masses des actinides présents dans l'échantillon de l'Américium irradié, on remarque qu'il y a une accumulation importante de l'élément du Curium dans l'échantillon durant surtout les premiers 60 jours d'irradiation, qui arrive à une valeur maximale de 3.261 g après 40 jours d'exposition. Ce ci est dû principalement à son radio-isotope  $^{242}\text{Cm}$ , qui est produit

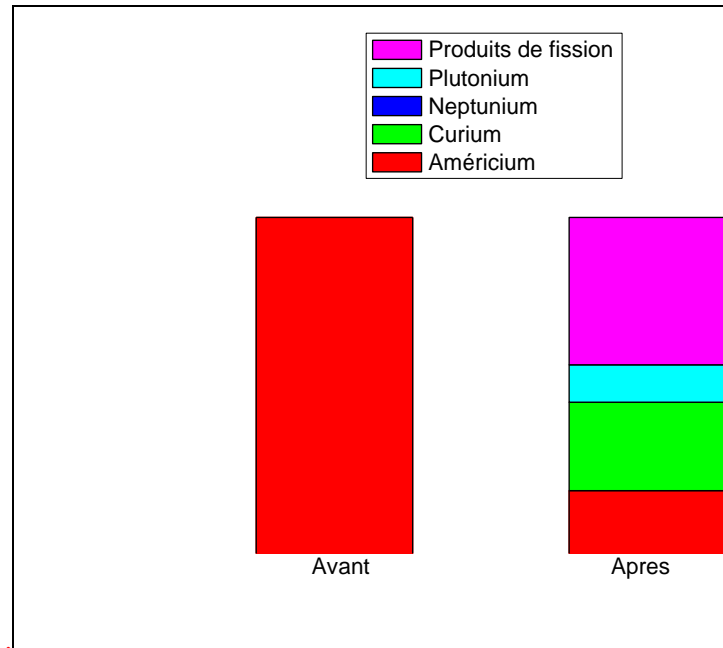


rapidement par la désintégration de  $^{242}\text{Am}$  avec une demi-vie de 16 heures et se désintègre lentement en  $^{238}\text{Pu}$  avec une demi-vie de 163 jours. Avec le temps, cette accumulation décroît légèrement à cause de la diminution de la quantité de  $^{241}\text{Am}$ , la source de  $^{242}\text{Am}$ . Par contre, la quantité du Plutonium, en particulier ses deux isotopes  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{242}\text{Pu}$ , croît lentement d'une manière proportionnelle avec le temps d'irradiation et atteint une valeur maximale de 1.131 g après 70 jours, puis cette valeur décroît sensiblement au bout des 20 derniers jours d'irradiation. Tandis que, le Neptunium est produit sous forme des traces. Sa quantité créée ne dépasse pas 0.0004 g le long de l'irradiation.



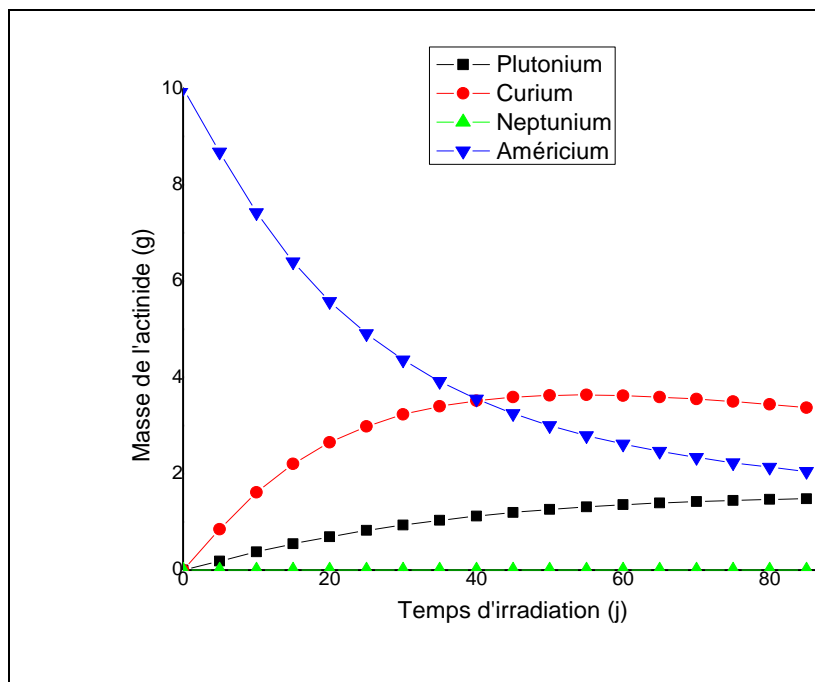
**Fig.5.6.** Evolution de la population des actinides présents (CBTT).

A la fin de l'irradiation, l'échantillon récupéré se compose de 5.615 g d'actinides (0.0246 g de  $^{241}\text{Am}$  initial, qui n'a pas encore interagi ; 1.840 g d'Américium formé ; 2.638 g du Curium ; 0.00016 g du Neptunium ; et 1.113 g du Plutonium) et d'une quantité de produits de fission estimée à 4.385 g, voir la figure 5.7. De façon générale, L'Américium est transmuté avec un taux de 99.75 %, avec une fraction de 56 % en actinides et 44 % en produits de fission.



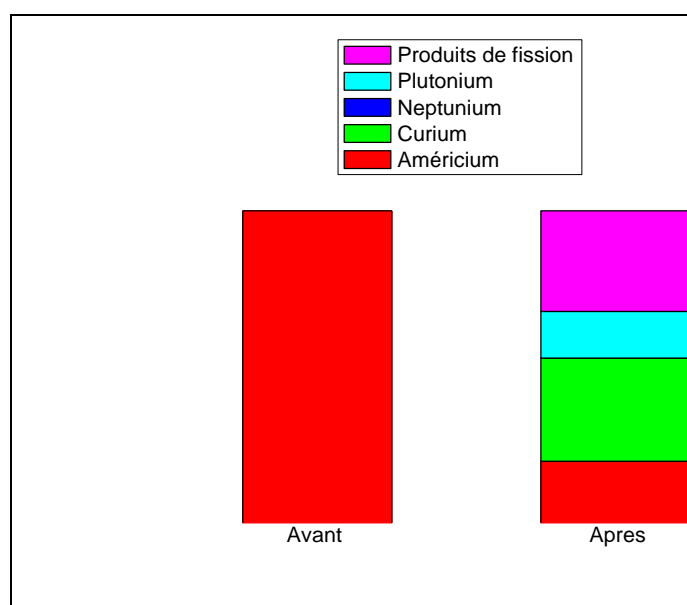
**Fig.5.7.** Contenu de l'échantillon avant et après l'irradiation (CBTT).

De la même manière précédente, on interprète les résultats de calculs obtenus par la simulation de l'irradiation *au niveau du canal du réflecteur*. L'évolution du contenu de ces échantillons en actinides présents (Américium, Curium, Neptunium et Plutonium), sous l'effet des flux neutroniques incidents, est indiquée dans la figure 5.8. On distingue une accumulation plus importante du Curium durant toute la période d'irradiation, atteignant un maximum de 3.635 g après 55 jours d'irradiation, ensuite elle diminue sensiblement avec la destruction de l'Américium. Le Curium représente l'actinide dominant à la fin de l'irradiation avec une quantité estimée à 3.304 g. Le Plutonium se crée lentement par rapport au Curium. Sa quantité croît proportionnellement avec l'allongement de la période d'irradiation jusqu'au maximum de 1.489 g durant 90 jours. Finalement, le Neptunium ne pose aucun risque lors du processus de transmutation de l'Américium, car il se produit avec de très faibles proportions, de 0.0006 g au maximum.



**Fig.5.8.** Population des actinides lors de l'irradiation (réflecteur).

La figure 5.9 indique le contenu initial et final de la cible de l'Américium durant une période d'irradiation neutronique de 90 jours au niveau du réflecteur. L'élément accumulé en grande quantité est le Curium de 3.304 g, suivi par les produits de fission de 3.231 g, ensuite l'Américium de 1.975 g et le Plutonium de 1.489 g. La quantité du Neptunium formée est négligeable de 0.0004 g. En général, la partie détruite de  $^{241}\text{Am}$  se transforme en 67 % d'actinides et 33 % de produits de fission.



**Fig.5.9.** Contenu de l'échantillon au début et à la fin de l'irradiation (réflecteur).

### 3. Efficacité de la transmutation de l'<sup>241</sup>Am

Afin d'évaluer les efficacités et les performances de transmutation des actinides mineurs, en particulier l'Américium-241, dans les réacteurs de flux thermique intense, on utilise deux paramètres. Le premier est *le taux de transmutation*, qui représente la fraction de la masse transmutée de l'isotope concerné par rapport à sa masse initiale. Le deuxième est l'accélération moyenne de transmutation, qui détermine le nombre d'atomes transmutés par unité de temps. Ce dernier est établi comme suit :

Pour une substance irradiée, la variation du nombre d'atomes transmutés de l'isotope *i* à l'instant *t* lors de l'exposition est :

$$A_i(t) = - \frac{dN_i}{dt} = - \frac{N_{Av}}{M_i} \left( \frac{dm_i}{dt} \right)$$

Avec :  $N_i$  et  $m_i$  sont le nombre d'atomes et la masse de l'isotope *i* à l'instant *t*, respectivement.  $M_i$  est sa masse molaire.  $N_{Av}$  est le nombre d'Avogadro.

Pour un sous intervalle de temps d'irradiation  $\Delta t_{irr}$ , la valeur moyenne de l'accélération s'écrit :

$$A_i = \frac{N_{Av}}{M_i} \left( \frac{m_{BOI} - m_{EOI}}{\Delta t_{irr}} \right)$$

Où :  $m_{BOI}$  et  $m_{EOI}$  sont la masse initiale et finale de l'isotope *i* de l'intervalle, respectivement.

Dans le cas de l'Américium-241, elle devient :

$$A_{Am} = 2.89 \cdot 10^{16} \left( \frac{m_{BOI} - m_{EOI}}{\Delta t_{irr}} \right)$$

Où :  $A_{Am}$  s'exprime en (atome/s) ;  $\Delta t_{irr}$  en (jours) ; et les masses en (g).

Le tableau 5.6 montre les activités moyennes de transmutation de l'Am, au niveau du bloc central CBTT et du réflecteur du réacteur SM3, calculées pour chaque sous intervalle de 5 jours au début jusqu'à la fin d'irradiation neutronique.

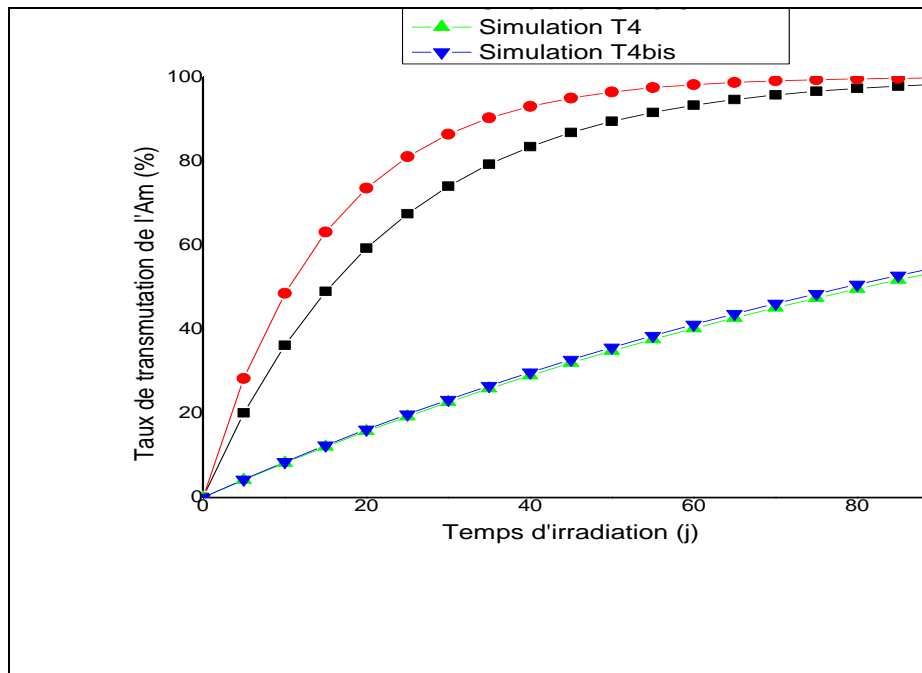
Temps d'irradiation (j)	Accélération moyenne de transmutation de $^{241}\text{Am}$ $10^{16} \times (\text{atome/s})$	
	Au niveau du CBTT	Au niveau du réflecteur
5	16.3447	11.6328
10	14.0338	10.4621
15	12.1582	9.4482
20	10.6258	8.5680
25	9.3657	7.8013
30	8.3219	7.1317
35	7.4511	6.5445
40	6.7194	6.0280
45	6.0998	5.5722
50	5.5719	5.1689
55	5.1190	4.8108
60	4.7278	4.4918
65	4.3875	4.2066
70	4.0896	3.9509
75	3.8273	3.7209
80	3.5950	3.5133
85	3.3882	3.3254
90	3.2031	3.1549

**Tab.5.6.** Variation de l'accélération moyenne de la transmutation de  $^{241}\text{Am}$  lors de l'irradiation au niveau du canal CBTT et du canal réflecteur.

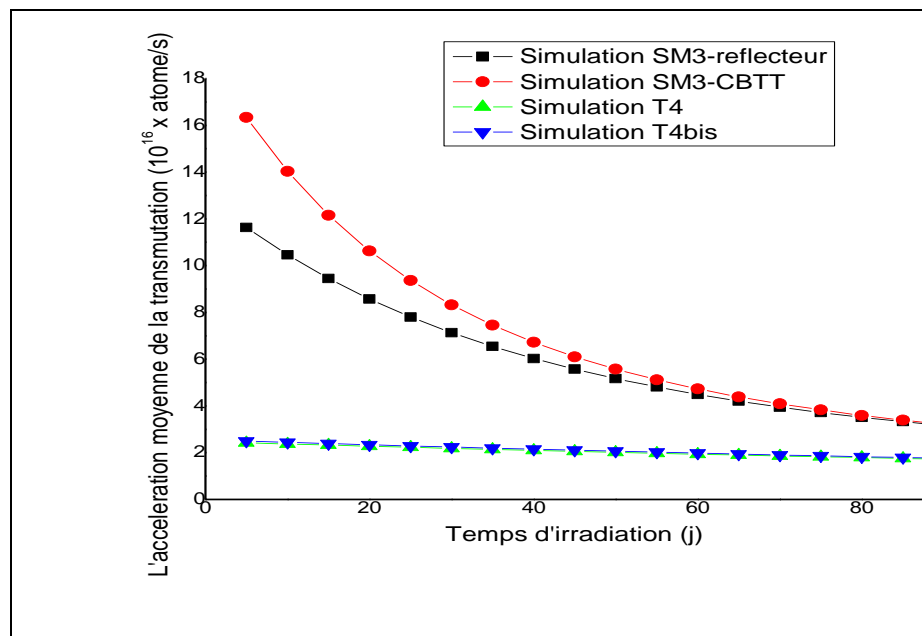
On regroupe dans cette étude évaluative les quatre simulations réalisées dans ce travail, concernant la transmutation de l'Américium dans des différentes conditions d'irradiation, selon le type du réacteur à haut flux utilisé, les positions d'irradiation choisies (caractérisées par leurs flux neutroniques disponibles) et les durées d'irradiation effectuées.

Les deux figures comparatives 5.10 et 5.11, illustrent la variation des taux de transmutation ainsi que la variation de l'accélération moyenne de la transmutation de l'Américium-241, estimées uniquement pour les premiers 90 jours d'irradiation dans les deux réacteurs de recherche, le Petten HFR et le SM3 HFR. Il est clairement apparent qu'il y a une large différence dans les taux de transmutation ainsi que les accélérations moyennes de transmutation entre ces deux réacteurs étudiés. Dans le cœur du réacteur SM3, le taux final dépasse 99.75 %. Tandis qu'il est arrivé à 54 % dans le cœur du réacteur HFR de Petten pour la même période d'irradiation. De ce fait, l'activité de la transmutation de l'Am dans le réacteur SM3 est beaucoup plus accélérée, elle varie de  $16.3 \cdot 10^{16}$  à  $3.2 \cdot 10^{16}$  atomes d' $^{241}\text{Am}$  transmutés par seconde, où elle est dans le Petten réacteur entre  $2.5 \cdot 10^{16}$  et  $1.7 \cdot 10^{16}$  atomes/s.

Par conséquent, le recyclage hétérogène de l'Américium dans le réacteur SM3 est extrêmement plus performant et efficace que dans le réacteur Petten HFR.



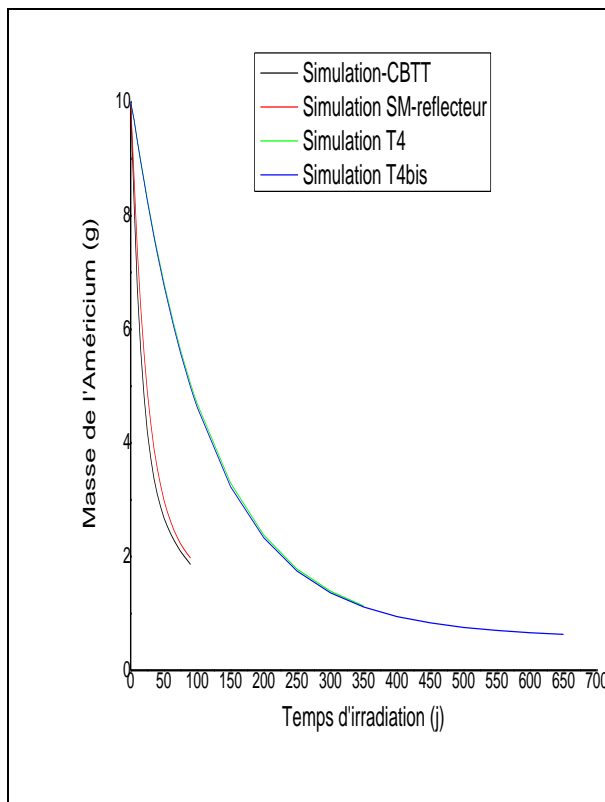
**Fig.5.10.** Evolution des taux de burn-up de l' $^{241}\text{Am}$  obtenus par les quatre simulations durant les 90 premiers jours.



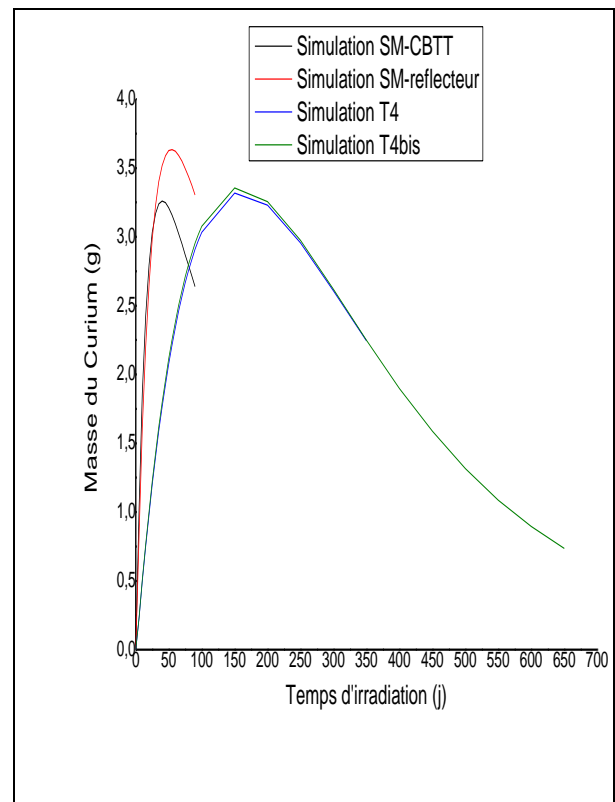
**Fig.5.11.** Evolution des accélérations de transmutation de l' $^{241}\text{Am}$  obtenues par les quatre simulations durant les 90 premiers jours.

Pour enrichir notre évaluation, on interprète les accumulations des autres actinides formés lors du procédé de l'irradiation des cibles d'Américium sous des haut flux thermiques et rapides. En tenant compte que la destruction des actinides mineurs (dans notre cas l'Américium-241) est privilégiée par des réactions de fission induite. D'où, leur transmutation (incinération) est plus efficace et plus sécurisée en termes de radiotoxicité, lorsqu'elle produit le moins possible des actinides de haute activité et à vie longue.

L'Américium, en tenant compte de ses isotopes produits, est présent dans les cibles exposées dans le bloc central du cœur du réacteur SM3 en des quantités beaucoup plus moindres, que celles accumulées dans les cibles recyclées dans le réacteur de Petten, au cours de 90 premiers jours en pleine puissance, voir la figure 5.12. Notamment, les cibles incorporées dans le bloc central du réacteur SM3 comportent un peu moins d'Américium, que celles placées au niveau de son réflecteur.



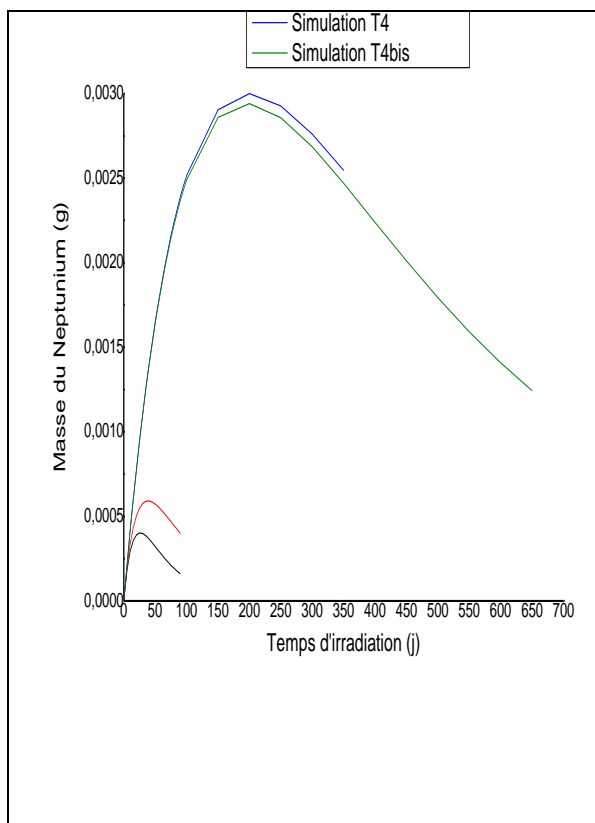
**Fig.5.12.** Accumulations de l'Am lors de l'irradiation, parallèlement dans les quatre simulations.



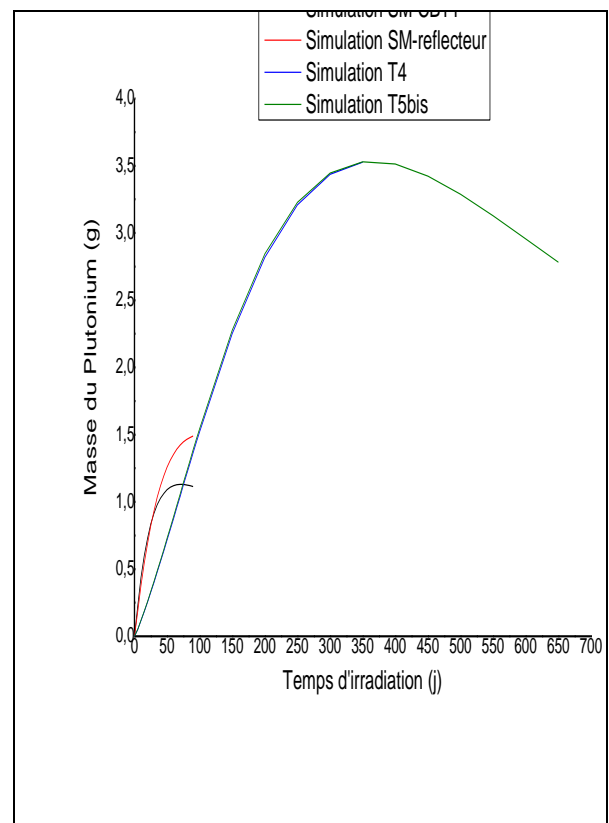
**Fig.5.13.** Accumulations du Cm durant l'irradiation, parallèlement dans les quatre simulations.

Par contre, le Curium est largement formé, en des quantités presque identiques, dans les cibles exposées à l'intérieur de deux canaux d'irradiation du réacteur SM3 au début de l'irradiation, voir la figure 5.13. Au delà des 30 jours, sa quantité débute à diminuer au niveau des cibles du bloc central, à l'exception aux celles du réflecteur, qui ont subi une diminution en Cm au delà de 55 jours d'irradiation. En Comparant les quatre simulations d'irradiation, le Cm se trouve en moindre quantité dans les cibles positionnées au centre du cœur du réacteur SM3 durant les 90 premiers jours.

Le Neptunium ne pose aucun problème de sûreté, car il se crée sous forme des traces dans tous les échantillons différemment irradiés. Mais, ça n'empêche pas de noter, d'après la figure 5.14, qu'il est produit avec de plus faibles pourcentages lors de l'irradiation de  $^{241}\text{Am}$  effectuée au sein du bloc central du réacteur SM3.



**Fig.5.14.** Accumulations du Np lors de l'irradiation, parallèlement dans les quatre simulations.



**Fig.5.15.** Accumulations du Pu durant l'irradiation, parallèlement dans les quatre simulations.



La figure 5.15 montre clairement que le Plutonium est largement formé au niveau des cibles recyclées dans le réacteur de Petten, au début de l'exposition. Au-delà de 80 jours, la production du Plutonium est devenue plus faible dans le cas de l'irradiation au centre du cœur de réacteur SM3.

A la fin, on conclut que l'efficacité de la transmutation de l'Américium-241 dans un réacteur nucléaire, est liée à l'intensité du flux de neutrons thermiques disponibles. A cet effet, on propose un concept du réacteur, destiné à la destruction des déchets nucléaires à vie longue, ayant un flux thermique autour de  $10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ , pour assurer un taux de transmutation élevé (plus de 99 %) durant une courte période d'irradiation (quelques dizaines de jours).

## Conclusion

Le nucléaire constitue une source d'énergie largement utilisée dans la production mondiale d'électricité durant les dernières années. L'un de ses principaux problèmes est la gestion des déchets nucléaires générés, car ils sont très radioactifs et difficiles à gérer à long terme. Pour cela, des recherches visent à réduire la radiotoxicité et la quantité de ces déchets par la séparation chimique sélective des radioéléments de haute activité et à vie longue suivie par leur transmutation en d'autres éléments moins radioactifs ou carrément stables dans des installations appropriées.

L'objectif de cette étude est d'évaluer les taux de transmutation de l'Américium-241, qui est l'actinide mineur majoritaire présent dans le combustible nucléaire usé, dans les réacteurs à haut flux (HFR). Deux réacteurs ont été choisis pour cette étude, l'un est le réacteur Petten HFR de la Hollande ayant des flux thermiques de l'ordre de  $10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ , et l'autre est le réacteur SM3 HFR de la Russie ayant des hauts flux thermiques, qui dépassent  $10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ . Où, plusieurs cibles identiques, composées purement de l' $^{241}\text{Am}$  métal, sont irradiées dans plusieurs emplacements et pour différentes périodes d'irradiation. Les taux de transmutation de l' $^{241}\text{Am}$  sont évalués grâce au code ChainSolver, version 2.34.

Pour le recyclage hétérogène de cet actinide mineur dans le réacteur de Petten, les résultats d'évaluation des taux de combustion calculés montrent un bon accord avec ceux déjà obtenus expérimentalement par les tests d'irradiation, orientés par la collaboration EFTTRA et effectués au sein de ce réacteur, T4 et T4bis. Ces résultats sont satisfaisants, conduisant à une réduction de 95.511 % de l' $^{241}\text{Am}$  initial durant une exposition neutronique de 358.4 jours en pleine puissance (45 MW), et de 99.674 % durant 652.6 jours.

Son recyclage hétérogène dans le cœur du réacteur SM3, au niveau de son bloc central et de son réflecteur, présente toujours des taux de transmutation élevés durant seulement 90 jours d'irradiation en pleine puissance (100 MW), qui sont de 99.754 % et 98.249 %, respectivement. A cet effet, la destruction de l'Américium est beaucoup plus rapide dans ce réacteur.

Afin d'évaluer les efficacités et les performances de la transmutation de l' $^{241}\text{Am}$  pour les quatre simulations réalisées dans le présent travail, nous avons interprété deux paramètres, le premier est son taux de combustion, et le deuxième est l'accélération moyenne de sa transmutation. Cette évaluation montre clairement que la destruction de cet actinide par irradiation au niveau du bloc central du cœur de réacteur SM3 est extrêmement privilégiée, en réduisant le maximum de sa quantité (~ 99.8 %) durant la plus courte durée (3 mois), avec la plus moindre radioactivité résiduelle due exclusivement aux actinides de haute activité et à vie longue présents dans la cible à la fin de l'irradiation (56 %).

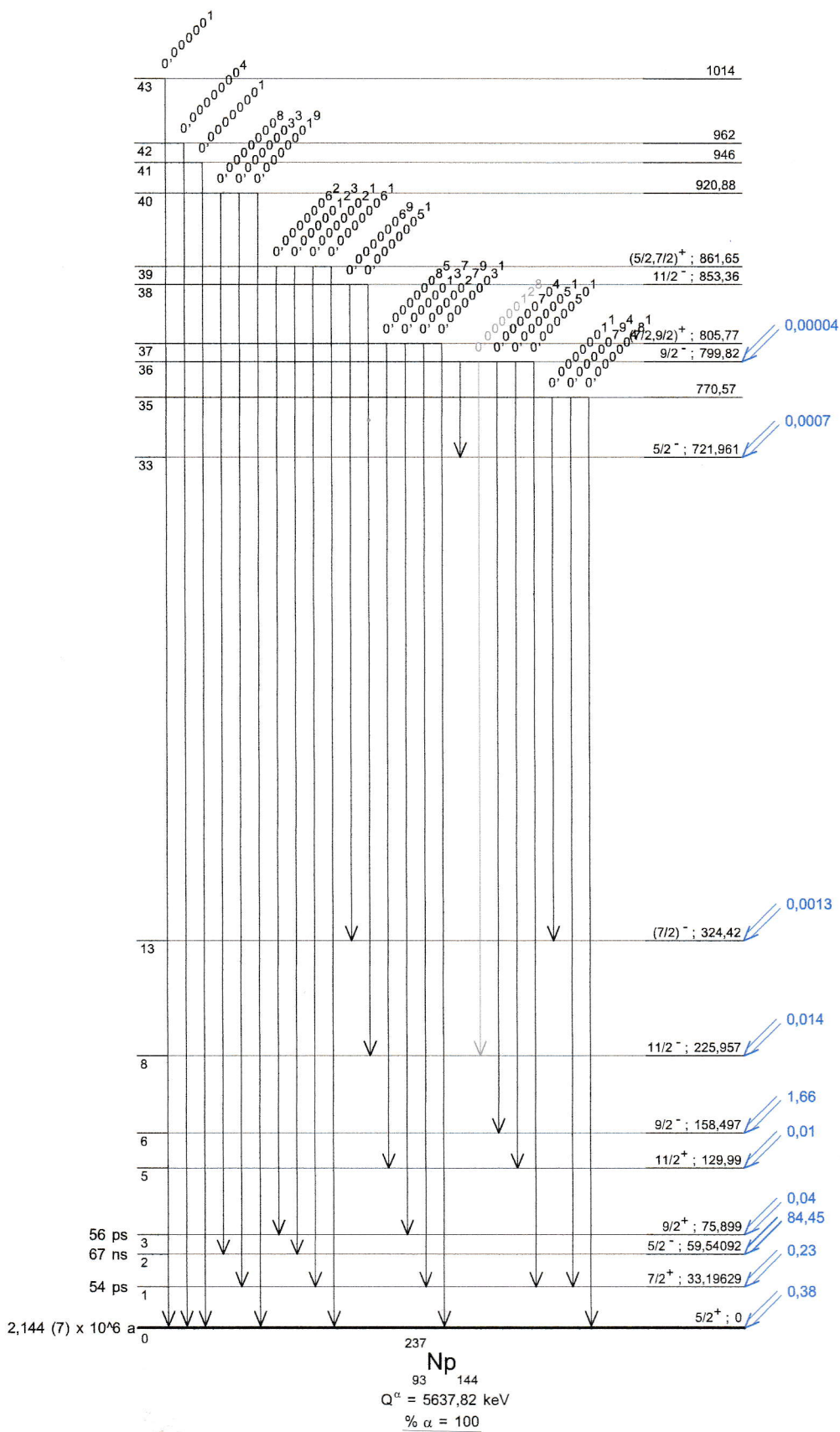
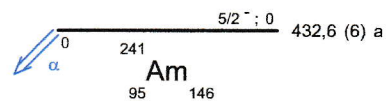
En conclusion, l'efficacité de la transmutation de l'actinide mineur,  $^{241}\text{Am}$ , est directement liée à l'intensité du flux de neutrons disponibles au réacteur, en particulier les neutrons thermiques. Il pourrait alors être envisageable d'utiliser le concept du réacteur destructeur HFR, ayant des flux thermiques plus de  $10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ , destiné à la transmutation des actinides mineurs et certains produits de fission à vie longue. Il serait également intéressant de réaliser des études, qui pourraient être menées afin de vérifier la faisabilité et la fiabilité de cette stratégie dans la pratique.

## *Annexe A*

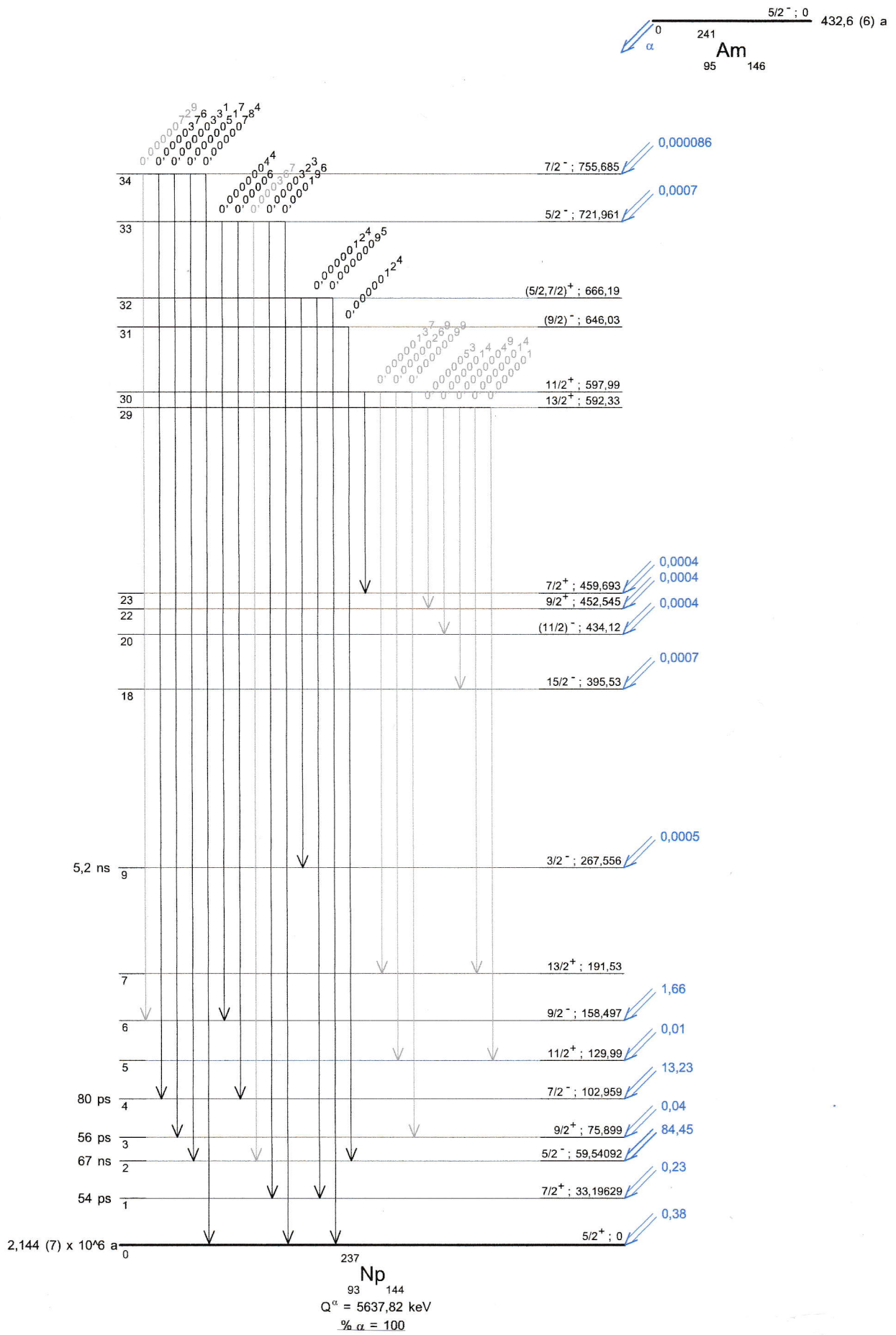
Cette annexe donne les émissions alpha dues à la désintégration naturelle du radionucléide, l'Américium-241, vers le Neptunium-237 ainsi que leurs probabilités, illustrées au tableau ci-dessous. Nous indiquons aussi le diagramme énergétique de l' $^{241}\text{Am}$ , qui englobe toutes ces désintégrations alpha et leurs émissions gamma accompagnées avec leurs probabilités par 100 [45].

	Energie (keV)	Probabilité X 100
$\alpha_{0.36}$	4838.00 (13)	0.00004 (3)
$\alpha_{0.34}$	4882.14 (13)	0.000086
$\alpha_{0.33}$	4915.86 (13)	0.0007
$\alpha_{0.32}$	4971.62 (15)	
$\alpha_{0.30}$	5039.83 (15)	
$\alpha_{0.29}$	5045.49 (14)	
$\alpha_{0.28}$	5047.73 (13)	
$\alpha_{0.27}$	5091.70 (14)	0.0001
$\alpha_{0.25}$	5140.81 (13)	
$\alpha_{0.24}$	5151.60 (15)	0.00011
$\alpha_{0.23}$	5178.13 (13)	0.0004
$\alpha_{0.22}$	5185.27 (13)	0.0004
$\alpha_{0.21}$	5193.04 (16)	
$\alpha_{0.20}$	5203.70 (13)	0.0004
$\alpha_{0.19}$	5219.60 (2)	
$\alpha_{0.18}$	5242.25 (13)	0.0007
$\alpha_{0.17}$	5266.89 (13)	0.0003
$\alpha_{0.16}$	5269.21 (13)	0.0009
$\alpha_{0.15}$	5277.90 (23)	0.0006
$\alpha_{0.14}$	5305.44 (13)	
$\alpha_{0.13}$	5313.40 (13)	0.0013
$\alpha_{0.12}$	5321.00 (3)	
$\alpha_{0.11}$	5332.77 (13)	0.0022 (3)
$\alpha_{0.9}$	5370.25 (13)	0.0005
$\alpha_{0.8}$	5411.82 (13)	0.014 (3)
$\alpha_{0.6}$	5479.32 (13)	1.66 (3)
$\alpha_{0.5}$	5507.83 (13)	0.01
$\alpha_{0.4}$	5534.86 (12)	13.23 (10)
$\alpha_{0.3}$	5561.92 (12)	<0.04
$\alpha_{0.2}$	5578.28 (12)	84.45 (10)
$\alpha_{0.1}$	5604.62 (12)	0.23 (1)
$\alpha_{0.0}$	5637.82 (12)	0.38 (1)

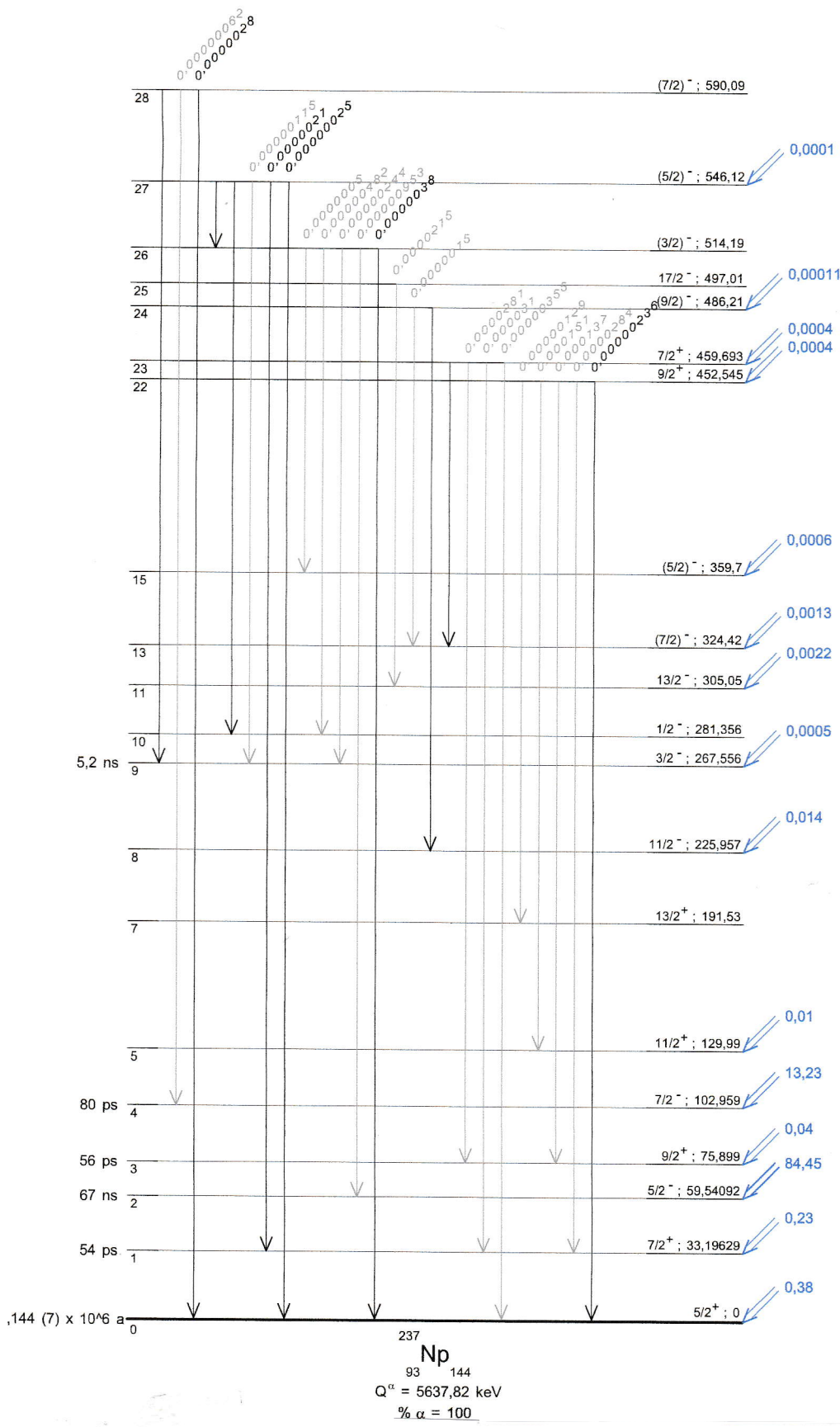
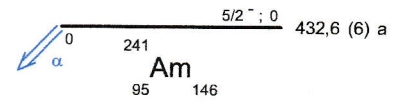
**Tab.A.1.** Caractéristiques des particules alpha émises lors de la désintégration de l' $^{241}\text{Am}$  vers le  $^{237}\text{Np}$  [45].



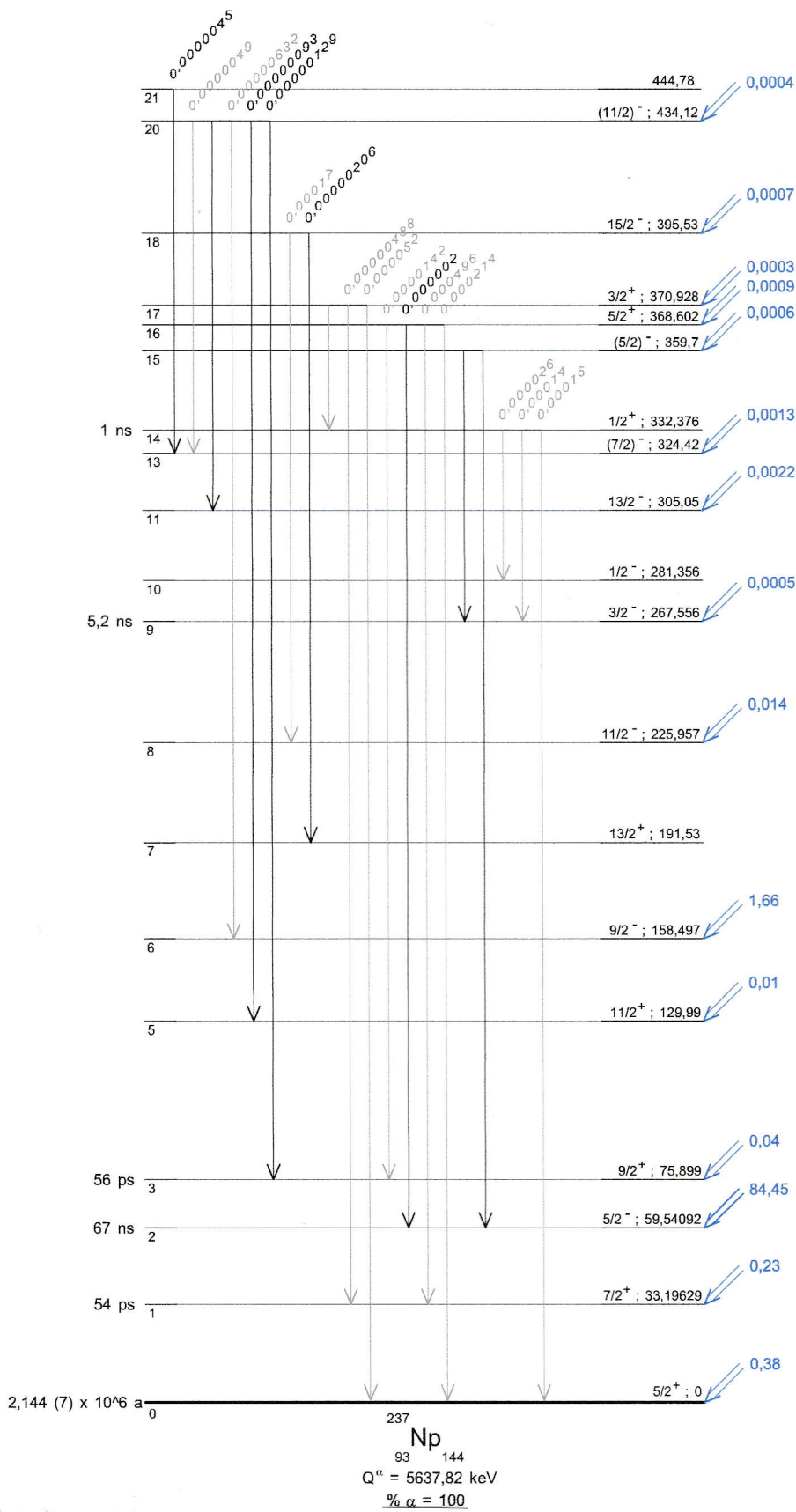
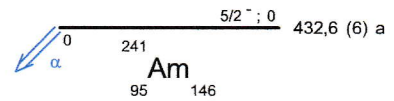
**Fig.A.1.** Diagramme énergétique de la désintégration de l'Am-241 en Np-237 (la partie 1).



**Fig.A.2.** Diagramme énergétique de la désintégration de l'Am-241 en Np-237 (la partie 2).



**Fig.A.3.** Diagramme énergétique de la désintégration de l'Am-241 en Np-237 (la partie 3).



**Fig.A.4.** Diagramme énergétique de la désintégration de l'Am-241 en Np-237 (la partie 4).



$^{241}_{95}\text{Am}_{146}$

$5/2^-; 0$  432,6

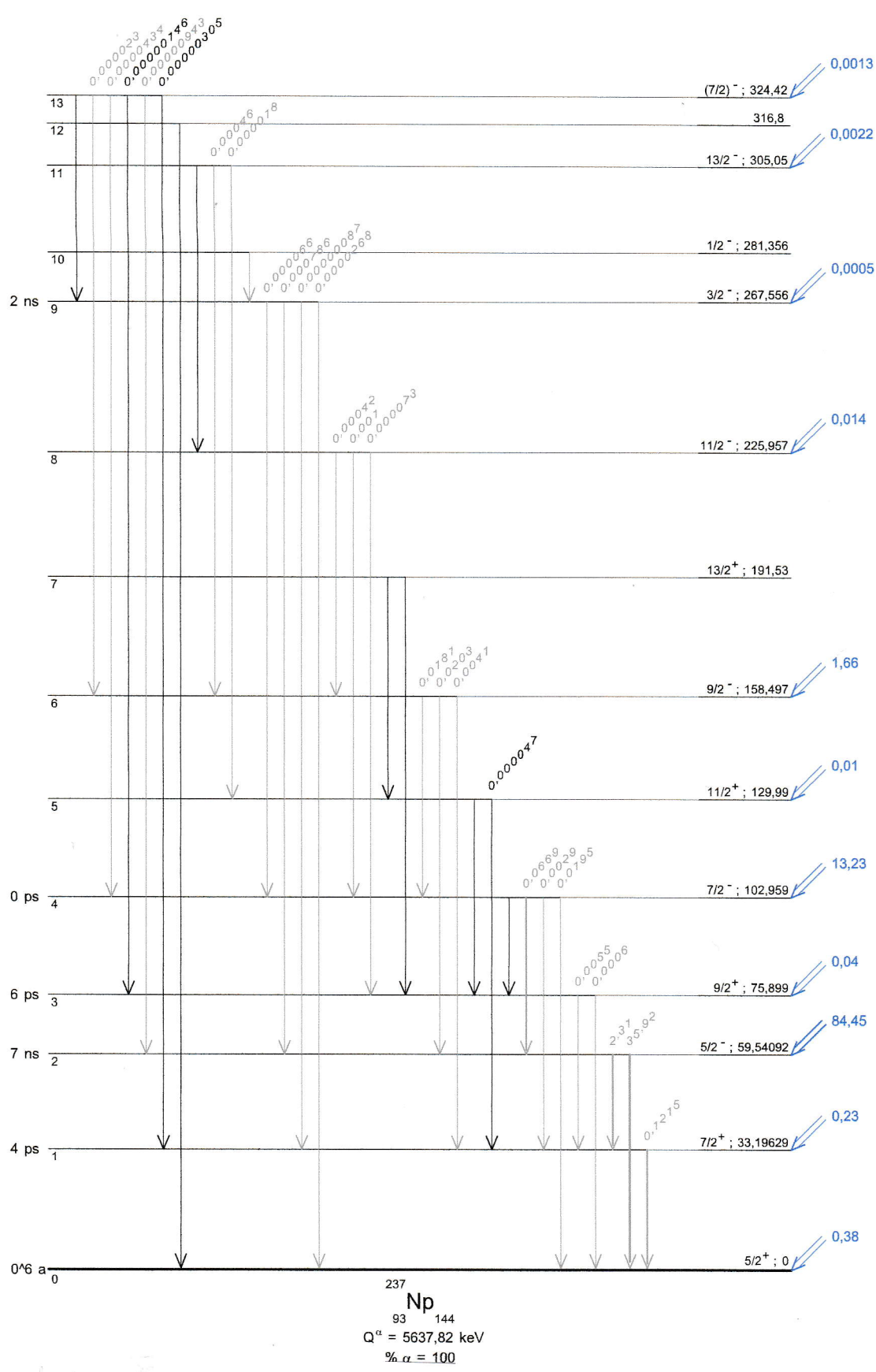
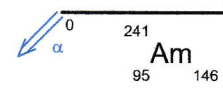
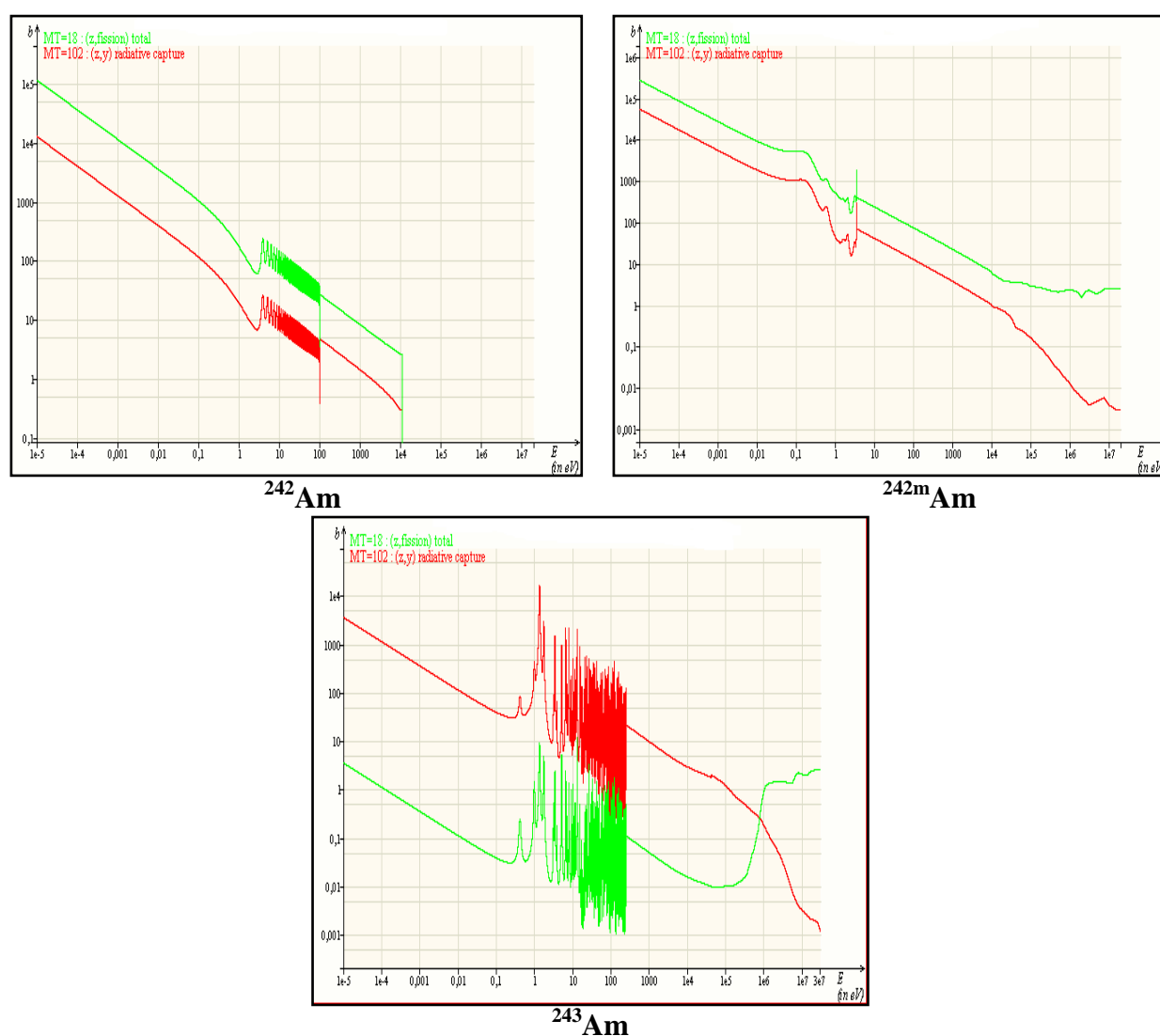


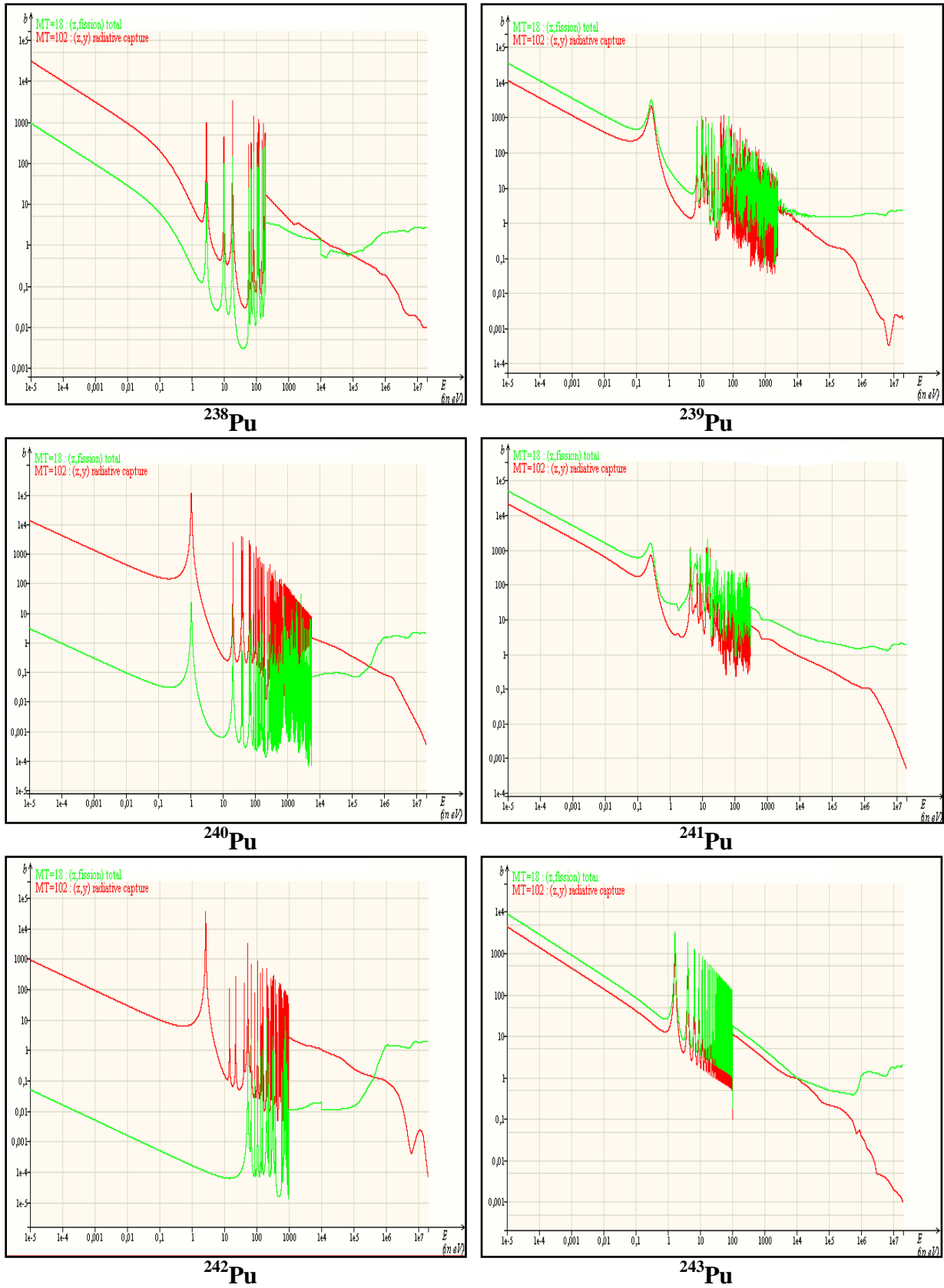
Fig.A.5. Diagramme énergétique de la désintégration de l'Am-241 en Np-237 (la partie 5).

## Annexe B

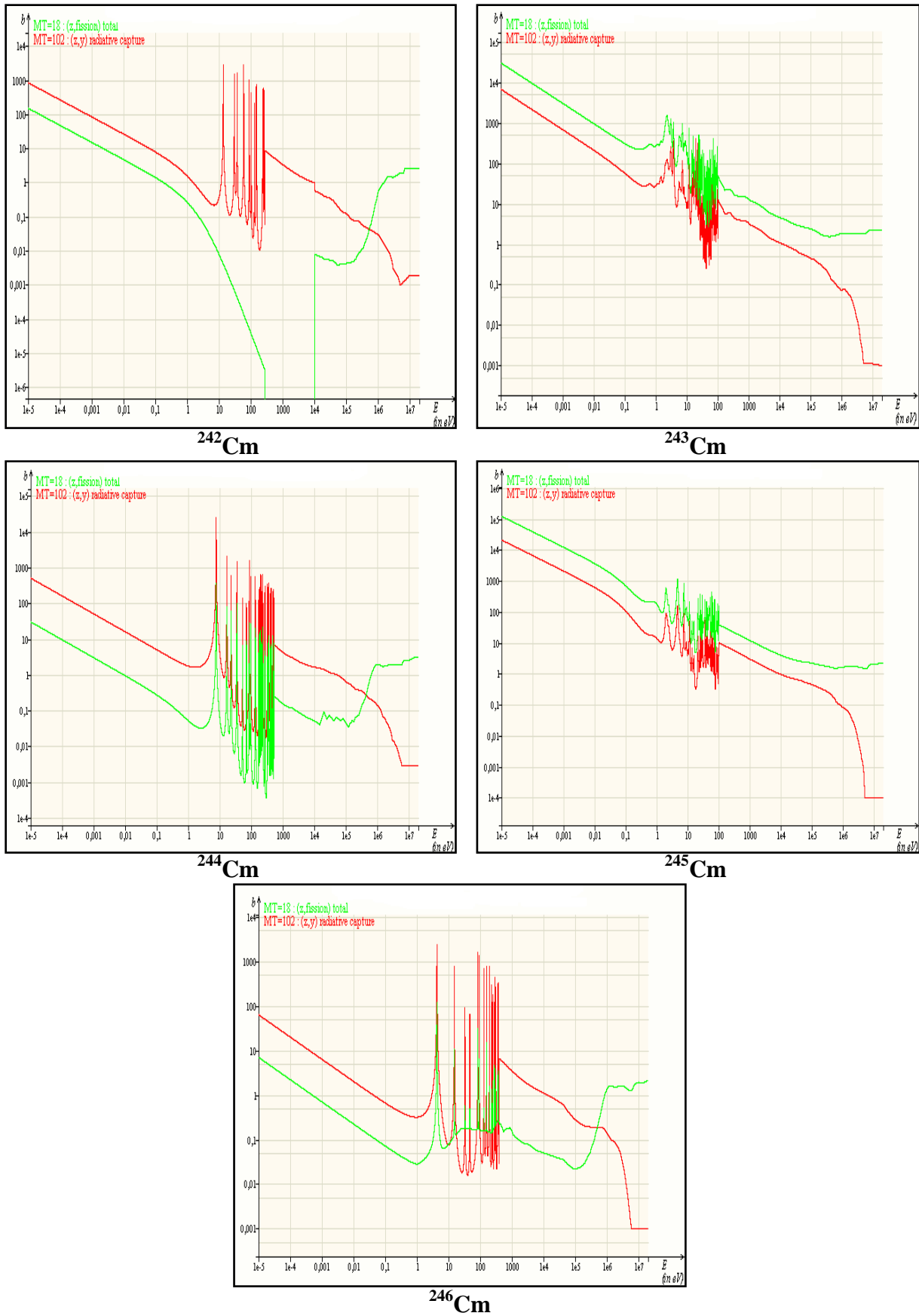
Nous représentons dans cette annexe les courbes des sections efficaces de tous les actinides formés lors de la transmutation nucléaire de l' $^{241}\text{Am}$ , qui illustrent la variation de leurs sections efficaces de capture et de fission en fonction de l'énergie du neutron incident. Ces courbes sont obtenues par le code nucléaire JANIS en utilisant les données nucléaires disponibles dans sa bibliothèque locale ENDFB 6.8.



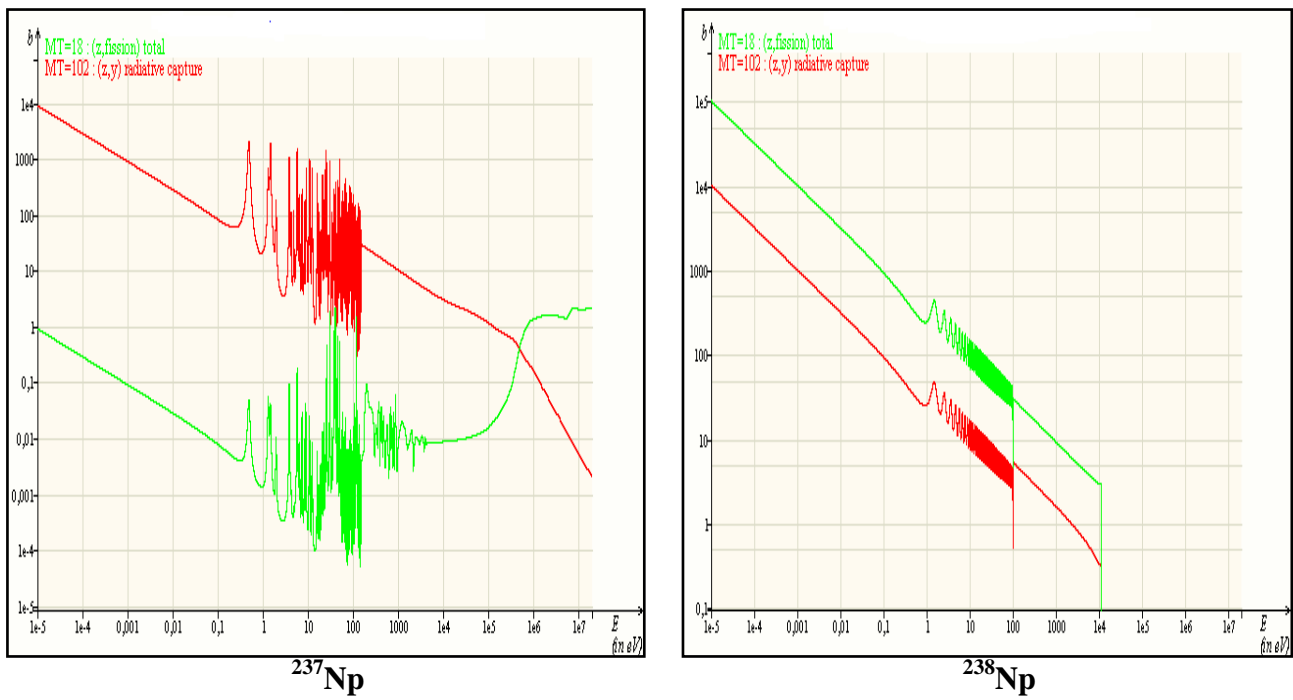
**Fig.B.1.** Sections efficaces de capture et de fission pour les trois isotopes de l'Américium  $^{242}\text{Am}$ ,  $^{242m}\text{Am}$  et  $^{243}\text{Am}$ .



**Fig.B.2.** Sections efficaces de capture et de fission pour les six isotopes du Plutonium ;  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  et  $^{243}\text{Pu}$ .



**Fig.B.3.** Sections efficaces de capture et de fission pour les cinq isotopes du Curium ;  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{243}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{245}\text{Cm}$  et  $^{246}\text{Cm}$ .



**Fig.B.4.** Sections efficaces de capture et de fission pour les deux isotopes du Neptunium ;  $^{237}\text{Np}$  et  $^{238}\text{Np}$ .

## *Liste des figures*

<b>Fig.1.1.</b> Cycle du combustible nucléaire .....	4
<b>Fig.1.2.</b> Schéma du procédé de traitement du combustible usé .....	7
<b>Fig.1.3.</b> Evolution au cours du temps de l'inventaire radiotoxique d'un combustible usé ....	11
<b>Fig.1.4.</b> Schéma simplifiant les différents procédés de la séparation poussée .....	14
<b>Fig.1.5.</b> Stockage en formation géologique profonde dans des alvéoles (galeries) .....	17
<b>Fig.2.1.</b> Chaîne de formation des actinides dans un réacteur nucléaire .....	20
<b>Fig.2.2.</b> Evolution de la radiotoxicité des actinides mineurs présents dans une tonne de combustible usé UOX déchargé à 60 GWj/t .....	23
<b>Fig.2.3.</b> Evolution de la radiotoxicité du combustible usé sans et avec retraitement .....	24
<b>Fig.2.4.</b> Transmutation en mode homogène .....	30
<b>Fig.2.5.</b> Transmutation en mode hétérogène .....	30
<b>Fig.2.6.</b> Principe de la transmutation des actinides en mono-recyclage dans des cibles (à gauche) et en multi-recyclage dans les combustibles (à droite) .....	31
<b>Fig.2.7.</b> Positionnement du modérateur et de l'aiguille cible contenant les actinides mineurs dans un assemblage combustible .....	35
<b>Fig.3.1.</b> La page « Chain » .....	41
<b>Fig.3.2.</b> La page « Conditions » .....	42
<b>Fig.3.3.</b> La page « Time » .....	43
<b>Fig.3.4.</b> La page « Calc » .....	44
<b>Fig.3.5.</b> La page « Answers » .....	45
<b>Fig.3.6.</b> La fenêtre de navigation du code JANIS .....	45
<b>Fig.3.7.</b> La fenêtre de la chaîne de filiation de la base ENDFB 6.8 (exemple U-235) .....	46
<b>Fig.3.8.</b> La fenêtre présentant les spectres discrets des particules émises donnés par la base ENDFB 6.8 (exemple U-235) .....	46
<b>Fig.3.9.</b> La fenêtre présentant le spectre de produit de fission donné par la base ENDFB 6.8 (exemple U-238) .....	47
<b>Fig.3.10.</b> La fenêtre présentant le spectre de sections efficaces d'interaction (exemple U-235) .....	48

<b>Fig.4.1.</b> Chaîne de filiation de $^{241}\text{Am}$ .....	49
<b>Fig.4.2.</b> Sections efficaces de capture (en rouge) et de fission (en vert) pour $^{241}\text{Am}$ , obtenues par le code JANIS grâce à la bibliothèque de données ENDFB 6.8 .....	54
<b>Fig.4.3.</b> Chaîne d'évolution de l'Américium-241 dans un réacteur nucléaire .....	55
<b>Fig.4.4.</b> Structure simplifiée du réacteur HFR de Petten .....	56
<b>Fig.4.5.</b> Arrangement du cœur du réacteur de Petten, dimension (729 mm x 750.4 mm) .....	57
<b>Fig.4.6.</b> Céramographie montrant la porosité des pastilles de l'expérience T4. (a) périphérie de la pastille ; (b) centre de la pastille .....	57
<b>Fig.4.7.</b> Chaîne de transmutation construite dans le code ChainSolver .....	59
<b>Fig.4.8.</b> Variation de masse résiduelle et de taux de transmutation de $^{241}\text{Am}$ concernant la simulation T4 .....	63
<b>Fig.4.9.</b> Changement du contenu de la cible après l'exposition neutronique, simulation T4...64	
<b>Fig.4.10.</b> Evolution du taux de burn-up de l'Am, simulation T4bis .....	65
<b>Fig.4.11.</b> Contenu final de l'échantillon irradié durant 652.6 jours, simulation T4bis .....	66
<b>Fig.4.12.</b> Présentation des résultats des taux de transmutation obtenus par les quatre solveurs du code ChainSolver et ceux mesurés .....	67
<b>Fig.5.1.</b> Présentation Structurale du réacteur SM3 HFR .....	69
<b>Fig.5.2.</b> Eléments combustibles à plaques .....	70
<b>Fig.5.3.</b> Arrangement du cœur du réacteur SM3, 1) le bloc central CBTT ; 2) la tige centrale de calage ; 3) les blocs réflecteurs en Béryllium .....	70
<b>Fig.5.4.</b> Evolution du taux et de masse de l'Am durant l'irradiation (CBTT) .....	74
<b>Fig.5.5.</b> Variation du taux et de masse de l'Am en fonction du temps d'irradiation (réflecteur) .....	75
<b>Fig.5.6.</b> Evolution de la population des actinides présents (CBTT) .....	76
<b>Fig.5.7.</b> Contenu de l'échantillon avant et après l'irradiation (CBTT) .....	77
<b>Fig.5.8.</b> Population des actinides lors de l'irradiation (réflecteur) .....	78
<b>Fig.5.9.</b> Contenu de l'échantillon au début et à la fin de l'irradiation (réflecteur) .....	78
<b>Fig.5.10.</b> Evolution des taux de burn-up de $^{241}\text{Am}$ obtenus par les quatre simulations durant les 90 premiers jours .....	81
<b>Fig.5.11.</b> Evolution des accélérations de transmutation de $^{241}\text{Am}$ obtenues par les quatre simulations durant les 90 premiers jours .....	81
<b>Fig.5.12.</b> Accumulations de l'Am lors de l'irradiation, parallèlement dans les quatre simulations .....	82

<b>Fig.5.13.</b> Accumulations du Cm durant l'irradiation, parallèlement dans les quatre simulations .....	82
<b>Fig.5.14.</b> Accumulations du Np lors de l'irradiation, parallèlement dans les quatre simulations .....	83
<b>Fig.5.15.</b> Accumulations du Pu durant l'irradiation, parallèlement dans les quatre simulations .....	83
<b>Fig.A.1.</b> Diagramme énergétique de la désintégration de l'Am-241 en Np-237 (la partie 1) .....	88
<b>Fig.A.2.</b> Diagramme énergétique de la désintégration de l'Am-241 en Np-237 (la partie 2) .....	89
<b>Fig.A.3.</b> Diagramme énergétique de la désintégration de l'Am-241 en Np-237 (la partie 3) .....	90
<b>Fig.A.4.</b> Diagramme énergétique de la désintégration de l'Am-241 en Np-237 (la partie 4) .....	91
<b>Fig.A.5.</b> Diagramme énergétique de la désintégration de l'Am-241 en Np-237 (la partie 5) .....	92
<b>Fig.B.1.</b> Sections efficaces de capture et de fission pour les trois isotopes de l'Américium $^{242}\text{Am}$ , $^{242\text{m}}\text{Am}$ et $^{243}\text{Am}$ .....	93
<b>Fig.B.2.</b> Sections efficaces de capture et de fission pour les six isotopes du Plutonium ; $^{238}\text{Pu}$ , $^{239}\text{Pu}$ , $^{240}\text{Pu}$ , $^{241}\text{Pu}$ , $^{242}\text{Pu}$ et $^{243}\text{Pu}$ .....	94
<b>Fig.B.3.</b> Sections efficaces de capture et de fission pour les cinq isotopes du Curium ; $^{242}\text{Cm}$ , $^{243}\text{Cm}$ , $^{244}\text{Cm}$ , $^{245}\text{Cm}$ et $^{246}\text{Cm}$ .....	95
<b>Fig.B.4.</b> Sections efficaces de capture et de fission pour les deux isotopes du Neptunium ; $^{237}\text{Np}$ et $^{238}\text{Np}$ .....	96



## *Liste des tableaux*

<b>Tab.1.1.</b> Inventaire des matières au chargement et au déchargement d'un réacteur REP .....	6
<b>Tab.2.1.</b> Propriétés des actinides .....	19
<b>Tab.2.2.</b> Sections efficaces des actinides mineurs .....	26
<b>Tab.2.3.</b> Nombre de neutrons consommés (valeurs négatives) ou produits (valeurs positives) par la transmutation des actinides mineurs .....	29
<b>Tab.4.1.</b> Conditions d'irradiation appliquées aux tests T4 et T4bis .....	60
<b>Tab.4.2.</b> Résultats obtenus par le solveur VODE du code ChainSolver, concernant la simulation T4 .....	61
<b>Tab.4.3.</b> Masses des actinides calculées par le VODE du code ChainSolver au cours de l'irradiation, pour la simulation T4bis .....	62
<b>Tab.4.4.</b> Variation du taux de transmutation de l'Am lors de l'irradiation, concernant la simulation T4 .....	63
<b>Tab.4.5.</b> Taux de destruction de l'Am lors de l'irradiation, simulation T4bis .....	65
<b>Tab.4.6.</b> Comparaison entre les taux de burn-up calculés et mesurés .....	66
<b>Tab.5.1.</b> Caractéristiques neutroniques des canaux d'irradiation du réacteur SM3 .....	71
<b>Tab.5.2.</b> Variation des masses des actinides lors de l'irradiation au niveau du canal CBTT...72	
<b>Tab.5.3.</b> Variation des masses des actinides lors de l'irradiation au niveau du canal réflecteur .....	73
<b>Tab.5.4.</b> Taux de Burn-up de l' <sup>241</sup> Am au canal CBTT .....	74
<b>Tab.5.5.</b> Taux de destruction de l'Am (réflecteur) .....	75
<b>Tab.5.6.</b> Variation de l'accélération moyenne de la transmutation de l' <sup>241</sup> Am lors de l'irradiation au niveau du canal CBTT et du canal réflecteur .....	80
<b>Tab.A.1.</b> Caractéristiques des particules alpa émises lors de la désintégration de l' <sup>241</sup> Am vers le <sup>237</sup> Np .....	87

## ***LES REFERENCES***

- [1] International Atomic Energy Agency ; The principles of radioactive waste management ; Safety series N° 111-F ; IAEA ; Vienna (1995).
- [2] Olivier BRINGER ; Mesures des sections efficaces de capture et potentiels d'incinération des actinides mineurs dans les hauts flux de neutrons : Impact sur la transmutation des déchets ; Thèse pour obtenir le grade de Docteur de l'Institut National Polytechnique de Grenoble ; Le 8 octobre 2007.
- [3] Damien BREGIROUX ; Synthèse par voie solide et frittage de céramiques à structure monazite : application au conditionnement des actinides mineurs ; Thèse pour obtenir le grade de Docteur de l'Université de LIMOGES ; Le 16 novembre 2005.
- [4] Damien PRIEUR ; Elaboration de combustible à base d'oxydes d'Uranium et d'Américium : modélisation thermodynamique et propriétés des matériaux ; Thèse pour obtenir le grade de Docteur de l'Université de LIMOGES ; Le 20 septembre 2011.
- [5] L'énergie nucléaire aujourd'hui ; Agence pour l'Energie Nucléaire AEN ; Organisation de Coopération et de Développement Economiques OCDE ; Edition OCDE N° 53078 ; 2003.
- [6] Cycle simplifié actuel de combustible nucléaire en France ; 2004 ; [www.cea.fr](http://www.cea.fr)
- [7] Manssour FADIL ; Mise au point d'une méthodologie innovante pour la mesure du potentiel d'incinération d'actinides mineurs sous des sources très intenses de neutrons : dans la perspective de transmutation des déchets nucléaires ; Thèse pour obtenir le grade de Docteur de l'Institut National Polytechnique de Grenoble ; Le 26 mars 2003.
- [8] Avancées des recherches sur la séparation-transmutation et le multi-recyclage du Plutonium dans les réacteurs à flux de neutrons rapides ; CEA ; juin 2015.
- [9] Les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue : recherches et résultats ; Axe 1 : Séparation et transmutation des radionucléides à vie longue ; CEA ; Rapport final décembre 2005.
- [10] L. H. BAETSLE ; Brûler les actinides : une option complémentaire? La séparation et la transmutation des actinides et des produits de fission peuvent être un nouvel élément des stratégies de gestion des déchets ; AIEA Bulletin ; 3/1992.
- [11] Fabienne WOLFF-BACHA ; Simulation de transmutation de déchets nucléaires à vie longue par accélérateur ; Thèse pour obtenir le grade de Docteur en sciences de l'Université de PARIS XI ORSAY ; Le 09 juillet 1997.
- [12] Claire GUIPPONI ; Effets de la radiolyse de l'air humide et de l'eau sur la corrosion de la couche d'oxyde du Zircaloy-4 oxydé ; Thèse pour obtenir le diplôme de Doctorat de l'Université Claude Bernard Lyon-I ; Le 15 décembre 2009.
- [13] PUREX ; Article de Wikipédia, l'encyclopédie libre ; Le 12 juillet 2016.

- [14] Traitement des combustibles usés provenant de l'étranger dans les installations d'AREVA NC la Hague ; Rapport 2012.
- [15] Jean-Baptiste CLAVEL ; Etude de systèmes et scénarios électronucléaires double strate de transmutation des actinides mineurs en ADS ; Thèse en vue de l'obtention du grade de Docteur de l'Ecole des Mines de Nantes ; Sous le label de l'Université Nantes Angers Mans ; Le 30 novembre 2012.
- [16] Christophe BOUILLON et Julien AUBERT ; La gestion des matières et déchets radioactifs ; Rapport d'information N° 1218 ; Le 3 juillet 2013.
- [17] Combustible, déchet, explosif ? ; 2016 ; [www.laradioactivité.com](http://www.laradioactivité.com)
- [18] Origine de la loi : la Loi « Bataille » de 1991 ; Ministère de l'environnement, de l'énergie et de la mer ; mis à jour le 16 décembre 2013 ; <http://www.developpement-durable.gouv.fr/Origine-de-la-loi-la-Loi-Bataille.html>
- [19] Présentation de la loi du 28 juin 2006 ; Ministère de l'environnement, de l'énergie et de la mer ; mis à jour le 16 décembre 2013 ; <http://www.developpement-durable.gouv.fr/Preparation-de-la-loi,13067.html>
- [20] Faisabilité technique de la séparation poussée ; Rapport technique N° RT DRCP/2004/1 ; Commissariat à l'Energie Atomique CEA ; 2004.
- [21] Olivier MEPLAN et Alexis NUTTIN ; La gestion des déchets nucléaires ; CNRS ; [http://www.cnrs.fr/publications/imagesdelaphysique/couv-DF/IdP2006/02\\_Dechets\\_nucleaires.pdf](http://www.cnrs.fr/publications/imagesdelaphysique/couv-DF/IdP2006/02_Dechets_nucleaires.pdf)
- [22] Sylvestre HUET ; Journaliste à Libération ; Energies, nucléaire et technologies ; Déchets nucléaires : débat sur le stockage géologique ; Le 18 février 2013.
- [23] Actinide ; Article de Wikipédia, l'encyclopédie libre ; Le 17 juin 2016.
- [24] Anne-Marie BAUDRON, Patrick BLANC-TRANCHANT, Mireille COSTE-DELCLAUX, Cheikh M.DIOP, Jean-Jacques LAUTARD, Anne NICOLAS et all ; Les méthodes de la neutronique ; Département de modélisation des systèmes et structures ; 2016.
- [25] Neptunium ; Article de Wikipédia, l'encyclopédie libre ; Le 21 août 2016.
- [26] Américium ; Article de Wikipédia, l'encyclopédie libre ; Le 21 août 2016.
- [27] Curium ; Article de Wikipédia, l'encyclopédie libre ; Le 2 décembre 2016.
- [28] A. ZAETTA, F. VARAINE, Ch. CHABERT, E. DUPONT, J. F. LEBRAT, J. TOMMASI ; La faisabilité scientifique de la transmutation des déchets à vie longue ; CEA ; 2005.
- [29] Axe 1 : Transmutation ; 2016 ; [www.laradioactivité.com](http://www.laradioactivité.com)
- [30] C. HARTNACK et J. AICHELIN ; Modélisation des collisions proton-noyau dans le cadre du projet GEDEON ; [www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/Public/29/040/29040480.pdf](http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/Public/29/040/29040480.pdf)
- [31] La séparation / transmutation des déchets à vie longue ; Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire IRSN ; [http://www.irsn.fr/dechets/cigeo/Documents/Fiches-thematiques/IRSN\\_Debat-Public-Cigeo\\_Fiche-Transmutation.pdf](http://www.irsn.fr/dechets/cigeo/Documents/Fiches-thematiques/IRSN_Debat-Public-Cigeo_Fiche-Transmutation.pdf)

- [32] S. PILLON ; Synthèse des études sur les combustibles et cibles de transmutation (fabrication, conception, comportement sous irradiation et dissolution) réalisées dans le cadre de la loi Batalle ; Note technique DEC/DIR 04-002 ; CEA ; décembre 2004.
- [33] Les déchets radioactifs à haute activité à vie longue : Loi du décembre 1991 / AXE 1 ; CEA ; Juin 2005.
- [34] A. TSILANIZARA et P. CUENDET ; Simulation numérique de la radioactivité ; J. Chim. Phys. (1998) 95. 881-89.
- [35] Equation de Bateman ; Article de Wikipédia, l'encyclopédie libre ; Le 11 mai 2016.
- [36] E. G. ROMANOV ; ChainSolver code for calculations of transmutations ; 2003.
- [37] E. G. ROMANOV, V. A. TARASOV et F. Z. VAHETOV ; ORIP\_XXI computer programs for isotope transmutation simulations ; American Nuclear Society Topical Meeting in Mathematics & Computations ; Avignon; France; 2005.
- [38] N. SOPPERA, H. HENRIKSSON, A. NOURI, P. NAGEL, and E. DUPONT ; JANIS-2: An Improved Version of the NEA Java-based Nuclear Data Information System ; International Conference on Nuclear Data for Science and Technology ; American Institute of Physics ; 2005.
- [39] A. NOURI, P. NAGEL, N. SOPPERA, A. AHITE, B. TATON, J. PATROUX, F. LECOMPAGNON, C. CUNIUN, O. RIOLAND & L. D'EURVEILHER ; JANIS : A New Software for Nuclear Data Services ; Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 2, p. 1480-1483 (August 2002).
- [40] Isotopes of Americium ; From Wikipedia, the free encyclopedia ; On 1 august 2016.
- [41] Américium-241 ; Article de Wikipédia, l'encyclopédie libre ; Le 31 juillet 2015.
- [42] J. GARNIER-LAPLACE, S. ROYSSEL-DEBET ; Fiche radionucléide : Américium-241 et environnement ; IRSN ; Le 1 octobre 2001.
- [43] Thomas PERRIER ; Etude théorique et expérimentale du comportement biogéochimique de l'Américium-241 en conditions rhizosphériques simplifiées : Application dans un sol agricole calcaire ; Thèse pour l'obtention du grade de Docteur de l'Université Henri Poincaré Nancy I ; Le 15 Juin 2004.
- [44] Americium ; Radiation Protection Document Library ; Environmental Protection Agency EPA ; On July 26, 2016.
- [45] V. P. CHECHEV, N. K. KUZMENKO ; LNE-LNHB/CEA-Table de Radionucléides :  $^{241}_{95}\text{Am}_{146}$  ; Le 7 juillet 2010.
- [46] A. AFSAR, L.M. HARWOOD, M.J. HUDSON, J. WESTWOOD and A. GEIST, Effective separation of the actinides Am(III) and Cm(III) by electronic modulation of Bis-(1,2,4-triazin-3-yl) phenanthrolines ; Chem Commun (Camb). 2015 Apr 7;51(27):5860-3. doi: 10.1039/c5cc00567a. Epub 2015 Mar 2.

- [47] T. SUZUKI, K. OTAKE, M. SATO, A. IKEDA, M. AIDA, Y. FUJII, M. HARA, T. MITSUGASHIRA and M. OZAWA, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol 272, No.2(2007)257-262.
- [48] F.W. LEWIS, L.M. HARWOOD, M.J. HODSON, M.G.B. DREW, J.F. DESREUX and G. VIDIK, Journal of the American Chemical Society 08/2011; 133(33):13093-102.
- [49] Robert Bright Mawuko SOGBADJI ; Neutronic study of the mono-recycling of Americium in PWR and of the core conversion in MNSR using the MURE code; Thèse pour obtenir le grade Docteur en Sciences Physique Nucléaire de L'Université de Paris Sud XI ; Le 11 juillet 2012.
- [50] J. L. KLOOSTERMAN, E. KIEFHABER, M. ROME, J. TOMMASI ; Proceedings Global'97 (1997) p.338.
- [51] Sylvie CASALTA ; Etude des propriétés du système Am-O en vue de la transmutation de l'Américium-241 en réacteur à neutrons rapides ; Thèse pour obtenir le grade de Docteur de l'Université d'Aix-Marseille I ; Le 23 avril 1996.
- [52] B. LIU, K. WANG, J. TU, F. LIU, L. HUANG and W. HU ; Annals of Nuclear Energy 64 (2014) 86–92.
- [53] G. I. MALDONADO, J. GALLOWAY, H. HERNANDEZ ; Annals of Nuclear Energy 37 (2010) 256–264.
- [54] C. YU, X. LI, X. CAI, C. ZOU, Y. MA, J. HAN, J. CHEN ; Annals of Nuclear Energy 85 (2015) 597–604.
- [55] M. ZHENG, W. TIAN, D. ZHANG, S. QIU, G. SU ; Annals of Nuclear Energy 81 (2015) 41–49.
- [56] H. SAGARA, T. YAMAMOTO, S. KOYAMA, S. MAEDA, T. SHIBA and M. SAITO ; Numerical analysis of irradiated Am samples in experimental fast reactor Joyo ; IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering 9 (2010) 012006.
- [57] I. Y. ZHEMKOV, O. V. ISHUNINA, I. V. YAKOVLEVA ; Calculated investigation of actinide transmutation in the BOR-60 reactor ; <http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/Public/33/011/33011318.pdf>
- [58] H. AÏT ABDERRAHIM, V. SOBOLEV, S. LEMEHOV, E. MALAMBU ; Design and modeling of oxide fuel for incineration of Americium and Plutonium in an experimental ADS ; [https://www.oecd-nea.org/pt/docs/iem/lasvegas04/12\\_Poster\\_Session\\_II/PS2\\_18.pdf](https://www.oecd-nea.org/pt/docs/iem/lasvegas04/12_Poster_Session_II/PS2_18.pdf)
- [59] Sébastien CHABOD ; Développement et modélisation de chambres à fission pour les hauts flux : mise en application au RHF (ILL) et à MEGAPIE (PSI) ; Thèse pour obtenir le grade de Docteur de l'Université PARIS XI ; Le 30 novembre 2006.
- [60] V. BERTHOU, C. DEGUELDRE and J. MAGILL, Journal of Nuclear Materials 320 (2003) 156-162.
- [61] Pays-Bas : le réacteur de recherche HFR fête son demi-siècle ; Forum Nucléaire Suisse ; Le 16 novembre 2011 ; [www.nuklearforum.ch](http://www.nuklearforum.ch)

- [62] Geert-Jan de Haas ; The High Flux Reactor (HFR) ; Nuclear research at NRG ; IAEA consultancy meeting ‘Catalogue of research reactors’ Vienna ; On 10-12 June 2013.
- [63] The High Flux Reactor (HFR) at Petten ; Material Testing Reactors MTR ; CEA 2008 ; [www.emtr.eu](http://www.emtr.eu)
- [64] High flux reactor (HFR) PETTEN characteristics of the installation and the irradiation facilities ; European Communities, 2005.
- [65] P.J.M. THIJSSSEN ; Fuel management at the Petten High Flux Reactor ; Irradiation Services/HFR Operations & Services ; NRG ; Petten, Netherlands ; 1999 ; [https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig\\_q=RN:32034873](https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:32034873)
- [66] H. RÖTTGER, A. TAS, P. V. HARDT, W. P. VOORBRAAK ; High flux materials testing reactor HFR Petten : Characteristics of facilities and standard irradiation devices ; Office for Official Publications of the European Communities 1986 — 143 pp ; Luxembourg.
- [67] N. A. HANAN, R. B. POND, and J. E. NELSON ; Revising the HFR-Petten LEU conversion study ; International Meeting On Reduced Enrichment for Research and Test Reactors ; Bariloche, Argentina, November 3-8, 2002 ;
- [68] J. AHLF and H. RÖTTGER, The HFR Petten prospect and future utilization, Proceedings of a Colloquium held in Petten (NL), 20-21 April 1989.
- [69] J. F. BABELOT, R. CONRAD, H. GRUPPELAAR, G. MÜHLING, M. SALVATORES and G. VAMBENEPE ; Proceedings Global 1997, Yokohama, p. 676.
- [70] R.J.M. KONINGS, G. MÜHLING, R. CONRAD, J. ROUAULT, D. HAAS, G. VAMBENEPE ; Transmutation of Americium and Technetium : recent results of EFTTRA ; <https://www.oecd-nea.org/pt/docs/iem/mol98/session3/SIIIpaper2.pdf>
- [71] A. FERNANDEZ, J. P. GLATZ, D. HAAS, R.J.M. KONINGS, J. SOMERS, E. TOSCANO, C. T. WALKER, D. WEGEN ; Fuels and targets for incineration and transmutation of actinides : the ITU programme ; [http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/\\_Public/32/033/32033975.pdf](http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/32/033/32033975.pdf)
- [72] R.J.M. KONINGS, R. CONRAD, G. DASSEL, B.J. PIJLGROMS, J. SOMERS and E. TOSCANO, Journal of Nuclear Materials 282 (2000) 159-170.
- [73] F.C. KLAASSEN, R.P.C. SCHRAM, K. BAKKER, E.A.C. NEEFT, R. CONRAD and R.J.M. KONINGS, Spinel inert matrix fuel testing at the HFR Petten ; <https://core.ac.uk/download/pdf/21747585.pdf>
- [74] F.C. KLAASSEN, K. BAKKER, R.P.C. SCHRAM, R. K. MEULEKAMP, R. CONRAD, J. SOMERS and R.J.M. KONINGS, Journal of Nuclear Materials 319 (2003) 108-117.
- [75] [www.niir.ru](http://www.niir.ru)
- [76] F. MERCHIE ; Les réacteurs de recherche ; Article : 032 ; octobre 2015.
- [77] N. ARKHANGELSKY, A. IZHUTOV, Capabilities and Capacities of RIAR Research Reactors, State Scientific Center – Research Institute of Atomic Reactors, IAEA, Vienna, 10-12 June 2013.

- [78] V.A. TARASOV, E.G. ROMANOV, Y. G. TOPOROV, V.M. RADCHENKO, K.V. ROTMANOV, L.S. LEBEDEVA, A.A. KOZAR and V.F. PERETRUKHIN, published in Radiokhimiya, 2007, Vol. 49, No. 3, pp. 255 257.
- [79] A. A. KOZAR, V. F. PERETRUKHIN, E. A. KARELIN, V. M. RADCHENKO, Y. G. TOPOROV, V. A. TARASOV, and E. G. ROMANOV ; Radiochemistry, Vol. 44, No. 3, 2002, pp. 284 3286. Translated from Radiokhimiya, Vol. 44, No. 3, 2002, pp. 2623264.

## **RESUME :**

Les déchets nucléaires constituent un obstacle majeur devant l'exploitation du nucléaire avec grande sûreté. Beaucoup d'efforts scientifiques sont consacrés à trouver des solutions définitives à ce problème. L'une des voies envisagées 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 but de ce travail est d'étudier la destruction des actinides mineurs dans les réacteurs à haut flux HFR par irradiation neutronique. On prend comme exemple d'application l'Américium - 241. Son taux de transmutation est évalué grâce au code de calcul ChainSolver 2.34. Les résultats obtenus sont ensuite comparés avec ceux déjà établis expérimentalement.

**Mots-clés :** Déchets Nucléaire ; Actinides mineurs ; Transmutation ; Américium-241.

## **ملخص :**

النفائيات النووية تشكل عائقا كبيرا أمام استخدام المجال النووي مع قدر من الأمان. الكثير من الجهود العلمية تسعى إلى إيجاد حلول نهائية لهذه المشكلة. احد السبل المقترحة هي الاكسرة « la transmutation », والتي مبدؤها قائم على تحويل العنصر المشع ذو الدور الاشعاعي الطويل إلى عنصر أقر اقل إشعاعية أو مستقر.

الهدف من هذا العمل هو دراسة تدمير العناصر الأكثر إشعاعية « les actinides mineurs » داخل المفاعلات عالية التدفق HFR بواسطة الأشعة النيترونية. نأخذ على سبيل المثال أكسرة العنصر Américium -241. مردود أكسرتة يقيم من خلال برنامج الحساب ChainSolver 2.34. النتائج المتحصل عليها تقارن فيما بعد مع تلك التي سبق إنجازها تجريبيا.

## **Abstract :**

The nuclear wastes are a major obstacle to the use of the nuclear power with great safety. A lot of scientific efforts are devoted to find definitive solutions to this problem. One of the ways envisaged is the transmutation, whose principle is based on the transformation of the long lived radioactive element by a nuclear reaction to another less radioactive element or stable.

The objective of this work is to study the destruction of minor actinides in the high flux reactors HFR by neutron irradiation. It takes as an example of application the Americium - 241. Its transmutation rate is obtained from the calculation code ChainSolver 2.34. The results are then compared with those obtained experimentally.