



ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

Comptes Rendus Physique

www.sciencedirect.com



Review / Revue

Contrôler et limiter la dispersion des produits radioactifs des centrales électronucléaires en cas d'accident



The ability to control and limit the dispersion of radioactive material during a nuclear accident

Robert Dautray, Jacques Friedel, Yves Bréchet

Académie des sciences, 23, quai de Conti, 75006 Paris, France

I N F O A R T I C L E

Historique de l'article :

Disponible sur Internet le 27 juin 2014

Mots-clés :

Énergie nucléaire

Sécurité

Produits de fission

Plutonium

Américium

Keywords:

Nuclear power

Safety

Fission products

Plutonium

Americium

R É S U M É

Nous examinons le rôle des différences physiques, chimiques et physicochimiques entre les conséquences des accidents de centrales électronucléaires – désignées EN dans la suite – et les accidents majeurs des grands équipements technologiques à hauts risques (extraction, raffinerie et transport du pétrole, grande chimie, lancer de navette spatiale, aviation, mines, chemin de fer à grande vitesse, etc.) afin de pouvoir borner dans l'espace et dans le temps, leurs graves conséquences sur les sociétés humaines, voisines ou non. Nous identifions les substances contenant des noyaux radioactifs dangereux lors de ces accidents nucléaires majeurs des centrales EN et cherchons à diminuer et contrôler les causes de leur diffusion dans l'atmosphère, les sols, les eaux continentales et maritimes. Nous proposons des voies de recherche scientifique conduisant à des solutions pour ce faire, et en particulier :

- A. diminuer, autant que faire se peut, les durées d'irradiation des combustibles nucléaires, et après leur sortie du cœur du réacteur, en extraire les noyaux radioactifs litigieux ;
- B. concevoir des réacteurs de puissance dont les combustibles nucléaires seraient des liquides qui se verraient fréquemment (et même continuellement) soutirés du cœur du réacteur. Les corps radioactifs litigieux seraient alors extraits par voie chimique et le fluide combustible purifié renvoyé dans le cœur ;
- C. séparer, plus radicalement, le circuit du fluide combustible et le circuit du fluide caloporteur, ce dernier pouvant alors ne plus être radioactif, ce qui simplifie considérablement sa conception, son fonctionnement et son démantèlement ;
- D. utiliser un combustible de numéro atomique plus petit que celui de l'uranium ou du plutonium, comme le thorium. Les cycles de combustibles des actinides à numéros atomiques Z (nombre de protons) et A (nombre de nucléons) élevés conduisent, par captures successives de neutrons, à des noyaux pair-pair sujets aux fissions spontanées, donc à des émissions de neutrons lors de ces fissions, même quand la réaction nucléaire en chaîne est arrêtée. Les émissions de neutrons sont un des dangers majeurs et exigent des installations de radioprotection difficiles à réaliser. Une voie de perfectionnement des concepts A, B, C est de partir d'un combustible de numéro atomique plus petit que celui de l'uranium ou du plutonium, comme le thorium. Cela constitue le concept D étudié ici.

Adresse e-mail : robert.dautray@orange.fr (R. Dautray).

<http://dx.doi.org/10.1016/j.crhy.2014.04.003>

1631-0705/© 2014 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

Il se trouve qu'une partie substantielle de ces quatre voies de recherche a été étudiée dans d'autres contextes, depuis un demi-siècle. Ce qui peut en être utilisé ici est précisé, avec les prolongements de recherche nécessaires.

© 2014 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

A B S T R A C T

We examine the role of physical, chemical and physicochemical differences between the consequences of accidents occurring in high-risk technologies (oil extraction, refinery and transport, big chemistry process, space shuttle flying start, airplane, underground mining, high velocity train transportation, etc.) and the major radioactive major accidents in nuclear power plants (NPP) from the viewpoint of their sequels, confined or not confined, in space and time, and then, their serious impact on human societies, neighboring or not. We identify chemical (as volatile species, noble gases, etc.), physical bodies (as aerosols, etc.) containing radioactive nuclei released in these accidents and seek to control and reduce the causes of their diffusion in the atmosphere, migrations in soils and land, transfer in inland waters and oceans. We propose ways of scientific research leading to solutions with a view to get an improved control of these radioactive substances, and in particular:

- A. reducing as much as possible the irradiation duration by removing the fuel elements from the nuclear core of the NPP reactor and extracting all culprit radioactive nuclei;
- B. designing power reactors using liquid fuels that can be frequently or even continuously removed from the core of the reactor. The disputed radioactive substances can, then, be extracted by chemical processes. The purified nuclear fuel fluid may then be returned to the core;
- C. to separate, in a more radical manner, the circuits of the nuclear fuel and that of the cooling fluid, in order to decrease strongly the radioactive phenomena in the latter, easing its design, operation, maintenance and dismantling;
- D. using a fuel of lower atomic number than uranium or plutonium, as thorium. The use in the present-time fuel cycle of actinides with high atomic numbers Z (number of protons) and A (number of nucleons) leads, by successive neutron captures, to very high Z and A pair–pair nuclei (as americium and curium) subject to spontaneous fissions, then emitting neutrons of fission, even when the nuclear chain reaction is stopped. Neutron emissions are a major hazard if their mass production oversized the laboratory level. It poses difficult, complicated scientific problems for human radioprotection. A way to improve concepts further than A, B, and C consists in using a nuclear fuel whose Z and A numbers are much smaller than those of uranium, for instance thorium. This is concept D studied here.

A substantial part of these lines of these four research routes has been already studied in other contexts, during the last half-century. What can be used is specified here, with the necessary extensions to the fields of physics, chemistry, and physical chemistry.

© 2014 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

1. Introduction

Le développement de l'énergie nucléaire a, à plusieurs reprises, conduit à des accidents majeurs liés à la dispersion, tant dans l'air que sur le sol, de matériaux et de substances radioactifs potentiellement nocifs. Des problèmes analogues se retrouvent dans de nombreuses hautes technologies [1–3] et leur prise en compte joue un rôle dans le choix des technologies développées. Dans le cas du nucléaire, les techniques utilisées jusqu'ici sont dues à un choix historique où cet aspect n'a pas, jusqu'à récemment, joué un rôle principal, hormis la question actuellement prise en compte de la rétention en cuve d'un cœur fondu, ou sa récupération dans un dispositif appelé « récupérateur de *corium* ».

On peut valablement se demander si cet aspect de limitation et de contrôle dans l'espace (et le temps) ne doit pas jouer, au contraire, un rôle principal dans la sélection des orientations techniques (par exemple combustible liquide, réacteur sous-critique, cycle du thorium, retraitement du combustible, transmutation d'actinides mineurs, surgénérateur, brûleur, etc.) possibles du nucléaire, certes plus nombreuses que celles disponibles jusqu'ici. Sans aller jusqu'à conduire à la sélection de filières, ce qui relève d'un choix multicritère beaucoup plus complexe devant intégrer l'ensemble du cycle du combustible, la prise en compte de ces aspects de « confinement » peut induire des dispositifs de remédiation qui seront d'autant plus efficaces qu'ils seront intégrés dès la conception des réacteurs.

Le but de cet article est de stimuler cette analyse a priori, qui, de par sa complexité même, ne peut être abordée fructueusement que dans le cadre d'une collaboration internationale ouverte et scientifiquement rigoureuse.

Quelle est la spécificité des rares accidents majeurs des centrales électronucléaires, par comparaison aux nombreux accidents majeurs survenus dans les équipements de haute technologie depuis l'apparition de celles-ci ? Peut-on contrôler ceux-là pour les ramener à ceux-ci ?

En même temps qu'elle bénéficie de leur apport, notre époque connaît des effets pervers des grands développements des services d'intérêt général. Parmi eux, citons les accidents graves des réalisations de haute technologie,¹ dans les mines de charbon, les chemins de fer, les transports aériens, les navettes de l'espace, les naufrages des tankers, les incendies géants des raffineries, les déflagrations des usines chimiques, les sinistres dans les mégapoles urbaines, les cataclysmes des immeubles géants, les explosions urbaines du gaz, et bien sûr, les périls de la route, etc. On pourrait aussi citer des accidents plus « virtuels », dont l'ampleur commence à émerger : par exemple, les faiblesses du contrôle-commande des dispositifs spatiaux, les effondrements des réseaux de distribution électrique et les fraudes massives sur les réseaux Internet. Nous nous limitons dans la suite de cet article aux désastres « physiques », qui sont par nature plus proches des accidents nucléaires. Ces accidents « physiques classiques » sont circonscrits en surface des sols, en perception visuelle des désavantages subis par les victimes. Les ravages résultant de ces accidents sont limités en durée, en hauteur dans l'atmosphère, en déplacement par les vents, et en profondeur dans les eaux, dans les sols, en quantité d'eau dégradée, en sous-sol dégradé, etc. Les dommages occasionnés étant limités dans le temps et dans l'espace, ils ne frappent donc qu'un nombre borné et appréhendable de victimes à secourir.

Hormis les grandes épidémies des autres siècles, de la tuberculose à la poliomyélite, qui ne dépendaient pas directement de l'être humain, aucun des risques auxquels est soumise la vie humaine n'est illimité en portée ou en durée. Parmi les nombreuses innovations dues à l'homme, un type de technologie ne connaît pas, à ce jour, de limite, tant dans l'espace que dans le temps, quand surviennent de très grands accidents : c'est la technologie de l'énergie nucléaire. Son fonctionnement normal est un bienfait pour les hommes et les estimations rationnelles en termes de risque et d'avantage penchent largement vers un bilan positif, que ce soit pour l'usage des ressources ou pour la lutte contre le réchauffement climatique. Mais si les accidents majeurs sont relativement rares, ils sont inattendus et semblent sans contrôle dans l'espace ou dans le temps. Devant cet état de fait, il est normal que le danger lié aux accidents nucléaires soit perçu comme singulier.

Est-il scientifiquement et techniquement possible de limiter dans l'espace et dans le temps les conséquences matérielles, environnementales et humaines d'un de ces rares, mais incontrôlables, accidents advenant aux centrales électronucléaires ? Cette garantie de sauvegarde pourrait-elle inclure l'exploitation, les arrêts pour maintenance, l'entretien, les modifications faisant suite à des évolutions des connaissances physiques et chimiques des technologies et des critères de sécurité ? Cette garantie pourrait-elle être valable tant pour les hommes que pour les écosystèmes ?

En un mot, ce qui différencie les accidents majeurs dus à la plupart des grandes technologies et des grandes épidémies de notre époque de ceux liés au nucléaire, c'est que ceux-là ont uniquement des conséquences locales, tandis que les conséquences des accidents majeurs du nucléaire n'ont pas de borne définie, ni dans le temps, ni dans l'espace. Le but de cette note est d'explorer les différentes options pour limiter l'ampleur et la durée des dommages consécutifs à un accident nucléaire, et ainsi réduire la vulnérabilité des contrées qui les utiliseraient dans un lointain futur.

Dans une première partie, nous envisagerons les approches conceptuelles, dans une seconde partie les obstacles scientifiques et techniques, et dans une troisième partie les questions ouvertes.

2. Le cadre scientifique et technique : approches conceptuelles

Dans les accidents survenant dans les centrales électronucléaires, ce sont les produits de fission (notés PF dans la suite du document) qui sont observés par des mesures de radioactivité, loin de la centrale accidentée. Ils se forment en « nuages » et sont emportés par les vents et les eaux, transportant des corps radioactifs, émetteurs de rayons bêta (noté β), alpha (noté α), gamma (noté γ) et – éventuellement – de neutrons. Ce sont les émetteurs de rayons β et, par là, γ , qui en revenant à leur niveau fondamental, ont entraîné les retombées majeures de Tchernobyl,² de Three Miles Island³ et de Fukushima.⁴ Ce sont eux qui sont responsables, de par la circulation atmosphérique et océanique, du caractère non limité et non prévisible de l'extension spatiale des conséquences de l'accident éventuel.

Ces produits de fission (notés PF) par désintégration bêta sont aussi porteurs d'un autre désavantage : ils dégagent une puissance thermique dite résiduelle quand elle a lieu dans le cœur du réacteur et, en cas d'accident, dans les lieux où sont transportés ces PF.⁵

¹ Voir [1–4].

² Voir les références [5–9].

³ Noté « TMI ». Voir la référence [10].

⁴ Voir l'annexe A, § 1 et les références [11].

⁵ Cette énergie est dégagée dans le milieu entourant les PF par ralentissement des rayonnements émis par ces PF dans la matière qui les environne.

Nous allons, dans cette première partie, préciser les phénomènes physiques, chimiques, physicochimiques à comprendre, à contrôler et à maîtriser afin d'obtenir que les rejets de substances radioactives lors d'éventuels accidents majeurs aient un caractère uniquement local.

Dans les concepts actuels de réacteurs électronucléaires (noté EN dans la suite de cette note), ce sont des produits de fission qui seraient les corps radioactifs les plus néfastes aux humains et à l'environnement,⁶ en cas d'accident dans une centrale électronucléaire conduisant à un relâchement du contenu du cœur.⁷ Ceux des produits de fission qui se forment en nuages sont emportés par les vents et les eaux. Ce sont eux qui ont entraîné les retombées majeures de Tchernobyl,⁸ de Three Mile Island (TMI), de Fukushima,⁹ de Windscale.¹⁰ Les produits de fission s'accumulent dans le cœur du réacteur pendant la durée de l'irradiation du combustible, qui pour les centrales EN actuelles est de deux à trois ans.¹¹ Ces PF restent donc pendant cette durée mélangés au combustible¹² dont ils sont issus¹³ (uranium, plutonium, actinides mineurs).

Un flux constant de produits de fission est donc créé dans le cœur du réacteur. Parmi ceux-ci, les PF, dont la demi-vie par désintégration β est inférieure à la durée moyenne de séjour en réacteur de ces PF, disparaissent et sont remplacés par leurs descendants, qui, en général, ont des demi-vies plus longues. Parmi ceux des PF à demi-vie courte qui survivent, une partie absorbe des neutrons et donne d'autres noyaux absorbants des neutrons. La composition du combustible, en matière de PF et de leurs descendants, évolue donc sans cesse, avec des demi-vies de séjour en réacteur fixées par tous ces processus. La quantité de tous ces PF croît donc régulièrement avec la quantité d'énergie nucléaire issue des fissions du combustible. Finalement, quand on extrait, à un instant t , du combustible du cœur du réacteur, il n'y reste plus, en matière de PF ou descendant de PF, que :

- 1) ceux dont la demi-vie est inférieure à la durée d'irradiation (par exemple, l'iode 131, de demi-vie en réacteur d'environ 80 jours pour un flux de neutrons de l'ordre de $4 \cdot 10^{14}$ neutrons/cm² s. C'est dire qu'une saturation de la teneur de ces PF à vie courte est obtenue par l'action de ces phénomènes antagonistes (voir encadré 1 et la note 37 de bas de page, page 492 de [22]);
- 2) les descendants de PF dont la demi-vie en réacteur est supérieure à cette durée d'irradiation (par exemple, le césium 137, le strontium 90, le technétium 99, etc.). La quantité de PF de la catégorie 2 augmente avec la fluence en neutrons du cœur du réacteur, c'est-à-dire sa durée d'irradiation cumulée. La première catégorie est la plus radioactive, donc aussi celle qui dégage le plus de puissance thermique résiduelle, mais la deuxième est celle qui est le plus longtemps dangereuse pour les humains à moyen et long termes, car sa demi-vie est du même ordre de grandeur que celle de leurs activités.

Le milieu où ces PF sont stationnés, formant un mélange intime avec les combustibles, est à de très hautes températures et est donc aussi soumis à de hautes pressions, variables en divers endroits du combustible, formant ainsi des gradients d'efforts mécaniques et donc des déformations. Parmi ces PF, une fraction substantielle se forme en gaz,¹⁴ qui concourent à augmenter encore plus la pression. En cas d'accident et de relâchement dans l'atmosphère d'une partie des PF, ceux d'entre eux qui se forment en nuages sont emportés par les vents et les eaux, sont lavés par les pluies et, en ruisselant, pénètrent les sols.

Qu'advierait-il des actinides radioactifs, isotopes de l'uranium, du plutonium, de l'américium, du curium¹⁵ en cas d'accident d'une centrale EN? Dans tous les accidents nucléaires répertoriés, ou bien les actinides ne sont pas sortis de l'enceinte de sécurité, comme à Fukushima (ou très peu), ou ils n'ont pas dépassé le site de la centrale EN, ou bien ils sont retombés dans une aire d'une centaine de kilomètres carrés.^{2,16}

⁶ Voir [12].

⁷ Nous appelons « environnement » d'une centrale électronucléaire (que nous notons EN) les écosystèmes, terrestres, marins, atmosphérique susceptibles d'être atteints par des rejets de la centrale EN.

⁸ Voir l'annexe A et les références [5–9].

⁹ Voir en annexe A et les références [13–18].

¹⁰ Voir l'annexe A et les références [19,20].

¹¹ Dans le cycle du combustible des centrales EN existant aujourd'hui, deux à trois ans est la durée entre un chargement d'élément combustible et son déchargement afin de tirer le maximum d'énergie de chaque élément. Dans les futurs concepts de centrales nucléaires, cette durée sera augmentée, afin d'extraire le maximum d'énergie du combustible pendant qu'il demeure dans le cœur du réacteur de la centrale EN. L'ordre de grandeur de la création de produits de fission par an et par gigawatt électrique est d'environ une tonne de PF (voir page 86 de [21]), soit environ 50 à 60 tonnes par an pour le parc électronucléaire français, soit 3 à 4 tonnes de césium 137.

¹² Des fuites éventuelles à travers de fissures dans les gaines peuvent advenir, restant au niveau d'incident d'exploitation sans gravité.

¹³ Les produits de fission proviennent non seulement de la fission de l'uranium 235, mais aussi des fissions par la partie rapide du spectre des neutrons de l'isotope 238 de l'uranium. Une faible proportion de fissions a lieu dans les isotopes du plutonium et des actinides mineurs.

¹⁴ Parmi les espèces chimiques présentes à l'état gazeux dans les combustibles irradiés, citons, outre les xénon, krypton, etc., les produits de fission volatils – voir leur liste et propriétés en annexe A –, l'hélium dû aux émissions α , le tritium dû aux fissions ternaires et divers composés volatils dus à une chimie compliquée.

¹⁵ Voir le document 60, page 247 de [21].

¹⁶ Le lecteur peut consulter les résultats détaillés de mesures des retombées de plutonium et autres actinides dans le cas de l'accident de Tchernobyl, en annexe A, § 1, avec leurs références.

Ce phénomène de dispersion est imputable à la physicochimie¹⁷ des composés des oxydes d'actinides à l'état dispersé qui, bien que peu volatils, peuvent former des aérosols¹⁸ Mais y restent-ils ?¹⁹ Les phénomènes qui suivent cette dispersion des pluies, des ruissellements, commandent l'évolution des concentrations dans sol et la végétation selon une chimie compliquée.²⁰

Le combustible nucléaire est séparé de son environnement par trois barrières : la gaine, la cuve et l'enceinte. Beaucoup peut être gagné en matière de sûreté du nucléaire en perfectionnant ces trois catégories de barrières. Pour la première, observons que tous les produits de fission et les actinides contenus dans le cœur du réacteur ne sont enserrés que par une mince pellicule métallique (appelée gaine), qui les sépare d'un fluide caloporteur. Celui-ci exerce des efforts, mais le combustible, gonflant à cause des gaz émis au cours des réactions nucléaires, exerce lui aussi une pression sur la gaine. Cette gaine subit donc de forts gradients de température, de pression, de dépôt d'énergie des rayonnements.²¹ De plus, ces quantités physiques sont hétérogènes dans le cœur du réacteur, ce qui en fait une éventuelle région fragile. Il en résulte des tensions mécaniques qui s'ajoutent aux dégâts de la structure²² des matériaux par irradiation par des neutrons, des rayons gamma, etc.

Peut-on obtenir, par un changement majeur de concept scientifique du réacteur, un obstacle efficace à la fuite de la radioactivité, encore plus efficace que cette barrière qu'est la gaine ? Peut-on, en toutes circonstances prévisibles, être assuré de contrôler la dispersion des produits radioactifs ? En particulier, pour les seuls produits de fission, y a-t-il une voie possible pour diminuer les rejets en cas d'accident ? Y a-t-il une telle voie pour les isotopes du plutonium, de l'américium et du curium ?

Voici quelques premiers éléments de réflexion pour avancer sur les réponses à ces questions.

2.1. Peut-on dissocier dans l'espace le réservoir de produits radioactifs susceptibles de migration incontrôlable et la source de chaleur capable de le libérer de tout contrôle ?

La proximité de la source de chaleur et des substances qui sont les produits des réactions nucléaires, dont la première citée est la cause de la dispersion, ainsi que celle des noyaux radioactifs dont on veut éviter la dispersion constituent, *in fine*, le cœur du problème. Est-il possible de les séparer ? Qu'est-ce qui est contrôlable dans l'espace ? Qu'est ce qui est contrôlable dans le temps ? On est donc conduit à la question suivante : peut-on trouver des moyens de rendre passivement contrôlables les conséquences d'un accident de centrale électronucléaire en ce qui concerne la dispersion de la radioactivité des produits de fission (PF), tant dans l'espace que dans le temps ? Est-il possible d'avoir une solution semblable pour les isotopes du Pu et leurs descendants ?

Le présent texte se concentre sur la sûreté du réacteur, tant pour lui-même que pour ses conséquences sur l'«îlot nucléaire». Nous ne traiterons pas ici les accidents majeurs (incendie des alternateurs, des transformateurs, etc.) pouvant être déclenchés dans les parties classiques de la centrale électronucléaire. De plus, les accidents ou incidents étudiés ici concernent la durée totale du cycle de vie de la centrale sur son site, qui comporte le démarrage de son exploitation, ses maintenances, son démantèlement et le devenir de ses déchets radioactifs.²³

Quatre exemples de classes de solutions sont envisageables, chacune ayant des avantages et des défauts. Notons bien que, hormis la solution A, aucune des trois autres options n'est à ce jour opérationnelle et, en conséquence, il importe de comprendre que cet article ne propose pas des alternatives aux solutions actuelles qui soient disponibles de suite, mais des pistes de réflexion pour les futures générations de réacteurs, au-delà des concepts actuellement en cours d'étude.

Une solution A²⁴ consisterait à n'irradier un combustible que pendant un temps relativement court. En effet, quand on extrait à un instant t du combustible du cœur du réacteur, il n'y reste plus, en matière de PF ou descendant de PF, que :

- 1) ceux dont la demi-vie est inférieure à la durée d'irradiation (par exemple, l'iode 131, de demi-vie en réacteur d'environ 80 jours pour un flux de neutrons de l'ordre de $4 \cdot 10^{14}$ neutrons/cm²s). C'est dire qu'une saturation de la teneur de ces PF à vie courte dans le cœur est obtenue par l'action de ces phénomènes antagonistes (voir encadré 2 et sa note 50 de bas de page, page 492 de [22]);
- 2) les descendants de PF dont la demi-vie en réacteur est supérieure à cette durée d'irradiation (par exemple, le césium 137, le strontium 90, le technétium 99, etc.). La quantité de PF de la catégorie (2) augmente avec la fluence en neutrons du cœur du réacteur, c'est-à-dire sa durée d'irradiation cumulée. La première catégorie est la plus radioactive, donc aussi celle qui dégage le plus de puissance thermique résiduelle, mais la deuxième est potentiellement la plus dangereuse pour les humains à moyen et long termes, car sa demi-vie est du même ordre de grandeur que celle de leurs activités.

¹⁷ Formation de poudre, de grains, d'aérosols à partir des composés des actinides.

¹⁸ Voir le § 9-4-2 de la référence [23] pour l'uranium, le § 11-1 pour le plutonium et le § 12-4 pour l'américium.

¹⁹ Voir le détail des phénomènes en annexe A, § 1.

²⁰ Voir des éléments de cette chimie dans [24].

²¹ Irradiation par les neutrons, par les rayons gammas [123].

²² Voir [25,26,124].

²³ Voir [27].

²⁴ Voir [28] et [29].

On peut alors i) extraire chimiquement les substances chimiques contenant des PF sans qu'ils s'accumulent trop dans le combustible situé dans le cœur et, par ailleurs, ii) diminuer la formation des isotopes lourds du plutonium, de l'américium et du curium.²⁵ Cela a été pratiqué dans les centres de production de plutonium²⁶ des nations « nucléaires », justement, pour éviter la production d'isotopes lourds du Pu.²⁷ Une durée d'irradiation du combustible de 45 à 90 jours est envisagée par le projet PRISM, dont le but est de détruire le stock de plutonium séparé du Royaume-Uni.²⁸ Cette solution est certainement la plus facile à mettre en œuvre, mais dans une optique de génération d'électricité, elle s'avèrerait probablement très lourde.

Une solution B serait que le combustible soit un liquide²⁹ et possède aussi la fonction de caloporteur.³⁰ Le combustible liquide étant soutiré du cœur à un taux qui peut être élevé, la quantité de PF présente dans le cœur, pour ce qui est de ceux à demi-vie longue, peut être aussi petite que l'on veut. Le traitement de séparation chimique des PF à vie courte, d'une part, et celui des PF à vie moyenne et longue, d'autre part, peut se faire physiquement à l'extérieur de l'« îlot nucléaire » et être optimisé du point de vue radioactivité, puissance résiduelle, émission de neutrons par fission spontanée, en agissant sur ce taux de soutirage. De plus, les procédés de séparation chimique du cas A exigent, soit des opérations de mise en solution, soit des préparations par pyrochimie. Cette opération sur des corps très radioactifs n'est plus nécessaire dans ce cas B.

Ajoutons que les contraintes de ces procédés de séparation chimique doivent être compatibles avec l'extraction des corps gazeux (xénon, krypton, tritium, hélium, etc.) et celle des substances volatiles (césium, strontium, tellures, etc.). Le découplage d'avec l'îlot nucléaire en facilite l'exploitation.

C'est l'un des projets de GEN IV. Les difficultés scientifiques de sa mise en œuvre, relevant de la chimie, de la physico-chimie, de la physique, sont bien inventoriées, grâce notamment à l'expérience de ce type qui a fonctionné à l'ORNL dans les années 60 et à l'étude en cours à l'IN2P3/CNRS.

Est-il possible d'aller encore plus loin, en séparant le fluide caloporteur³¹ et le combustible, qui serait un autre fluide qui circulerait en continu pour en extraire les produits de fission ? Il est évidemment essentiel d'étudier lesquels des produits de fission on veut séparer et traiter comme les plus potentiellement dangereux. Les critères de choix devront prendre en compte, non seulement l'éventualité d'un accident majeur pendant la production nominale d'électricité, les travaux pendant toute la durée et le contenu des opérations d'aval du cycle de combustible, celles du démantèlement des installations nucléaires, ainsi que le sort définitif des déchets radioactifs. Un critère essentiel pour déterminer les caractéristiques détaillées de ces opérations sera la radioprotection des travailleurs, du public dans tous les types d'activité (production nominale d'électricité, fin de vie des installations, mais aussi de toutes les substances radioactives, etc.). Avec ce que nous en connaissons aujourd'hui, nous pensons pouvoir séparer les substances chimiques contenant le ¹³⁷Cs, le ¹³⁴Cs, l'¹³¹I, l'¹²⁹I, le ⁹⁰Sr, le tritium. Cette étude de justification et de faisabilité concerne déjà :

- 1) les PF posant problème pour leur stockage définitif : ⁷⁹Se, ⁹³Zr, ⁹⁴Nb, ⁹³Mo, ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ¹³⁵Cs, ¹²⁶Sn (voir les documents 65, page 251 et 67, page 253 de [21]),
- 2) toutes les substances volatiles,
- 3) les gaz nobles, et comme nous l'avons dit plus haut,
- 4) les actinides mineurs.

Dans ce dernier cas, que nous noterons C, le corps caloporteur pourrait être un fluide inerte (tant vis-à-vis de réactions chimiques que de réactions nucléaires³²).

²⁵ Il y aura des actinides de vie courte comme le neptunium 239 et des isotopes du curium.

²⁶ Ces centres de production de matériaux fissiles sont situés à Hanford, Savannah River, Sellafield, Krasnoïarsk, etc.

²⁷ Une durée d'irradiation du combustible de 45 à 90 jours est envisagée par le projet PRISM, dont le but est de détruire le stock de plutonium (il y aurait 87 tonnes de plutonium de composition isotopique civile au Royaume-Uni en attente de traitement d'après *World Nuclear News* ; d'autres sources citent 110 tonnes de plutonium).

²⁸ Une expérience considérable existe quant à ce processus A, car il a été utilisé pour fabriquer du plutonium à haute teneur en isotope 239.

²⁹ La réalisation des pompes devait permettre aux gaz nobles (xénon 133, xénon 135, krypton 85, etc.) des PF de s'échapper, ce qui est un avantage considérable par rapport aux combustibles solides, en cas d'accident.

³⁰ Cela est analogue à la génération de tritium dans la fusion thermonucléaire par tokamak (l'injection de lithium, l'extraction de ce lithium chargé en tritium, l'extraction du tritium, la purification, la re-fabrication du tritium à injecter avec le deutérium, etc.). La réaction nucléaire souhaitée pour régénérer le tritium utilise l'isotope 6 du lithium. Il faut donc enrichir au préalable le lithium qu'on injecte dans les circuits d'un éventuel réacteur à fusion thermonucléaire. Le lithium naturel comporte 7,79% de l'isotope 6 et 92,41% de l'isotope 7. Au contraire, dans un réacteur à réaction en chaîne sur des actinides, il faut éviter ces réactions de capture, qui sont parasites. On viserait donc du lithium enrichi à 99,995%. C'est possible, car il est bien plus facile d'enrichir le lithium que l'uranium, compte tenu du rapport des masses des isotopes (voir [30]).

³¹ Le fluide caloporteur serait un fluide inerte (vis-à-vis des réactions chimiques et des réactions nucléaires), dont les caractéristiques seraient commandées par les processus thermodynamiques (voir [31]) reliant la source chaude à la source froide (les constantes de temps de ce sous-système se comptent en « dizaine de secondes », à comparer aux constantes de temps du combustible, qui se comptent en dizaine de mois, voire en années – 450 jours dans l'application citée dans la troisième partie, § 3).

³² Un exemple en est le gaz hélium sous pression.

Le combustible serait un autre fluide qui circulerait en continu pour en extraire les produits de fission. Ses caractéristiques seraient commandées par le maintien de la criticité³³ dans le cœur^{34,35} ainsi que par le niveau du flux de neutrons, donc de la puissance thermique du cœur.³⁶

Devrait-on ajouter l'objectif d'extraire chimiquement l'américium ?

En un mot, le traitement du combustible, tant à l'intérieur du réacteur par irradiation que par la séparation chimique hors du cœur de ce dernier, permet le contrôle des noyaux atomiques, des noyaux fissiles et des produits de fission.^{37,38}

Observons que l'obstacle réside toujours dans la nécessité d'empêcher le ²⁴¹Pu et le ²⁴¹Am d'être dispersés en cas d'accident. Une solution radicale D serait de les supprimer en passant à un autre combustible, le ²³³U (demi-vie α : 1,592 · 10⁵ ans), obtenu par capture d'un neutron par le ²³²Th.³⁹ Parmi les problèmes qui se posent, il y a la longue demi-vie β (26,966 j ; 570,14 keV) du protactinium 233 et la présence de l'uranium 232,⁴⁰ bien que la teneur en ce dernier soit toujours très faible. La forte énergie cinétique du rayonnement de l'uranium 232 – émission d'un α de 5,32 Mev avec une demi-vie de 68,9 ans et un puissant rayonnement γ conduisant au thorium 228 jusqu'au tantale 208 qui émet un γ de 2,6 Mev lors de sa désintégration – constitue un aspect positif. Ainsi, ce γ fait obstacle à l'emploi du matériau contenant ce ²³²U pour des explosions nucléaires, tant par son absorption de neutron que par sa facilité de détection liée à cette émission d'un rayon gamma de forte énergie. Cette comparaison des combustibles issus de l'uranium naturel avec ceux issus du thorium a été réalisée maintes fois, toutefois dans des cadres différents. Elle gagnerait à être suivie dans une perspective globale, à long terme, de tous les aspects – prolifération,⁴¹ sûreté, sécurité, économie, coûts – de l'énergie nucléaire.

2.2. Faisabilité d'un combustible fluide

Une démonstration⁴² de la faisabilité d'un concept de réacteur à combustible fluide est l'expérience du concept⁴³ de réacteur nucléaire dit homogène, suivie de celle du réacteur à sel fondu, étudiés au laboratoire national de Oak Ridge⁴⁴ (ORNL) dans les années 1950–1960.⁴⁵

On peut se demander quelle serait la barrière dans une centrale électronucléaire à combustible liquide.

Mais barrière de quels phénomènes ? Celle du cœur du réacteur où a lieu la réaction en chaîne, ou bien celle de tout le fluide combustible ? Cela inclurait-il le « chaudron » qui contient le combustible liquide, les circuits et les unités de séparation chimique, les circuits d'introduction du nouveau combustible dans le cœur, l'extraction des PF, des actinides mineurs, des produits de désintégration des actinides ?

³³ C'est-à-dire le maintien de la réaction en chaîne stationnaire des fissions dans le combustible.

³⁴ Donc la neutronique du cœur tant pour l'uranium 235 et le plutonium 239 que pour l'uranium 233.

³⁵ Les propriétés des noyaux utilisés comme combustibles dans les réactions en chaîne sont exposées dans l'annexe A.

³⁶ Ces deux quantités physiques, réactivité pour la criticité et valeur du flux de neutrons pour la puissance thermique spécifique du cœur, sont commandées par : i) les caractéristiques de l'extraction chimique des produits de fission à l'extérieur du cœur, la stabilité du flux de neutrons par rapport aux perturbations, et donc ii) les compositions des combustibles à réinjecter dans le réacteur.

³⁷ Les constantes de temps de ces processus sont commandées par les phénomènes d'irradiation des flux de noyaux : un des objectifs du concept de centrale EN est d'utiliser le plus complètement la quantité de noyaux fissiles introduite dans les assemblages combustibles du réacteur. On a vu que, dans les centrales EN actuelles, la durée de cette irradiation est de 2 à 3 ans. Pour des réacteurs produisant le moins possible d'actinides mineurs, un projet en cours d'étude (que nous verrons plus loin dans la troisième partie, § 3) voudrait que l'ordre de grandeur du cycle du combustible dans l'intérieur de la centrale EN soit d'environ 45 j. La rotation du fluide caloporteur entre le cœur et l'échangeur de chaleur (donc le cycle de transfert de la chaleur) se ferait à une vitesse d'environ 6 m/s, soit une durée d'environ quelques secondes pour la rotation complète du fluide caloporteur. Si on veut diminuer le plus possible la quantité de PF qui est accumulée en fin de cycle d'irradiation à l'intérieur du cœur, une telle durée courte du cycle d'irradiation serait un but à rechercher. La différence considérable entre ces deux cycles, celui d'irradiation et celui d'extraction de la chaleur, donc entre leurs circuits (dont les équipements dédiés à leur fonctionnement : pompes, vannes, purgeurs, filtrage, instrumentation de mesure et de contrôle-commande, etc.), constitue la raison pour laquelle les séparer physiquement simplifie le concept du réacteur de la centrale EN.

³⁸ Les facteurs qui commandent cette durée sont : i) les demi-vies de désintégration radioactives des noyaux présents dans le combustible irradié, donc des assemblages combustibles introduits dans le réacteur, de la fluence qu'ils subissent ; ii) les caractéristiques de la séparation chimique, et iii) la composition du combustible qu'on injecte à nouveau dans le réacteur. Tout cela relève des choix des concepteurs du réacteur de la centrale EN et de son cycle de combustible. Ce sont donc des variables de contrôle de l'installation nucléaire.

³⁹ Voir les références [32–47].

⁴⁰ Toute séparation isotopique de l'uranium 235 est en fait une séparation isotopique des noyaux légers présents dans l'uranium, donc un enrichissement en ²³²U, par exemple si l'uranium traité est un uranium ayant déjà été irradié (dit uranium de retraitement). Un uranium enrichi à 90 % en ²³⁵U contient plusieurs milliers de fois plus d'²³²U que ceux à faible teneur en ²³⁵U. Le rapport ²³⁶U/²³²U (cet ²³⁶U est formé lors de l'irradiation de ²³⁵U, par capture d'un neutron) est de l'ordre de 10⁶. La désintégration α du ²³⁶Pu conduit à l'²³²U. Tout plutonium produit dans un réacteur nucléaire contient de l'ordre de 10⁻⁸ d'²³²U. Une autre voie de production de l'²³²U est la désintégration β du protactinium 232, ce ²³²Pa étant issu de la capture d'un neutron par le ²³¹Pa, lui-même issu d'une désintégration β du thorium 231.

⁴¹ Voir le chapitre 14 de [48].

⁴² Une comparaison entre des noyaux fissiles nécessite la comparaison de l'économie des neutrons dans les deux cas de noyaux fissiles. Pour ce qui est des PF, la comparaison des taux de PF émis lors d'une fission dépend de l'énergie cinétique du neutron incident arrivant sur le noyau fissile. Par exemple, pour un spectre d'énergie thermique, et pour le cas du ¹³⁷Cs, les taux de production des noyaux de ²³⁹Pu, d'²³⁵U et d'²³³U, sont, respectivement, de 5,24 %, 6,15 %, 7,16 %. Dans le cas de l'¹³¹I, ces pourcentages deviennent 3,8 %, 3,1 %, 2,7 %.

⁴³ Voir les annexes B et C, § 1 et § 2.

⁴⁴ Le laboratoire national de Oak Ridge, dans le Tennessee, aux États-Unis, est appelé Oak Ridge National Laboratory (ORNL).

⁴⁵ L'expérience MSRE, qui a fonctionné à l'ORNL de 1965 à 1965, est décrite dans la référence [49] après une décennie d'études approfondies, au niveau de 7,4 MW thermique. Voir le bilan dans les annexes B et C § 1 et § 2.

Observons que si on sépare le circuit du combustible de celui de ses produits dérivés⁴⁶ – (i) les actinides obtenus par capture de neutrons⁴⁷ par le combustible ou par désintégration de ces actinides dits « mineurs » et ii) produits de fission et leurs descendants, comme dans la solution C ou D –, le circuit de refroidissement n'a pas besoin de première barrière, puisqu'un choix de fluide caloporteur stable vis-à-vis des réactions nucléaires⁴⁸ lors de son passage dans le cœur du réacteur permettrait de le maintenir non radioactif.

2.3. Nécessité d'une solution de réacteur surgénérateur (voir [22])

Les échelles de temps concernés par la présente réflexion sont très lointaines et coïncident avec les époques où la gestion économe du combustible nucléaire sera indispensable : on ne pourra pas échapper à une solution de type surgénérateur [22]. Un de ces concepts est-il viable avec, de plus, l'objectif de faire de la surgénération⁴⁹ avec du plutonium à partir de captures de neutrons par de l'uranium appauvri ? Cela impose que le spectre des neutrons donnant lieu aux fissions doit être d'énergie rapide. Faut-il aussi considérer le cas où l'on voudrait utiliser du thorium comme noyau fertile, conduisant à l'²³³U⁵⁰ comme noyau fissile ? Des études exploratoires ont eu lieu à l'ORNL dans les années 60 et d'autres sont en cours⁵¹ (voir l'annexe D et les références [51,44,45,52]).

2.4. Autres solutions de remédiation

Les options présentés dans les sections précédentes concernent le concept de réacteur lui-même et visent à limiter la cause des dispersions possibles à la suite d'un accident majeur. Une autre orientation, plus facile d'un point de vue de l'ingénierie, consiste à multiplier les barrières. La double enceinte de confinement représente un pas dans cette direction. On a pensé aussi à enterrer les réacteurs, ce qui serait une façon à la fois de confiner les produits de fissions et d'absorber les énergies de déflagration. De la même façon que sont mis en œuvre des pièges à hydrogène, on a conçu des pièges chimiques à produits de fission (par exemple des molécules « chélatantes »), des filtres à sable, etc., qui peuvent limiter leur mobilité. Cette ingénierie chimique du confinement, laquelle pourrait s'inspirer de la chimie séparative du combustible, reste à développer plus avant, compte tenu de l'expérience accumulée au sujet des performances de ces équipements en cas d'accident grave.

3. Problèmes scientifiques et techniques rencontrés sur des installations nucléaires endommagées

Parmi les phénomènes physiques, chimiques, physicochimiques qu'il faudrait étudier et qui sont énumérés dans la première partie de cette note, certains ont fait l'objet de recherches approfondies dans d'autres contextes que celui qui nous occupe ici. Nous les signalons dans cette deuxième partie.

3.1. Identifier les molécules contenant les noyaux délictueux et les « vecteurs » qui les propulsent

Pouvons-nous identifier les noyaux radioactifs ayant été impliqués dans des phénomènes induits au cours des accidents et incidents observés depuis les débuts de ces réalisations industrielles ? En particulier, pour les PF, nous retrouvons toujours les isotopes 137 et 134 du césium 137, les isotopes 131 et 129 de l'iode 131, l'isotope 90 du strontium, l'isotope 133 du xénon.⁵²

L'énergie chimique due à certaines réactions chimiques⁵³ advenant dans les réacteurs nucléaires à hautes températures, comme la décomposition de l'eau donnant de l'hydrogène, lui-même entraînant des réactions chimiques explosives, peut projeter hors de la centrale EN certains des PF ou des actinides cités du fait de leurs propriétés physicochimiques. Il en est ainsi pour le césium, l'iode, le strontium, parce qu'ils forment des composés volatils.⁵⁴ Ces molécules se dispersent

⁴⁶ Il s'agit des actinides obtenus par captures de neutrons par les noyaux fissiles de la réaction en chaîne dans le combustible ou par désintégration de ces actinides dits « mineurs » et des produits de fission.

⁴⁷ Voir l'annexe D et les références [22,31].

⁴⁸ Un fluide ayant une très petite section efficace pour les captures de neutron. Un exemple en est l'hélium.

⁴⁹ Le processus dit de surgénération est appelé *breeding* dans les publications en langue anglaise (voir [47,50]).

⁵⁰ Observons qu'il est possible, sur le seul plan de l'économie des neutrons, d'obtenir une surgénération de l'²³³U dans le domaine des neutrons thermiques (voir [35]).

⁵¹ Dans le cas où on souhaiterait utiliser le thorium comme matériau fertile par les réactions nucléaires $^{232}\text{Th} + \text{neutron} \rightarrow ^{233}\text{Pa} \rightarrow ^{233}\text{U}$, un soutirage continu du fluide combustible ou d'un fluide fertile, si celui-ci est séparé du fluide combustible, ne soutirerait pas d'²³³U, mais du ²³³Pa à cause de sa demi-vie longue. Il faudrait ensuite fixer une période d'attente pour en extraire chimiquement l'uranium (dont l'²³³U), outre la période d'attente due aux autres désintégrations. Faudrait-il extraire le ²³³Pa et attendre sa désintégration en ²³³U ? Devrait-on considérer ce ²³³Pa comme une source d'²³³U pur, donc comme un obstacle pour le contrôle de la prolifération ? (Voir les propriétés du protactinium 233 en annexe B).

⁵² Voir les références [21,4,10,11,19,5,7,20,9,13–15,17,22].

⁵³ Voir les références [13,18].

⁵⁴ Le combustible situé dans un crayon d'un assemblage combustible devient, à la suite des fissions, un mélange intime des noyaux fissiles des corps ayant capturé des neutrons (par exemple, les isotopes du plutonium, de l'américium, du neptunium, de l'uranium, les produits de fission et leurs descendants, les isotopes des matériaux de structure, le tritium, etc.).

dans l'atmosphère. De là, elles diffusent au fil des vents, tombent sur les sols, les eaux, la végétation, les habitations et les bâtiments publics, les voies de communications, etc. Ainsi dispersées, ces molécules contenant des noyaux radioactifs ne peuvent plus être captées et retenues.

En ce qui concerne l'énergie nucléaire, la raison pour laquelle l'accident de Fukushima n'a pas rejeté d'actinides, uranium ou plutonium, tient à ce que l'énergie résiduelle a fait fondre des parties du cœur, i) libérant les PF gazeux et les PF volatils et ii) décomposant l'eau en hydrogène et en oxygène par réaction chimique avec les métaux présents (le zirconium de la gaine). C'est ensuite la réaction chimique explosive de l'hydrogène qui a dispersé les gaz. Au contraire, dans l'accident de Tchernobyl, c'est l'augmentation de la réactivité⁵⁵ qui a déclenché le passage de la réaction nucléaire en chaîne stationnaire à une réaction nucléaire en chaîne explosive. C'est la célérité de cette réaction nucléaire qui a dispersé presque tout le cœur dans les trois dimensions, accélérant le combustible métal et tous les PF. Dans le cas des solutions B, C et D du § 1 de la première partie, où l'on utilise un combustible liquide, le coefficient de vide et de température de la réactivité⁵⁶ est fortement négatif, ce qui étouffe rapidement⁵⁷ toute réaction nucléaire en chaîne.

3.2. Séparation chimique des molécules

Pouvons-nous séparer, par voie chimique, de la source d'énergie qui pourrait les disperser (donc du combustible nucléaire et des sources d'énergie chimiques), les molécules contenant i) les descendants indésirables des noyaux produits par les fissions et ii) les éventuels actinides indésirables ?

Il existe en France une vaste expérience de ces opérations dites de retraitement. La séparation chimique⁵⁸ contrôlée, en régime de fonctionnement nominal, dans le combustible irradié sorti du réacteur, de produits de fission, d'actinides mineurs, est aujourd'hui réalisée,⁵⁹ avec des procédés chimiques et physicochimiques variés et des équipements de génie chimique performants pour les besoins du retraitement. Les catégories d'espèces chimiques distinguées⁶⁰ ont des propriétés très diverses. Parmi celles-ci, on peut distinguer les radionucléides⁶¹ posant problème⁶² tant par leurs propriétés chimiques présentes que par leur devenir après leur séparation chimique.⁶³ Il s'agit de leur demi-vie vis-à-vis des désintégrations successives, de la nature du rayonnement nucléaire émis, de leur puissance résiduelle, de leurs propriétés chimiques et biologiques dans l'environnement de la centrale EN. Chaque espèce devient ainsi un déchet particulier. Pour chacune, ainsi distinguée,⁶⁴ quel est le meilleur moyen de l'immobiliser, pour ce qui est du séjour sur le site de la centrale EN, par un procédé chimique et physique ? Cela peut-il être effectué par lot (dit *batch*), ou en continu sur le site de la centrale ?

Le seul procédé de séparation chimique des PF et des actinides à la haute température du combustible est actuellement le procédé pyrochimique.⁶⁵ Séparer chimiquement et complètement les noyaux de ²³³Pa est-il possible ? Cela pourrait-il entraîner la conséquence que leur descendant, le ²³³U, s'accumulant d'une manière suffisamment pure de tout produit parasite, puisse permettre la réalisation d'un engin nucléaire ?⁶⁶

3.3. Séparation temporelle des radioéléments

Un des graves inconvénients des radioéléments contenus dans les réacteurs nucléaires et rejetés en cas d'accident majeur est que leurs demi-vies s'étalent entre quelques jours (cas d'¹³¹I) et quelques centaines de milliers d'années (cas d'¹²⁹I).⁶⁷ Il est la plupart du temps impossible de séparer, afin de s'en défendre, les radionucléides dont l'ordre de grandeur de la demi-vie engendre des inconvénients pour les humains et pour l'environnement.

⁵⁵ Tant par les barres de contrôle que par le coefficient positif de température et du vide de la réactivité.

⁵⁶ Voir [24,35,52–54].

⁵⁷ La constante de temps de l'augmentation du flux de neutrons et donc de la puissance thermique générée par le freinage des rayons gammas dans les matériaux du cœur est commandée par les émissions de neutrons retardés, soit en moyenne sur leurs cinq groupes d'énergie cinétique (voir l'annexe D et les références [22,35,55–58]) environ 10 s. L'évacuation de la chaleur du cœur par le fluide caloporteur est commandée par la vitesse de circulation de ce dernier, soit environ 6 m/s. La constante de temps de ce phénomène est donc de l'ordre de la seconde. Ceci permet à la contre-réaction (*feed back*) de réactivité de faire chuter en temps utile la puissance thermique du cœur.

⁵⁸ Voir l'annexe D et les références [59,60,43,61,23,62,63] et [24].

⁵⁹ Voir la référence [62] et l'annexe D.

⁶⁰ Métalloïdes halogènes monovalents, métalloïdes bivalents, métalloïdes trivalents, métaux et métalloïdes trivalents, mine du palladium, métaux alcalins, métaux alcalino-terreux, mine du manganèse, gaz rares, homologues des terres rares, tritium, actinides, etc.

⁶¹ Voir l'annexe A § 1, § 2 et § 3.

⁶² Voir l'annexe A § 1,1 § 2, 1 § 3 et l'annexe D § 1 et § 2.

⁶³ De telles séparations chimiques ont été expérimentées dans les années 1960–1970 à l'ORNL. Voir l'annexe D et la référence [64].

⁶⁴ Il y a aussi des cas particuliers (1) de nature chimique comme celui du ruthénium 106 (demi-vie β de 373,59 j), produit de fission dont la chimie séparative ne permet pas les opérations de séparation auxquelles on a recours pour les autres PF, (2) d'activité biologique (comme les émetteurs alpha, ou les iodes), (3) de phase mobile (comme le césium) et (4) de forte radioactivité, comme le tritium et l'eau « tritiée ».

⁶⁵ Voir l'annexe D et les références [60,61] et [65].

⁶⁶ Tous les procédés de fabrication de l'uranium 233 comportent au moins des traces d'isotopes non fissiles, comme l'²³²U et donc de sa chaîne de désintégrations α et β citée ci-dessus. De plus, on rappellera que l'²³²U est émetteur de neutrons par fission spontanée : demi-vie : $8 \cdot 10^{13}$ ans contre $1,3 \cdot 10^{11}$ ans pour le ²⁴⁰Pu, soit un facteur d'environ 600 fois plus faible par rapport au taux de FS du Pu 240. Voir la référence [66].

⁶⁷ Dans le projet actuel de réacteur à combustible fluide GEN IV, environ 0,22 % du fluide combustible, soit 40 litres, est prélevé chaque jour du cœur (soit 18 m^3) pour en extraire les produits de fission et autres noyaux parasites. Cela veut dire que le cycle du combustible, pour ce qui est du renouvellement du combustible, est de 450 jours (voir les références [31,39,41,43,59,67]).

Encadré 1. Les constantes de temps des divers phénomènes sont :

- 1) les demi-vies des désintégrations des noyaux combustibles,
- 2) les demi-vies des désintégrations des actinides (dits mineurs) radioactifs que sont leurs dérivés ou/et descendants,
- 3) les demi-vies par désintégration des produits de fission et de leurs descendants,
- 4) les durées moyennes de disparition des noyaux combustibles par absorption de neutrons (capture et fission),
- 5) les durées moyennes de disparition des noyaux d'actinides mineurs par absorption de neutron (capture et fission),
- 6) les durées moyennes de disparition des noyaux de produits de fission⁶⁸ par absorption de neutrons (capture),⁶⁹
- 7) la durée de la traversée du cœur par le fluide caloporteur⁷⁰ et la durée du transit de ce caloporteur entre l'échangeur de chaleur et le cœur pour évacuer la puissance thermique du thermique du cœur,
- 8) la durée de séjour dans le cœur du combustible et donc la durée du cycle du fluide combustible pour en tirer le maximum d'énergie nucléaire,
- 9) la durée de séjour dans le cœur des actinides mineurs pour en détruire, par absorption de neutron, le plus possible, tout en profitant de l'apport de leurs fissions à l'économie des neutrons,
- 10) la durée de séjour dans le cœur des produits de fission pour en laisser le moins possible dans celui-ci,
- 11) le délai de refroidissement du fluide combustible usé pour en extraire, par un procédé chimique,⁷¹ les produits de fission et du combustible frais.

Ces constantes de temps se comptent en secondes pour les temps de transit du caloporteur, en années pour les temps de disparition par capture ou fission des noyaux combustibles, d'actinides et de produits de fission,⁷² en dizaines d'années pour la désintégration des produits de fission, en centaines d'années pour la désintégration des actinides mineurs (2) et en milliers d'années pour la désintégration des noyaux combustibles.

Afin de rendre compatibles tant de durées différentes, il faut séparer :

- un circuit pour la fonction de combustion nucléaire dans le cœur,
- un taux d'introduction du combustible dans le cœur très lent, de l'ordre de l'année,
- un circuit pour l'évacuation de la puissance thermique très rapide, de l'ordre de la minute.

Les longues « demi-vies » moyennes de certains des corps radioactifs ainsi dispersés sont les inconvénients les plus durables, en ce qui concerne les habitats humains actuels et l'environnement.

3.4. Gestion des produits de fission, évacuation de l'énergie,⁷³ conséquences de ces concepts de réacteurs

Il faut évacuer l'énergie que ces radionucléides dégagent eux-mêmes. Une fois séparés, ces produits de fission radioactifs doivent être continuellement refroidis. L'ordre de grandeur de la puissance thermique induite par les désintégrations dépend évidemment de la demi-vie du noyau et de l'énergie des particules créés. Pour la moyenne des PF, durant la première année de leur création par fission, elle est de l'ordre du W/g.⁷⁴

Les concepts de réacteurs présentés dans cette note présentent plusieurs caractéristiques qui méritent qu'on s'y intéresse, ce qui ne signifie pas pour autant qu'ils aient un degré de maturité suffisant pour être mis en concurrence avec les réacteurs plus classiques (REP et RNR sodium). Ces caractéristiques concernent le combustible aussi bien que le fluide caloporteur.

En ce qui concerne le combustible et la gestion des produits de fission, on peut signaler les points suivants :

- ce soutirage des PF améliore l'économie des neutrons, puisqu'on supprime les captures parasites et les radionucléides. Le contrôle de la réaction en chaîne dans le cœur du réacteur est obtenu par le taux d'injection du combustible neuf. Le

⁶⁸ Pour les produits de fission que l'étude de l'aval du cycle de combustible signale comme devant être détruit, ces durées sont : sélénium 79 : 60 ans ; zirconium 93 : 48 ans ; technétium 99 : 9 ans ; palladium 107 : 5 ans ; étain 126 : 700 ans ; iode 129 : 15 ans ; césium 135 : 25 ans ; césium 137 : 240 ans (voir les annexes B et C et les références [68] et [52]).

⁶⁹ La valeur précise de ces caractéristiques nucléaires des noyaux intervenant dans la physique de ces réacteurs sont données dans les annexes A, C et D.

⁷⁰ La durée de transit est évidemment fonction de : i) la vitesse de circulation du fluide caloporteur – dans les REP actuels, la vitesse du caloporteur est d'environ 6 m/s ; dans le cas de l'hélium, elle serait d'environ 75 m/s –, ii) la capacité calorifique du fluide, laquelle dépend de sa pression. La grandeur de l'équipement en tuyauteries, pompes, vannes, purgeurs, calorifique du fluide, etc. peut aussi être estimée. En prenant comme base 1 l'équipement actuel des REP, le sodium est à 2–3, l'hélium à 12, et le sel à 0,5.

⁷¹ Les critères à respecter pour user d'un procédé chimique sont une puissance résiduelle inférieure à 1 W/g, et la source de neutrons bornée.

⁷² Ces constantes de temps sont données pour un spectre de réacteur à neutrons rapides et un flux de neutrons de $5 \cdot 10^{15}$ neutrons/cm² s.

⁷³ Voir les annexes B, C et D.

⁷⁴ Voir le document 57, page 244 de la référence [21].

coefficient de la réactivité est donc toujours favorable ; il en résulte que le flux de neutrons et la puissance thermique sont stables ;

- dans le cas C, il devient possible de placer la surface matérielle formant frontière entre le milieu radioactif et le milieu propre sans inclure le circuit du fluide caloporteur⁷⁵ au générateur de travail thermodynamique, soit un élément de cette frontière de la radioactivité. Des dispositifs analogues sont possibles dans les concepts B et D ;
- les espèces chimiques incluant les atomes des noyaux combustibles (²³⁵U, ²³⁹Pu, ²³³Pu, ²³³U, etc.) ou fertiles (²³⁸U, ²³²Th, etc.) doivent être liquides dans un domaine de température⁷⁶ sûr, ne posant pas de problème de corrosion,⁷⁷ stable⁷⁸ du point de vue physique, chimique et nucléaire, permettant un haut rendement thermodynamique,⁷⁹ à pression voisine de la pression atmosphérique, aux pertes de charges près, etc.

En ce qui concerne le fluide calorifique, on a un cahier des charges notablement différent de celui des réacteurs classiques. Pour le fluide caloporteur, le cahier des charges comporte, outre la stabilité de la phase fluide, du point de vue physique,⁸⁰ chimique et nucléaire, une haute capacité calorifique,⁸¹ etc.

Le concept B a été étudié et réalisé tant à l'ORNL [70–72] (avec le MSRE) qu'à l'INPG Grenoble [32,73,34].

Finalement, le fluide combustible peut comporter les éléments chimiques suivants : Li, Na, Rb, K, Be, Zr (voir page 20 de [74]).

Avec toutes ces conditions à respecter, les systèmes combustibles et/ou les caloporteurs basés sur les sels de fluor peuvent fonctionner dans une marge de température de 650 °C à 1000 °C. Outre les applications étudiées dans cette note, ils peuvent être considérés pour d'autres applications : refroidissement de la couverture (*blanket*) des futurs réacteurs à fusion, des réacteurs à neutrons rapides, des réacteurs de production chimique comme de ceux destinés à fabriquer de l'hydrogène. Parmi les autres problèmes physicochimiques, citons le devenir de certains actinides gênants,⁸² la préparation du combustible frais et le réglage de son introduction dans le cœur, la nature des composés chimiques du combustible, du fluide caloporteur, la mise au point de matériaux pour les circuits, les « actuateurs » pour actionner les procédés (pompes, vannes, mesures, filtres, purgeurs, etc.).

Enfin, pour revenir à la question initiale qui est celle du confinement des produits de fission, il convient de se demander où est placée la surface matérielle formant frontière entre le milieu radioactif et le milieu propre : l'échangeur de chaleur ? La conception de base choisie dans la présente note est que l'échangeur de chaleur entre le circuit du fluide caloporteur passant dans le cœur⁸³ et le circuit secondaire allant transférer la chaleur au générateur⁸⁴ de travail thermodynamique⁸⁵ soit un élément de cette frontière de la radioactivité.

⁷⁵ La conception de base choisie dans la présente note est que l'échangeur de chaleur entre le circuit du caloporteur (par exemple, en « sel ») passant dans le cœur (dit circuit primaire) et le circuit secondaire (par exemple, en « sel ») allant transférer la chaleur au générateur de travail thermodynamique soit un élément de cette frontière de la radioactivité.

⁷⁶ Parmi les sels considérés pour fluide caloporteur ou/et fluide portant du combustible, citons LiF, NaF et KF. Leurs températures d'ébullition (changement de phase) sont respectivement de : 845 °C, 992 °C et 856 °C. Par un mélange convenable de ces sels, le changement de phase ci-dessus est ramené à 454 °C.

⁷⁷ Les sels de fluor dissolvent les revêtements protecteurs des métaux comme les oxydes et les revêtements usuels des aciers au chrome. Des alliages de nickel ont été développés avec succès (les Hastelloy [65]).

⁷⁸ Être plus stable qu'une autre espèce chimique, c'est, quand on considère des états stationnaires, avoir une énergie libre plus petite que celle des autres espèces en contact, soit une énergie libre très négative. L'énergie libre du sel LiF est de -225 kcal/°C. L'énergie libre de CrF₂ est de -135 kcal/°C. Ce fluorure va donc précipiter le chrome inclus dans un acier inox.

⁷⁹ Le processus le plus assuré dans l'industrie pour transformer la chaleur en électricité est, depuis de nombreuses décennies, la turbine à vapeur d'eau, couplée à un alternateur. La température maximale a été de 550 °C, permettant un rendement de 45%. Récemment, la turbine à gaz utilisant le cycle de Brayton a atteint le niveau industriel, permettant de plus hautes températures (GE Power Systems MS700 1 FB) et donc de plus hauts rendements. Le fluide actionnant la turbine peut être de l'azote ou de l'hélium.

⁸⁰ Les rendements du cycle de Brayton sont, pour des températures de la source chaude de 700, 800 et 1000 °C, de 48%, 51% et 56%, respectivement. Rappelons que le rendement des REP est d'environ 33%, avec une température de source chaude d'environ 350 °C.

⁸¹ La capacité calorifique par unité de volume des divers sels utilisés ici est du même ordre de grandeur que celle de l'eau à 7,5 MPa, soit 4 fois le sodium, 2 fois le plomb, 20 fois l'hélium (voir [69]).

⁸² Le corps lourd le plus gênant est un couple d'actinide : le père est le ²⁴¹Pu, qu'on ne peut pas séparer du reste du Pu par un traitement chimique. Il est donc partout où il y a du Pu, tant dans le cœur que dans les circuits de combustible et dans le Pu extrait par voie chimique de l'ensemble du combustible. Sa demi-vie β de 14,35 ans en fait le plus radioactif des actinides présents dans le combustible d'un réacteur nucléaire basé sur le ²³⁵U, le ²³⁸U et le ²³⁹Pu. Sa très faible radioactivité α (0,0024%) présente des inconvénients signalés par une dose efficace de $2,78 \cdot 10^{-6}$ Sv/Bq. Il en résulte que, dans tout combustible contenant du Pu, il y a de l'américium 241. Celui-ci est un émetteur α . Sa demi-vie de 432,2 années le rend donc $24110 \text{ ans} / 432 \text{ ans} = 56$ fois plus radioactif, sans compter le rapport des énergies de désintégration (les β et les γ = gammas). Sa section efficace d'absorption est de 2 barn pour la capture et de 0,6 barn pour la fission [68]. Sa vie moyenne, pour ce qui est de l'influence du flux de neutron rapides, est d'environ 4 mois. Ainsi, quand on retire le combustible d'un cœur de réacteur, l'²⁴¹Am qu'on y trouve a été formé depuis moins de quatre mois. Le reste a été, soit fissionné, soit, en capturant un neutron, est devenu de l'²⁴²Am (demi-vie β : 16 h, 82,7% subissant une décroissance bêta et 17,3% se désintégrant en mode « EC » – *Electronic Capture*) ou de l'^{242m}Am (demi-vie β , 141 ans). Nous ne citons pas ici les isotopes du curium, car il n'est pas envisageable de les traiter à cause de la production de neutrons par fission spontanée.

⁸³ Dit « circuit primaire ».

⁸⁴ Qui est donc sous pression d'un cycle de Brayton.

⁸⁵ Voir la référence [75].

4. Quelques questions ouvertes

Pour aller vers un contrôle des noyaux radioactifs en cas d'accident grave, de leur dispersion et de leur diffusion, deux types de stratégies sont possibles : ou bien les confiner de façon de plus en plus efficace (ce qui est la stratégie actuelle, qui augmente constamment les exigences de sûreté), ou bien s'assurer de la séparation physique des produits dont on souhaite éviter la dispersion d'avec les causes de dispersion possible. La première stratégie est indubitablement celle qui s'impose à court terme et qui peut déjà être mise en œuvre ; la seconde mérite d'être explorée dans une perspective à beaucoup plus long terme et conduit à considérer des concepts de réacteurs « en rupture ».

Nous avons constaté qu'il est possible d'identifier les recherches à effectuer pour aller vers un contrôle des rejets accidentels de corps radioactifs lors d'un éventuel accident majeur. Il ne s'agit pas de détruire ces substances radioactives, mais de les trier, de les entreposer et de les stocker définitivement. Nous rencontrons alors un problème déjà traité, pour d'autres substances radioactives dites « déchets ». ⁸⁶ Il faut donc étudier ces processus ensemble. Dans cette troisième partie, nous passons en revue les problèmes « duaux » de ce type.

- Que faire de ces PF triés et séparés ? ⁸⁷ Les procédés actuels de vitrification ⁸⁸ élaborés pour le stockage souterrain des déchets radioactifs sont maintenant adaptés aux propriétés des substances à confiner et permettront de traiter ces problèmes.
- En ce qui concerne les actinides radioactifs, faut-il :
 - conserver l'²⁴¹Am dans le combustible, et donc le laisser absorber un neutron, ce qui le conduit, soit i) à être fissionné, soit ii) à capturer un neutron, donnant ainsi l'²⁴²Am puis le ²⁴²Cm ⁸⁹ et le ²⁴⁴Cm. Dans ce cas, comment favoriser sa fission ? Parmi les variables de contrôle de cette réaction nucléaire, nous avons tant l'énergie cinétique des neutrons que la valeur de ce flux de neutron ;
 - ou bien le séparer et le stocker ?
 - ou bien le laisser toujours dans le combustible, afin qu'il soit détruit par absorption ⁹⁰ (capture ou fission) de neutron. Dans l'état actuel des connaissances, ce radionucléide ²⁴¹Am conjugue tous les désavantages. La première alternative paraît préférable afin de détruire, autant que faire se peut, cet actinide dans le cœur.
- Le circuit sortant du combustible doit-il être permanent ou par lot (*batch*) ? Quel est son ordre de grandeur optimal en kg/j ? Autrement dit, quelle est la durée du séjour d'un noyau de ²³⁵U ou de ²³⁹Pu ?
- Quelle doit être la nature du circuit faisant entrer le combustible ? Le circuit du combustible entrant ne comporte pas de PF. On diminue donc la variation de réactivité sur un temps long vis-à-vis de la durée d'irradiation d'un noyau combustible donné.
- Quelle doit être la nature du fluide caloporteur ? Le cahier des charges du caloporteur ne comporterait pas de sujet de radioactivité, ni de chimie, si on choisissait comme atome(s) de ce fluide caloporteur un (ou des) atome(s) inertes par rapport tant aux réactions chimiques (par exemple, les gaz rares) qu'aux réactions nucléaires (par exemple, les noyaux « magiques », l'hélium, le plomb 208, etc.).

Encadré 2. Si on pouvait concrétiser les atouts des quatre concepts (notés A, B, C, D), nous pourrions constater, par exemple pour le C, les avantages ⁹¹ suivants :

- le cahier des charges serait réduit à des termes séparés les uns des autres par grande fonction, chacune des fonctions ayant ses propres équipements, distincts et indépendants ;
- une partie de la première barrière de la radioactivité serait dans le cœur. Elle inclurait les parois du circuit ⁹² de combustible (soumises à la température, mais sans pression hors du cœur), tous les équipements du circuit du combustible, pompes, vannes, purgeurs, instrumentation de mesure, soumis à l'irradiation gamma, mais sans l'irradiation par les neutrons ;

⁸⁶ Voir [46,47,51,57].

⁸⁷ Voir les annexes A, B, C et D.

⁸⁸ Voir [27].

⁸⁹ Le ²⁴²Cm a une demi-vie α de 162,8 jours. La proportion de désintégration par fission spontanée est de $6,37 \cdot 10^{-6}$. Les énergies des α émis vont de 5145 keV à 6112 keV, donc très énergiques. Les gammas vont de 44 keV à 1228 keV.

⁹⁰ La durée de vie moyenne d'un noyau d'actinide ayant une section efficace d'absorption d'un neutron de 5 barn dans un spectre de neutrons rapides (voir les valeurs des sections efficaces d'absorption de neutron dans la table 1, page 1001 de [68]. (1 barn = 10^{-24} cm²) dans un flux de neutrons rapides de $4 \cdot 10^{15}$ neutrons/cm² seconde, est d'environ 2 mois.

⁹¹ Des avantages analogues sont au bénéfice de B et de D.

⁹² Il s'agit de tout le circuit du combustible, hors du cœur, pompes, vannes, purgeurs, sans l'irradiation par neutrons, mais soumis à l'irradiation gamma du combustible.

- le chargement et le déchargement du combustible seraient effectués sans arrêter l'exploitation ;
- la compensation de la baisse de réactivité lente due à l'accumulation des PF et à la disparition des noyaux fissiles serait relativement minime comparée au cas des REP.⁹³ La mise en place lors d'un début d'irradiation d'un supplément de réactivité pour compenser l'absorption de neutrons par les PF et des actinides mineurs pourrait être évitée ;
- à l'extérieur du cœur, les noyaux radioactifs du combustible et des PF irradieraient les circuits combustibles et les équipements. Ce phénomène entraînerait des dégagements de chaleur par absorption des rayons gammas dans les matériaux. Il faudrait donc évacuer cette chaleur, qu'on peut qualifier de résiduelle ;
- le circuit de transfert de la chaleur et ses équipements (pompes, vannes, purgeur, instrumentation, etc.) pourrait être exempt de radioactivité en régime nominal. Toutefois, les risques de contamination issue du cœur devraient pouvoir être contrôlés par une conception robuste ;
- l'échangeur de chaleur ne comporterait pas de radioactivité, ni d'activité chimique et pourrait donc être remplacé facilement ;
- comme nous l'avons dit, il faut souligner qu'en cas d'augmentation de la puissance thermique du cœur, localement ou sur une partie de celui-ci, le combustible ainsi chauffé se dilaterait immédiatement et en sortirait. Il en résulterait une baisse immédiate de la réactivité du cœur, ce qui diminuerait la puissance nucléaire dégagée par la réaction en chaîne en une durée contrôlée par la période de cette dernière et celles des émissions de neutrons retardés.

5. Conclusions

La présente note a montré qu'il existe, au moins du point de vue conceptuel, d'autres technologies pour la réaction en chaîne des fissions que celles développées à ce jour, basées sur la construction mécanique des solides. Avec ces autres concepts physiques, chimiques et physicochimiques, on pourrait contrôler la quantité de produits de fission présente dans le cœur d'un réacteur ainsi que celle des actinides mineurs si ces substances étaient liquides. On pourrait séparer le principal agent de transport de la radioactivité dans les accidents vécus depuis le début de l'électronucléaire (c'est-à-dire les produits de fission) des noyaux transmettant la réaction en chaîne dégageant l'énergie de fission. Dans le principe, en retirant au fur et à mesure les produits de fission et en séparant les substances contenant les noyaux radioactifs considérés comme potentiellement capables de dispersion dans un accident majeur (par exemple, le césium, l'iode, le strontium, le tritium, etc.), tout en évacuant la puissance thermique qu'ils dégagent, de la cause thermodynamique externe à ces corps (température, pression, puissance thermique, solubilité, etc.) de leur possible dispersion, on pourrait réduire drastiquement la radioactivité susceptible d'être rejetée par une centrale électronucléaire en cas d'accident majeur. Plus encore, on pourrait alléger et simplifier le cahier des charges de l'installation électronucléaire⁹⁴ en séparant physiquement la fonction nucléaire énergétique et la fonction thermodynamique du fluide caloporteur évacuant la chaleur.

La dispersion à grande distance des corps radioactifs⁹⁵ par l'intermédiaire de nuages, d'aérosols, les dépôts de ces corps sur les sols, la végétation, les eaux de surface⁹⁶ pourraient être évités. Toutes les conséquences d'éventuels accidents majeurs, comme il en survient dans toutes les grandes technologies avancées (aviation, transport maritime, transport routier, usine chimique, chemin de fer, raffineries, espace, etc.) seraient localisées, comme elles le sont dans ces grands équipements.

Si le concept est ouvert, il ne faut pas pour autant se dissimuler les difficultés que rencontrerait sa mise en œuvre sous forme d'une technologie opérationnelle et industriellement viable. Le problème scientifique le plus important, avec les connaissances d'aujourd'hui, est celui de l'interaction entre i) le fluide combustible, le fluide caloporteur, ii) les matériaux de leurs circuits et iii) les équipements mobiles (pompes, vannes, purgeurs, etc.).

Dès aujourd'hui, il apparaît qu'une plage de fonctionnement existe pour ce phénomène, satisfaisant à tous les critères signalés ci-dessus comme « locaux » et aux critères de sécurité les plus exigeants. Les recherches à amplifier sont à très long terme, au-delà de ce qu'on appelle actuellement les quatre générations du nucléaire civil. Ces recherches de faisabilité auraient l'avantage d'ouvrir également la voie physicochimique vers les hautes températures (au-dessus de 700°C) et donc la production chimique des combustibles non carbonés comme l'hydrogène.⁹⁷

⁹³ Elle ne nécessiterait pas d'ajout d'absorbant de neutrons, consommable, comme c'est le cas dans les REP.

⁹⁴ Ces divers circuits sont : le circuit du combustible, le circuit du caloporteur, le circuit de contrôle-commande du réacteur, le circuit de chargement du combustible, le circuit de déchargement du combustible.

⁹⁵ Comme les gaz de fission, les composés volatils des PF.

⁹⁶ Eaux de surface : Il s'agit des eaux continentales et aussi des eaux maritimes.

⁹⁷ Voir [74,76].

Annexe A. Les rejets de substances radioactives lors des accidents majeurs du passé. Les connaissances qu'on en a tirées concernant les devenir des divers radionucléides lors de tels événements

Pour contrôler les rejets de substances radioactives lors d'un éventuel accident majeur, il faut étudier en détail le déroulement des phénomènes. L'objet de cette [annexe A](#) est d'en exposer ces détails.

On a recherché, lors des accidents majeurs de réacteurs des centrales électronucléaires, en ce qui concerne la dispersion des corps radioactifs,⁹⁸ à déterminer i) le destin physicochimique des composés des actinides⁹⁹ (ceux-ci étaient issus des réactions nucléaires avec l'uranium et ses descendants) et ii) la diffusion des produits de fission. Ces travaux ont été particulièrement suivis durant plusieurs décennies, ce qui a permis de comprendre les mécanismes de dispersion.

A.1. L'accident de Tchernobyl

Lors de l'accident majeur de Tchernobyl,¹⁰⁰ la teneur maximale de contamination par les isotopes du Pu a été de quelques dizaines de kBq/m², soit 0,5 Ci/km². La surface contaminée par ce Pu avait environ 10 km de longueur.

Les régions de radioactivité maximale étaient celles sur lesquelles s'était faite la dispersion du césium 137. Les radioactivités maximales de ce radionucléide, descendant d'un produit de fission, ont été d'environ 100 à 2000 kBq/m² en Ukraine. Des dépôts de ce ¹³⁷Cs ont aussi été observés en Finlande,^{101,102,103} en Suède, en Norvège, en Autriche, en Belarus et en Russie. D'après les études de l'AIEA [5,7–9] et des services nationaux concernés, ces dépôts n'ont pas eu d'effets sur la santé physique dans les régions touchées de ces pays.

A.2. L'accident de Three Mile Island

Lors de l'accident majeur de la centrale EN de Three Mile Island,¹⁰⁴ il n'y a pas eu de rejet à l'extérieur de l'enceinte de confinement contrôlé grâce à sa bonne résistance. Toutefois, les substances radioactives ont envahi l'intérieur de cette enceinte de confinement. Il fallait trouver un moyen de l'en évacuer. Les autorités de sûreté ont choisi de relâcher lentement ce contenu de gaz à l'extérieur de l'enceinte, donc dans l'atmosphère, en veillant à ce que la dose efficace de ce rayonnement soit toujours inférieure aux normes sanitaires pour le public.

A.3. L'accident de Fukushima

Lors de l'accident majeur de la centrale EN de Fukushima,¹⁰⁵ ce sont des rejets de ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ¹³¹I, ⁹⁰Sr et ¹³³Xe qui ont été observés tant sur et dans les sols, les feuillages, les bâtiments, les eaux contaminées, les mers et les nuages. À notre connaissance, il n'y a pas eu de mesure publiée d'une radioactivité supérieure à la radioactivité naturelle provenant des actinides.

A.4. L'accident de Windscale

L'accident majeur de Windscale, en Grande-Bretagne, dans le Cumberland,¹⁰⁶ a eu lieu en 1957, donc il y a 56 ans. Des études d'épidémiologie ont été effectuées et se sont terminées en 2010. Cette durée après l'accident a été choisie pour que des effets à long terme puissent être mesurables. La conclusion en a été que, sur une population-échantillon d'un grand nombre de personnes (dite cohorte), 240 cas de cancer de la thyroïde ont été jugés comme supplémentaires et dus à

⁹⁸ Nous ne comptons pas, dans les rejets de noyaux radioactifs, ceux à vie très courte, qui n'ont d'action, ni sur les travailleurs, ni sur les populations, ni sur l'environnement comme l'iode 132 (demi-vie β : 2 h 30), le tellure 132 (demi-vie β : 76,3 h), le tellure 129 m (demi-vie β : 33,6 j), le césium 136 (demi-vie β : 13,16 j), etc.

⁹⁹ Voir [22,24,87].

¹⁰⁰ Tchernobyl (date : 1986 : voir les références [4–7,9]).

¹⁰¹ En Finlande, le maximum de la radioactivité de ¹³⁷Cs déposé a été de 100 kBq/m² (demi-vie β : 30,07 ans). Ce ¹³⁷Cs émet des gammas de 283 à 661 keV, et des électrons β de 513 à 1175 keV. Le ¹³⁴Cs atteignait la moitié de cette radioactivité. Ce césium 134 a une demi-vie β de 2,06 ans. Il émet des gammas de 232 keV à 1365 keV et des électrons β de 88 keV à 1454 keV. La radioactivité β du strontium 90 et des autres radionucléides était minime (« *minor amounts of Sr-90 and other nuclides* »). Ce ⁹⁰Sr a une demi-vie β de 28,79 ans. Voir [9].

¹⁰² Voir [9] pour une carte des radioactivités déposées dans toute l'Europe.

¹⁰³ Pour le quart sud-est de la France, la radioactivité estimée était de 2 à 10 kBq/m² comme pour les 3/4 des côtes de l'Atlantique et de la mer du Nord. Pour le reste du pays, la radioactivité estimée était de moins de 2 kBq/m² [9].

¹⁰⁴ **Three Mile Island** : États-Unis, date : 1979 : voir les références [10,77,78,120]. Dans un combustible usé des réacteurs à eau des centrales EN américaines, pour les durées d'irradiations nominales, la composition de ce combustible usé est : uranium, 95,6% en masse (ceci se partage en 98,5% d'²³⁸U, 1% d'²³⁵U, 0,5% d'²³⁶U, 0,02% d'²³⁴U, 0,001% d'²³⁷U, responsable majeur de la radioactivité de l'uranium séparé et des traces d'²³²U et ²³³U); 0,9% de plutonium; 0,1% d'actinides mineurs; 2,9% de produits de fission stables; 0,1% de produits de fission à vie longue, donc pas sensibles dans les rejets accidentels; 0,3% de césium et de strontium; 0,1% d'iode. Ce sont ces deux dernières catégories de substances radioactives qui sont responsables des préjudices causés aux populations car, pendant une durée des activités humaines de l'ordre de grandeur de leur demi-vie, elles portent la plus grande partie de la radioactivité β et γ dispersée (voir annexe E, pages 515–516, encadré 2, page 492, page 504 de [22]) et document 60, page 247 de [21].

¹⁰⁵ **Fukushima** : Japon, date : 2011 : voir les références [11,13–15,79,16–18,78,121,122].

¹⁰⁶ **Winscale** : Grande-Bretagne, date : 1957, voir les références [19,20].

l'isotope 131 de l'iode, tombé dans les herbages sur une surface d'environ 500 km², puis ingéré par les vaches, passé dans le lait et ingurgité par des personnes.

A.5. Comparaisons entre les rejets de substances radioactives lors de ces quatre accidents majeurs

Les rejets de l'accident de Fukushima, comparés à ceux de Tchernobyl, ont été : ¹³¹I,¹⁰⁷ 130 000 TBq¹⁰⁸ contre 1 760 000 TBq à Tchernobyl ; ¹³⁷Cs : 35 000 TBq contre 79 500 TBq ; ¹³³Xe : 17 000 000 TBq contre 6 500 000 TBq pour l'accident de Tchernobyl. L'isotope 90 du strontium a été détecté loin de Tchernobyl, au niveau de 80 000 TBq, mais pas dans les autres accidents. Lors de son dépôt sur la surface des sols, il est emporté rapidement par les ruissellements, ce qui explique sa diminution rapide. Seul, à notre connaissance, l'accident de Tchernobyl a rejeté de l'uranium et du plutonium et, d'ailleurs, relativement peu : 6100 TBq. Mais sa dose efficace [80,86] est plus élevée d'un facteur 10⁴ que celle du Cs 137.

Jusqu'à maintenant, les études de l'IAEA n'ont pas signalé que les rejets mesurés de ce plutonium aient eu des effets sanitaires mesurables [121,122].¹⁰⁹

Pour l'accident de Tchernobyl, la carte des retombées des isotopes du plutonium¹¹⁰ est détaillée dans les références [5–7, 18,23,56].

On a vu que, lors de l'accident de Fukushima, les réactions nucléaires de fission en chaîne étaient arrêtées. C'est l'énergie thermique des désintégrations β et des γ émis par ces noyaux retombant depuis les niveaux excités vers le niveau fondamental, dont les rayonnements sont ralentis par la matière présente, dite énergie résiduelle, qui a élevé la température du combustible, faisant ainsi fondre la gaine, et les autres parties voisines du cœur i) libérant les PF gazeux et les PF volatils et ii) décomposant l'eau en hydrogène et en oxygène, par réaction chimique avec les métaux présents dont la gaine en zirconium. C'est ensuite la réaction chimique explosive de l'hydrogène qui a dispersé les gaz radioactifs. Au contraire, dans le cas de l'accident de Tchernobyl, c'est l'augmentation de réactivité, tant par les barres de contrôle que par le coefficient positif de la température et du vide, qui a déclenché le passage de la réaction en chaîne nucléaire stationnaire à une réaction en chaîne nucléaire explosive. C'est la célérité de cette réaction nucléaire qui a dispersé presque tout le cœur dans les trois dimensions, accélérant le combustible et les PF. Dans le cas des solutions B, C, D, à combustible liquide, nous avons vu que le coefficient de vide et de température de la réactivité serait fortement négatif, ce qui étoufferait rapidement toute réaction nucléaire en chaîne.

Enfin, l'étude expérimentale des rejets de PF lors de toutes sortes d'accidents d'un cœur de réacteur de puissance a été effectuée dans une installation simulant toutes les sortes de tels phénomènes. Le programme en est donné en [81] et les résultats en [82].

Une de nos conclusions est que ce sont des produits de fission (PF volatils ou gaz nobles) qui sont dispersés. Ils partent alors dans l'atmosphère, retombent sur les sols, la végétation, les bâtiments, puis y pénètrent, lixiviés par les eaux. Ils sont absorbés par le vivant et peuvent créer des désavantages significatifs. Il faudrait pouvoir les enlever du combustible qui, en lui cédant son énergie lors d'un accident majeur, les met en mouvement et les propulse hors du cœur du réacteur, puis de la cuve de combustible, puis de l'enceinte de sécurité, lui faisant traverser les « barrières ».

Encadré 3. Lors de l'accident de Windscale, les noyaux rejetés dans l'incendie étaient l'isotope 131 de l'iode, l'isotope 137 du césium et l'isotope 133 du xénon¹¹¹ (spin 3/2 + et demi-vie β : 5,25 j¹¹²).

¹⁰⁷ L'iode 131 a une demi-vie β de 8,02070 jours. Lors de sa désintégration β , il émet des rayons gammas ayant au plus, une énergie de 364 keV et des électrons dont l'énergie cinétique est au plus de 606 keV (81% d'abondance parmi les émissions d'électrons). La désintégration le conduit au xénon 131 excité, qui lui-même aboutit au niveau fondamental du xénon 131 en émettant un rayon gamma de 364 keV (abondance de 81%). Il constitue environ 3,1% des produits de fission par ses pères, le Sn 131 (demi-vie β : 50 s et 39 s), puis le Sb 131 (demi-vie β : 23 min). C'est cet isotope de l'iode qui serait jugé responsable de tous les éventuels futurs déclenchements de cancer de la thyroïde. Le mécanisme en est de provoquer des mutations génétiques dans le matériel génétique des cellules où le métabolisme le fait s'arrêter. La durée biologique de son action avant son élimination est de 120 à 138 jours. L'activité du ¹³¹I est de 4600 TBq, soit $1,24 \cdot 10^5$ Ci/g. Les chemins empruntés par l'¹³¹I pour pénétrer dans le corps humain, mais aussi les dans l'organisme des troupeaux de ruminants, la végétation, les herbivores, etc. sont l'ingestion, l'inhalation, les blessures, les déchirures, etc.

¹⁰⁸ Rappel : téra = 10¹².

¹⁰⁹ Voir [5–7,20].

¹¹⁰ La composition isotopique de ce plutonium est voisine de celle de fin d'irradiation d'un UOX dans les REP, soit : ²³⁸Pu, 3% ; ²³⁹Pu, 53% ; ²⁴⁰Pu, 24% ; ²⁴¹Pu, 12% ; ²⁴²Pu, 8%. Dans le cas d'un MOX, ces quantités seraient : 4%, 37%, 31%, 14%, 13% (voir pages 109–110 de [21]).

¹¹¹ Voir [19,20,83].

¹¹² Il se forme aussi dans la fission l'isotope 133m du xénon, qui est un isomère du noyau du ¹³³Xe, de spin 11/2 – de demi-vie β de 2,2 jours. La désintégration β du ¹³³Xe aboutit au ¹³³Cs, stable.

A.6. La physique des substances radioactives après l'arrêt de la réaction en chaîne. Les propriétés qui commandent l'éventuelle dispersion de certains d'entre eux

Du point de vue radioactivité, le document 58, page 245 de [21], montre que, pendant les dix premières années suivant l'arrêt de la réaction nucléaire en chaîne et donc de l'irradiation par les neutrons prompts des substances combustibles, la radioactivité des actinides est dominée par la désintégration (de type β) du ^{241}Pu , par un facteur 200. Le second isotope en matière de radioactivité est le ^{238}Pu . L' ^{241}Am ,¹¹³ d'abord, moins d'un millièème de celle du ^{241}Pu , mais en désintégration α . Il rattrape la radioactivité du ^{241}Pu en moins de 100 ans et se maintient comme le plus radioactif pendant plus de 1000 ans. La concentration isotopique de l'américium est ^{241}Am 64%, ^{242}Am ¹¹⁴ 36%. Le curium présente la palette isotopique suivante : ^{243}Cm 1%, ^{244}Cm ¹¹⁵ 86%. L'irradiation externe α n'entraîne pas de conséquences sanitaires. C'est l'ingestion et l'inhalation qui sont pathogènes.¹¹⁶

Observons que le mot plutonium¹¹⁷ désigne ses divers isotopes et leurs descendants. Ces isotopes radioactifs des actinides présents dans les combustibles du cœur sont : ^{240}Pu (demi-vie α : 6563 ans), ^{241}Pu (demi-vie β : 14,35 ans), ^{238}Pu (demi-vie α : 87,74 ans), ^{241}Am (demi-vie α : 432,2 ans), ^{242}Cm (demi-vie α : 162,94 jours), ^{244}Cm (demi-vie α : 18,10 ans), etc. Dans un combustible irradié pendant une durée de l'ordre de deux à trois ans comme dans les REP, la radioactivité des PF est prépondérante depuis la fin de l'irradiation du combustible considéré. Les actinides ne deviennent les plus radioactifs qu'à partir d'environ 200 ans, à cause de la montée de la radioactivité de l' ^{241}Am , conséquence de la radioactivité du ^{241}Pu (voir le document 60, page 247 de [21]).

Une fois les actinides¹¹⁸ rejetés dans un environnement hypothétique, il faut s'interroger sur leur devenir, donc sur les phénomènes qui conduisent à leur dispersion par divers mécanismes. Le degré d'oxydation joue un rôle essentiel. Il en est ainsi de l'uranium. U(IV) de UO_2 insoluble s'oxydera¹¹⁹ en U(VI) et pourra migrer avec les eaux superficielles de toutes natures, eaux de ruissellement, eaux de refroidissement, eaux de pluie, eaux des sols, etc. (voir le chapitre 9 de [23]). U(IV) pourra former des colloïdes ou se sorber sur les colloïdes naturels. Ceux-ci pourront alors migrer avec les diverses sources d'eaux, naturelles ou à usage technique (voir [89]). Il en est de même du plutonium provenant de PuO_2 . Pu(IV) est mobile dans l'environnement. C'est dire l'importance de poursuivre des recherches à long terme dans les concepts B, C, D pour éviter ce phénomène.

Un accident majeur peut ne pas disperser complètement le contenu du cœur du réacteur accidenté. Cela a été le cas pour tous les accidents majeurs cités. Les substances radioactives restant dans la cuve du réacteur vont continuer à se désintégrer, émettant, suivant les cas, des électrons, des α , des rayons gamma. Ces rayonnements seront absorbés par les matériaux voisins. C'est dire qu'une puissance thermique résiduelle continuera, après un accident, à être émise, malgré l'arrêt de la réaction en chaîne. En cas d'accident majeur, ces isotopes radioactifs (éventuellement rejetés d'une enceinte de réacteur) vont continuer à se désintégrer. Leur radioactivité va donc baisser au rythme de leur demi-vie.

Une formule empirique approchée pour la décroissance de cette puissance résiduelle totale à l'intérieur du cœur du réacteur arrêté est $P = 5,9 \cdot 10^{-3} \cdot P^0 \cdot [t^{-0,2} - (t + T)^{-0,2}]$,¹²⁰ t étant la durée écoulée depuis la fin de l'irradiation et T la durée de l'irradiation. Ainsi, après une journée écoulée depuis la fin de l'irradiation, et si la durée de l'irradiation nominale

¹¹³ La demi-vie α de ^{241}Am est de 432,2 ans. Il émet des α de 4757 keV à 5544 keV, des gammas de 13,8 keV à 1014 keV Voir [22,34,51,53,84,85,91].

¹¹⁴ Nous avons vu que l'américium 242 a une demi-vie β de 16,02 heures. Il se désintègre en mode β à 82,7% et en mode EC à 17,3%. L' $^{242\text{m}}\text{Am}$ se désintègre en 161 ans. Nous avons déjà vu ses sections efficace de capture (2 barn ; 1 barn = 10^{-24} cm²) et de fission (0,3 barn). Nous avons vu qu'il disparaît par absorption de neutrons en environ 1,3 ans. Quand on sort du cœur le ^{241}Pu , on extrait aussi, niché dans le combustible irradié, ^{241}Am récemment formé. Et une fois devenu déchet, il n'est plus détruit par les neutrons. Il évolue suivant sa désintégration α , devenant le « pire » des déchets radioactifs parmi les actinides, tant par sa radioactivité que par sa dose efficace, d'où la difficulté qu'il y a à s'en débarrasser.

¹¹⁵ Le ^{244}Cm se désintègre en mode α (demi-vie α : 18,11 ans) à quasi 100%. Les gammas émis vont de 42 à 263 keV. La demi-vie de fission spontanée est de $1,34 \cdot 10^7$ ans. Ceci est suffisant pour nous empêcher de manier des quantités supérieures à une dizaine de grammes, à cause de la source de neutrons que ce noyau émet. Sa section efficace d'absorption est de 0,6 barn pour la capture et de 0,4 barn pour la fission [68]. Il faut donc environ 3,2 ans pour le détruire. Là encore, le ^{244}Cm qu'on retire du cœur en retirant le combustible est celui qui a été formé récemment et n'a pas eu le temps d'absorber un neutron. Compte tenu de la période de sortie du combustible, très courte par rapport à ces 3,2 ans, on retire presque tout le ^{244}Cm . Ce radionucléide, qui de plus possède le taux de fission spontané le plus élevé parmi les actinides usuels du cycle du combustible de ^{235}U et du ^{239}Pu , devient un inconvénient crucial pour l'aval du cycle de combustible. On n'a pas aujourd'hui de solution simple et commode pour le traiter rapidement. Toutefois, sa courte demi-vie permet de l'entreposer pour le faire disparaître par désintégration α . Les concepts B, C, D de réacteurs à combustibles fluides déjà cités, sont, en l'état actuel des connaissances, la seule voie. Elle consiste à éviter que le ^{244}Cm ne se forme.

¹¹⁶ Il y a un facteur 10^4 entre les effets pathogènes (dits « dose efficace », dont l'unité est le sievert par becquerel – voir § 3.3., page 97 de [80], la référence [86] et le document 66, page 252 de [21] déjà signalés) des émetteurs alpha d'inhalation ou ingestion et les émetteurs bêta (voir le document 66, page 252 de la référence [21] et la référence [80]). Par exemple, cette dose efficace est de $2,4 \cdot 10^{-4}$ pour le ^{239}Pu , $1,4 \cdot 10^{-4}$ pour le ^{241}Am et de $8,7 \cdot 10^{-9}$ pour le ^{137}Cs .

¹¹⁷ Voir [87].

¹¹⁸ Voir [119].

¹¹⁹ « Dans les pastilles de combustible sous forme d'oxyde UO_2 , l'uranium est à l'état d'oxydation IV. En présence d'oxygène, cet oxyde peut être oxydé en surface, donnant des oxydes non stœchiométriques entre UO_2 et U_4O_9 , puis entre U_4O_9 et U_3O_8 . Dans ces oxydes, U pourra alors présenter plusieurs états d'oxydation V ou VI. La lixiviation de ces oxydes pourra conduire à des contaminations de sols, d'eaux météoriques et d'eaux de ruissellement ». [89]

¹²⁰ Cette formule ne donne que des ordres de grandeur pour les tendances du moyen et du long terme de la période suivant l'arrêt des réactions en chaîne de fission, et ceci pour une durée d'irradiation particulière. Le calcul prenant en compte chaque produit de fission et chaque élément lourd a été effectué par Aliberti et al. [90] (page 74). Le résultat en est que, peu après l'arrêt, les éléments lourds produisent 8,9% de l'énergie thermique résiduelle et les PF 89,7%. Au bout de 1000 s, 20,2% et 74,6% ; après une heure, 22,5% et 72,3% ; après un jour, 34,5% et 62,1% ; après 10 jours, 22,8% et 73,2%.

avait été beaucoup plus longue vis-à-vis de la durée écoulée depuis la fin de l'irradiation, $P = 0,6\%$ de P^0 (P^0 est ici la puissance thermique nominale du cœur du réacteur si celui-ci fonctionne à puissance constante durant le temps T). Au bout d'un mois, cela fait $0,3\%$ de P^0 . Au bout d'un an, cela fait $0,18\%$ de P^0 .¹²¹ Observons que si on retirait les substances radioactives du cœur, dans les cas B, C et D de combustibles liquides cités en première partie de cette note, les rayonnements émis par ces substances radioactives en cours de désintégration continueraient d'être absorbés par les corps voisins et donc une puissance thermique résiduelle serait encore émise.

A.7. Extraction des PF du cœur au fur et à mesure de leur formation

Un premier enseignement que nous tirons des rejets radioactifs lors des accidents majeurs est qu'il serait utile de retirer les PF du cœur à mesure de leur formation, autant que faire se peut, afin de ne pas les laisser intimement mélangés avec la source de puissance thermique qu'est le combustible irradié.

Doit-on, outre les PF, soutirer par procédé chimique certains des actinides, par exemple le ^{234}U , le ^{235}U , le ^{236}U ,¹²² qui nuisent à l'économie de neutrons? Que faire de l'américium 241 pendant toute la durée du processus nucléaire, puis de la séparation chimique? Des études expérimentales considérables ont été effectuées sur ces sujets. Elles resteront valables dans le cas d'un combustible liquide.

Encadré 4. Ce que nous appelons processus du combustible dans un réacteur à combustible solide comporte : i) l'irradiation du combustible, ii) la sortie du combustible hors du cœur du réacteur, avec simultanément le refroidissement de ce combustible, iii) le désassemblage des assemblages combustibles, iv) la séparation chimique du plutonium, de l'uranium, des produits de fission et des actinides mineurs, v), le recueil (en vue d'un sort définitif) de ces espèces chimiques de différentes natures, le traitement spécifique de ces diverses substances, futurs combustibles pour les unes, diverses catégories de déchets radioactifs pour les autres. On peut décliner une suite analogue de travaux pour le combustible liquide. Elle serait plus aisée que dans le cas de son homologue solide, car sortir rapidement le combustible du cœur diminuerait fortement la quantité de ces actinides mineurs formés pendant le passage du celui-ci dans celui-là.

Dans cette suite, le traitement de l'américium est un des problèmes difficiles. La difficulté est encore accrue avec le traitement à donner au curium du fait de ce qu'il émet des neutrons issus d'une fission spontanée qui est la plus puissante parmi tous les actinides à traiter dans ce processus.¹²³ Les acteurs français du nucléaire ont une grande expérience de ce dernier (dans le cas du combustible solide, au premier rang dans le monde). C'est un atout considérable pour traiter ce processus du combustible dans le cas d'un combustible liquide. Notons que les études au stade du laboratoire ont déjà commencé depuis les années 1960 à l'ORNL, puis dans d'autres laboratoires.¹²⁴

De plus, les délais de diminution de la radioactivité et de la puissance thermique jouent un rôle notable pour ce qui est de l'instrumentation et des cellules dites « chaudes » pour y travailler sur des substances fortement radioactives.¹²⁵

Annexe B. L'expérimentation à l'ORNL, au CNRS, au Cern : le MSRE

Des expérimentations de réacteurs à combustible liquide ont déjà eu lieu depuis les années 1960. Nous rappelons dans cette annexe B les connaissances acquises sur les phénomènes physiques, chimiques et physicochimiques qui seraient utiles à des nouvelles recherches concernant les concepts de réacteurs B, C et D.

L'expérience MSRE a fonctionné à l'ORNL de 1965 à 1965. Elle est décrite dans la référence récente [49]. Elle a fonctionné une décennie au niveau de 7,4 MW thermiques.

¹²¹ Voir les page 395 et 589 de la référence [56]. Les formules empiriques sont obtenues par la pente en coordonnées log/log (comme dans le document 60 de la page 247 de la référence [21]), par la pente des tangentes, à chaque point d'abscisse t , aux courbes de radioactivité des PF et des actinides.

¹²² Le ^{237}Np , au contraire, apporte des neutrons supplémentaires. La consommation de neutrons pour détruire un radionucléide j , notée D_j , est de $-0,59$, c'est-à-dire que le neptunium 237 produit 0,59 neutron dans un spectre de neutrons rapides de flux 10^{15} neutrons/cm²s (voir les travaux de M. Salvatores dans ses publications [36,44,68] et la référence [21], page 79). À titre de repère, notons que dans un spectre de neutrons rapides, le D_j de l' ^{238}U est de $-0,62$ et que celui du ^{232}Th n'est que de $-0,32$. Nous en tirons deux conclusions : le neptunium 237, invité obligatoire du cycle de combustible de l'uranium et du plutonium, a des propriétés, en ce qui concerne le maintien d'une réaction en chaîne, intermédiaires entre celles de l' ^{235}U , du ^{239}Pu et du ^{238}U . Le thorium a des vertus de noyau fertile, mais peu comme noyau fissile. Citons la valeur de D_j pour le ^{239}Pu : $-1,46$. L'intérêt du ^{239}Pu pour la neutronique d'un RNR tient dans ce nombre.

¹²³ Il y a un facteur 10^4 entre la demi-vie pour les fissions spontanées des curium 242 et 244, par rapport au ^{240}Pu , déjà fort émetteur de neutrons par fission spontanée, le ^{240}Pu étant déjà 10^4 fois plus émetteur de neutrons que l'uranium 238 (voir dans le BNL [91]).

¹²⁴ Voir les références [32,73,70,92,71,93-95,49,88,96-100,34,64,72,67,101,102,39,103,104,41,42,105,106,63,54,107-109,74,76,69].

¹²⁵ Peut-on borner la durée pendant laquelle le stockage souterrain en couche géologique doit être considéré comme actif? Sur quels équipements peut-on agir pour faire varier cette durée et la nature des risques qui y sont associés? Ces questions sont en cours d'étude dans le contexte du GEN IV.

B.1. L'expérience¹²⁶ actuelle sur les matériaux des réacteurs à combustible fluides B, C et D

B.1.1. La nature physicochimique du fluide combustible

Une étude approfondie des combustibles fluides a été effectuée dans les années 1960 à l'ORNL.¹²⁷ Elle a conclu au choix de sels de fluorures¹²⁸ : ceux-ci sont des composés ioniques. Ils sont stables aux températures¹²⁹ recherchées pour avoir un rendement thermodynamique nettement plus élevé que dans les REP.¹³⁰ Pour un MSFR,¹³¹ les températures du fluide combustible¹³² doivent être élevées pour éviter que le liquide combustible ne se solidifie dans une partie de son circuit.

Encadré 5. Quelques propriétés physicochimiques des sels de fluor.

Les études d'optimisation des températures de sortie du cœur du MSRE avaient conclu à plusieurs options possibles, par exemple, 450 °C pour 7 LiBeF₄ ; 500 °C pour 0,58 NaF–0,42 ZrF₄ ; 650 °C pour un exemple de fluorure. Une caractéristique physique de ces sels de fluor est, nous insistons là-dessus, que la température d'ébullition¹³³ soit bien plus élevée que ces températures de fonctionnement. On peut donc faire fonctionner le circuit primaire à pression proche de la pression atmosphérique, aux pertes de charges près.

Le fluide sel de fluor est donc tout naturellement celui d'un réacteur à haute température, donc à haut rendement thermodynamique de la turbine. Toutefois, insistons sur la nécessité d'empêcher en toutes circonstances que le fluide caloporteur se solidifie dans les circuits extérieurs au cœur de réacteur, dans les échangeurs de vapeur, etc. sans qu'on puisse le ramener à l'état de fluide et l'évacuer si besoin.

La tenue sous radiation de ces sels de fluor est suffisante pour les durées et températures ci-dessus¹³⁴.

Toutefois, les propriétés neutroniques du fluor ne sont pas favorables au cycle du combustible ²³⁸U/²³⁹Pu dans le domaine des énergies cinétiques des neutrons en équilibre thermodynamique avec la matière.

Soulignons toutefois que le choix des fluorures pour le combustible liquide, effectué par l'ORNL dans les années 1960 correspondait à un concept identifiant i) le combustible, ii) le matériau fertile,¹³⁵ iii) le fluide caloporteur, comme dans B et D. Dans le cas où le fluide caloporteur serait un fluide séparé de celui du combustible, il conviendrait de revoir les spécifications de ces fluides (chacun dédié à une de ces fonctions) circulant dans le cœur, correspondant à leurs nouvelles et uniques fonctions.¹³⁶

¹²⁶ Voir [93–95,110,49] et [88].

¹²⁷ MSRE : *Molten Salt Reactor Experiment*. ORNL : « Oak Ridge National Laboratory », dans le Tennessee, aux États-Unis. C'est dans ce laboratoire national que, dans les années 1942–1945, ont été développées les productions d'uranium enrichi à plus de 90%, d'extraction du plutonium des uranium irradiés au centre de production de Hanford. Le premier réacteur d'étude, appelé Clinton, y a été construit et exploité. Après la guerre, ce centre a étudié les réacteurs à combustible fluide, comme le *Homogeneous Reactor Experiment* et le *Molten-Salt Reactor Experiment*. Celui-ci a fonctionné de 1964 jusqu'en 1969, avec un flux de neutrons thermiques de 10¹³ neutrons/cm² s, à une puissance de 7 MW thermiques, avec comme combustible : a) de l'uranium enrichi à 30% de 1966 à 1968, b) de l'uranium 233 de 1968 à 1969, c) du plutonium 239 en 1969 (voir [12]). Tant le retraitement que la physique du réacteur sont traités dans [63].

¹²⁸ En particulier, une comparaison détaillée avec le chlore a été effectuée (voir [39]). Pour les propriétés physicochimiques de ces fluorures, voir le chapitre 9.4.2, page 199 de [23]. Tant le retraitement que la physique du réacteur sont traités dans [63].

¹²⁹ Les sels de fluor fondus sont utilisés à l'usine proche de Dunkerque, par Péchiney, pour la fabrication de l'aluminium dans les cuves contenant du graphite, portées à des températures atteignant 1000 °C obtenues par passage de courant électrique.

¹³⁰ Les REP ont une température de sortie du caloporteur hors du cœur du réacteur d'environ 330 °C et un rendement de 38%.

¹³¹ Nous employons l'expression « par exemple » car de nombreuses espèces de sels de fluor, plus ou moins mélangés avec d'autres sels, ont été étudiés (voir [94,42], etc.).

¹³² Température qui était celle de la source chaude du réacteur nucléaire à combustible liquide MSRE de l'ORNL (voir [31,39,32,73,70,92,71,111,93,94,49,34,104]), et qui serait la température de sortie du cœur d'une centrale EN à combustible liquide.

¹³³ Voir [31].

¹³⁴ (voir [31]).

¹³⁵ Dans ce cas, une des conséquences nucléaires est que le spectre des énergies cinétiques des neutrons est sensiblement différent entre le sel de fluor et le sel de chlore. Il en résulte que les importantes sections efficaces, moyennées sur le spectre, de capture, de fission, le nombre de fissions par fission, pour le thorium et pour l'²³³U, et donc aussi le facteur de régénération sont différents. Le plus avantageux des fluides de sel de fluor et de chlore dépend en particulier du concept de réacteur. Retenons un ordre de grandeur : le rapport de la section efficace de capture à celle de fission est d'environ 0,1.

¹³⁶ Dans l'étude d'un MSFR (voir page 5 de [39]), et avec le mélange de sels particulier de cette étude, la température d'ébullition du sel « combustible » citée est de 565 °C, la densité massique est de 4100 kg/m³.

B.1.2. Les matériaux de structure

À l'intérieur du cœur, les matériaux de structure¹³⁷ étudiés sont des céramiques, des métaux réfractaires,¹³⁸ des alliages à haute teneur en molybdène, des alliages à base de nickel (INOR-8¹³⁹), de l'Hastelloy N [65,112]. À l'extérieur du cœur, les alliages à haute teneur en molybdène et à base de nickel sont aussi considérés. Les fluorures détachent les couches d'oxyde métallique des surfaces des circuits métalliques. Les processus habituels de lutte contre la corrosion ne s'appliquent pas.

B.1.3. La corrosion des matériaux du cœur et des circuits du combustible

Les matériaux et les processus de contrôle de la corrosion de ces matériaux en contact avec les sels de fluorures posent des problèmes spécifiques et aussi des problèmes d'interaction entre ces matériaux [49]. Citons les composants du réacteur contigus aux fluorures : la cuve du réacteur, les structures internes du réacteur, les pompes, les vannes, les tuyauteries, les purgeurs, les appareils d'extraction des gaz (gaz de fission, gaz issus des transformations chimiques sous haute température et rayonnement, etc.), les séparateurs chimiques des produits de fission et des actinides, les liaisons entre solides (soudures, joints, machines tournantes et paliers, dispositifs d'étanchéité), etc.

B.2. Les phénomènes physicochimiques et la conception d'ensemble des réacteurs à combustible liquide B, C et D

B.2.1. La puissance thermique optimale du réacteur

La fixation du niveau de puissance thermique optimale du réacteur et de sa température résulte d'une optimisation entre la neutronique et la thermodynamique de la source chaude, du circuit primaire caloporteur, des limites des matériaux de structure et de la tenue chimique du fluide combustible. Un niveau de puissance thermique spécifique 200 kW/dm³ a été réalisé dans le MSRE. Cette optimisation entraîne, avec celle du volume du cœur, celle de la puissance totale électrique, donc de la taille optimale de cette dernière.

B.2.2. La maintenance

Lors des opérations de maintenance, il faut vider et nettoyer [67] les circuits (tuyaux, pompes, vannes, etc.) vers 600 °C avec des fluides compatibles et, après ces opérations, laver de nouveau ces circuits et préparer les chauffages adaptés à ces sels fluorés. La solidification voulue ou subie des fluides combustibles doit être prévue.

B.2.3. Les phénomènes à contrôler

De plus, notons les phénomènes suivants :

- i. la radioactivité créée par les captures de certains noyaux atomiques présents dans les matériaux de structure¹⁴⁰ ;
- ii. la dissolution éventuelle de métaux dans le fluide combustible, les réactions chimiques avec des ions métalliques ;
- iii. les transferts de masse dans les circuits d'activités chimiques différentes, entre les surfaces à haute et à basses températures ;
- iv. le dépôt sur les parois des circuits et du réacteur de composés chimiques des fluorures, des matériaux des circuits érodés par le sel et des produits de corrosion. Les impuretés présentes ou diffusant ou transportées dans le sel peuvent avoir des conséquences chimiques, physiques et nucléaires prohibitives. Elles doivent être contrôlées en permanence à un niveau très bas. Ainsi, des transferts de masse se font entre des endroits différents des circuits de refroidissement ou d'extraction chimique à cause des différences d'activités chimiques.

Le potentiel redox de ce sel de fluor peut entraîner une réaction physicochimique¹⁴¹ de ce sel de fluor¹⁴² avec l'Hastelloy N.¹⁴³ Notons le risque de l'éventuelle production d'acide fluorhydrique HF. Le potentiel d'oxydation du fluide pourrait influencer les performances des matériaux en contact et devrait donc être contrôlé. Du point de vue physicochimique, la pression de vapeur des fluorures est relativement petite, son coefficient de transfert de chaleur est suffisant. Les radiations ne le détruisent pas. Il ne réagit pas violemment avec l'air et l'eau, malgré les propriétés redoutables de l'acide fluorhydrique. Il faut maintenir un état chimique réduit pour minimiser la corrosion. Ajoutons que la température d'ébullition des fluorures¹⁴⁴ est élevée, ce qui contribue à ouvrir la voie des hautes températures de la source chaude, donc des hauts

¹³⁷ Voir [98,99,123,124].

¹³⁸ Les températures des matériaux de structure dans le MSRE sont d'environ 650 °C. L'irradiation a duré, en cumulé, environ 18 mois.

¹³⁹ Composition de INOR-8 alliage : 5–18% de Mo, 6–8% de Cr, 5% de Fe, 0,4% de carbone, le reste en Ni. Cet alliage a été développé spécialement pour le MSRE. Voir [98,99].

¹⁴⁰ Notons, par exemple, pour le tungstène, la capture d'un neutron par le ¹⁸⁶W (28,3% dans le W naturel), conduit au ¹⁸⁷W (demi-vie β : 23,7 h), qui se désintègre en rhénium 187 (demi-vie : $4 \cdot 10^{10}$ ans, donc quasi stable), qui se désintègre par émission β en osmium 187, stable vis-à-vis du cobalt et des captures dans le nickel et dans le fer.

¹⁴¹ La composition de cet alliage de nickel et de molybdène, comporte aussi un peu de chrome [112].

¹⁴² Voir [94,49,88,112,101,42].

¹⁴³ L'alliage *hastelloy* a été développé par la compagnie Haynes comme matériau de structure présentant une grande résistance à la corrosion (voir [97,100,112]) à une température d'environ 650 °C. Cet alliage a été irradié pendant plusieurs années (cinq ans pour le MSRE : 1964–1969 [72,101]). Il a supporté des contraintes mécaniques fortes. Sa composition comporte du nickel, du molybdène, du chrome et du fer. L'élément dominant y est le nickel.

¹⁴⁴ Dans le cas du sel étudié par [39] (page 5), cette température d'ébullition est de 750 °C.

rendements thermodynamiques ainsi que de la fabrication de substances importantes par voie chimique, par exemple de l'hydrogène.

B.2.4. La dilatation du sel de fluorure

La dilatation¹⁴⁵ du sel de fluorure chasse progressivement le fluide combustible hors du cœur, ce qui diminue sa réactivité. La valeur du coefficient de dilatation du sel de fluor, qui est de l'ordre de $9 \cdot 10^{-4}$ par °C, joue donc un rôle important dans cette contre-réaction. Dans les projets de MSFR en cours, le parcours de la boucle du circuit de combustible liquide dans le cœur du réacteur dure environ quelques secondes (1 à 100 s), ce qui est très petit vis-à-vis de la durée liée à l'inertie thermique du circuit du combustible. Ceci permet donc à ceux des radionucléides qui sont des sources de neutrons très instables, dits « retardés » (voir [35,43]), d'être en partie évacués du cœur, ce qui accroît encore plus l'effet de diminution de réactivité dû à la dilatation du liquide combustible. La durée du parcours d'une boucle de combustible par un fluide combustible et donc des PF qui viennent d'être émis est plusieurs fois plus longue la durée du parcours d'une boucle de refroidissement par le fluide caloporteur.¹⁴⁶

B.2.5. Le neptunium

Pour le traitement du cycle de combustible¹⁴⁷ à l'uranium 238 et au plutonium 239, la courte demi-vie du ²³⁹Np (demi-vie β : 2,365 j) désintègre ce radionucléide à un taux rapide par rapport aux durées d'irradiation du combustible. Dans le cas d'un éventuel cycle au thorium,¹⁴⁸ le ²³³Pa,¹⁴⁹ avec sa demi-vie β de 27 jours, va être présent dans le circuit du réacteur chimique dans le cas d'un fluide unique pour la criticité et le caloporteur.

Des phénomènes analogues existent pour les PF. Par exemple, le césium 137 provient des désintégrations successives du produit de fission iode 137 (demi-vie β : 24 s) → xénon 137 (demi-vie β : 3,7 min) → césium 137 (demi-vie β : 29 ans) → baryum 137 (stable); il existe une deuxième chaîne de désintégration, tant à partir de l'iode 137 qu'à partir du césium 137. C'est parce que les demi-vies du PF naissant d'une fission et celles des noyaux de désintégration successives sont très courtes vis-à-vis de la demi-vie du ¹³⁷Cs, et aussi parce que cette dernière est du même ordre de grandeur que les durées de vie des humains¹⁵⁰ et de leurs activités, que le seul radionucléide nommé est le ¹³⁷Cs.

Pour l'iode 131 (demi-vie β : 8,02 j), la chaîne des désintégrations est : ¹³¹Sn (demi-vie β : 3,4 min) → ¹³¹Sb (demi-vie β : 23 min) → ¹³¹Te (demi-vie β : 24 min) → ¹³¹I (demi-vie β : 8 min) → ¹³¹Xe (stable), avec deux bifurcations minimes.

B.3. La technologie des réacteurs à combustible liquide. Les travaux expérimentaux extérieurs au réacteur à l'ORNL

B.3.1. Les sels sélectionnés pour le cas où fluide combustible et caloporteur se confondent (catégorie B)¹⁵¹

Un objectif a été de dissoudre les PF dans le sel du combustible et de les séparer continuellement. Pour les PF gazeux comme le xénon 133 (demi-vie : 5,2 j), le krypton 85 (demi-vie : 10,3 ans), l'hélium, etc., un dégazage permettait de les récupérer ensemble spontanément. La formation de bulles de gaz, en particulier dans le cœur, devait être contrôlable.

Quand on prend en compte toutes les contraintes physiques et chimiques supportées par le fluide combustible et caloporteur, on aboutit à un premier tri : LiF–BeF₂, NaF–BeF₂, LiF–NaF–KF, NaF–ZrF₄; NaF–RbF–ZrF₄. Ces mélanges de sels présentent tous des avantages et des inconvénients, mais aucun de ceux-ci n'est rédhibitoire. Il y a donc une large marge de choix en tenant compte des autres points du cahier des charges.

B.3.2. La place du composant barrière entre le milieu radioactif et le milieu propre

Retour sur une question essentielle : où peut-on placer le composant barrière entre le milieu radioactif et le milieu propre ? L'échangeur de chaleur ?¹⁵² La conception de base exposée dans la présente note (notée C) est que la frontière entre le circuit de refroidissement (contenant le fluide caloporteur passant dans le cœur) et le circuit combustible (contenant le sel combustible liquide¹⁵³) soit un des éléments de cette frontière du domaine radioactif.

On est donc confronté, pour la réalisation de centrales EN (qui doivent être conçues pour être encore actives dans un futur lointain), au problème suivant : démontrer les détails de la faisabilité de dispositifs permettant de rendre, physique-

¹⁴⁵ Voir page 5 de [39] et [105].

¹⁴⁶ Les alliages étudiés à l'ORNL évitent les aciers inoxydables à base de fer et de chrome. Les *Hastelloys* (voir [98–100,112,65]), à base de nickel (environ 80%), ont été développés pour ce cas spécifique. Toutefois, certains de leurs composants capturent les neutrons et forment des radionucléides parasites.

¹⁴⁷ Voir [57].

¹⁴⁸ Il s'agit de projets à long terme concernant les matières combustibles.

¹⁴⁹ Le protactinium 233 a une demi-vie β de 26,967 j. Son mode de désintégration est par émission β , à 100%. Sa *Q-value* (quantité d'énergie dégagée par une réaction nucléaire) est de 570,1 keV. Les énergies cinétiques des électrons β vont de 154,3 keV à 570 keV. Les énergies des rayons gammas vont de 17,2 keV à 415,76 keV. Les énergies des rayons X vont de 11,6 keV à 114 keV.

À cause de sa demi-vie substantielle, comparée à celle du neptunium 239, dans le cycle du combustible à l'uranium 238 et au plutonium 239, les absorptions (captures) de neutrons conduisent à l'isotope 234 du protactinium. Celui-ci a une demi-vie de 6,7 h et conduit au ²³⁴Th (demi-vie β : 24,10 j), puis à d'autres noyaux instables. Cette radioactivité complique le cycle du thorium, mais constitue une barrière à toute prolifération dans ce cycle.

¹⁵⁰ Voir [22].

¹⁵¹ Voir [64,72,67,102,38,39,103,104,113,41,42,105,45,8,63,66,114,107–109,74,76,69,47].

¹⁵² Voir [108].

¹⁵³ Cycle de Brayton : voir les références [31,75,115].

ment et passivement, les conséquences d'un accident de centrale EN contrôlables, et donc limitées en dispersion tant dans l'espace que dans le temps.

B.3.3. Les circuits¹⁵⁴ du fluide combustible et du fluide caloporteur

Les réalisations des circuits du combustible liquide devaient permettre aux gaz nobles (xénon 135, krypton 85, etc.) des PF de s'échapper, ce qui constitue un avantage considérable par rapport aux combustibles solides en cas d'accident majeur [104].^{155,156}

Annexe C. Les phénomènes de neutronique dans les réacteurs de type B, C et D

Chaque noyau radioactif présent dans le cœur du réacteur peut subir deux catégories de réactions nucléaires, une désintégration (α , β ou γ ou fission spontanée), ou bien une capture de neutrons. Alors que la première possède une constante de temps fixe, la deuxième se fait à un taux qui dépend de l'énergie cinétique du neutron (donc du spectre des neutrons), du flux de neutrons et de la durée d'irradiation, c'est-à-dire de la fluence locale des neutrons subie par le noyau. C'est l'objet de cette annexe d'en étudier les conséquences sur la radioactivité des noyaux présents dans le cœur d'un réacteur.

C.1. Les noyaux atomiques acteurs de la réaction de chaîne et le concept de combustible fluide. L'économie des neutrons¹⁵⁷

C.1.1. L'uranium enrichi en l'isotope 235, et donc contenant aussi l'isotope 238

Notons quelques observations.¹⁵⁸

L'isotope 241 du plutonium se désintègre à 99,99% en ²⁴¹Am. Il reste une voie de sortie, pour 0,0024%, qui est une désintégration alpha.

Placé dans un flux de neutrons, ²⁴¹Am donne majoritairement ²⁵²Am et pour le reste de ^{242m}Am (isomère du noyau d'²⁴²Am, de spin et parité 5-, de mode de désintégration α , avec une demi-vie de 152 ans, alors que ²⁴²Am a un spin et une parité de 1- et se désintègre par émission β à 82,7%, avec une demi-vie de 16 h, et capture électronique à 17,3%). La demi-vie de ²⁴²Am est relativement petite comparée à celle des autres actinides mineurs. Il se désintègre majoritairement en ²⁴²Cm (et faiblement en ²⁴²Pu). Celui-là, toujours placé dans le champ de neutrons, va donner lieu à absorption.¹⁵⁹ Le ²⁴²Cm se désintègre par émission α en ²³⁸Pu, avec une demi-vie α de 162,94 j. Le ²³⁸Pu se désintègre par émission α en ²³⁴U en 87,74 ans. Toutefois, dans ce champ de neutrons, il va aussi partiellement capturer un neutron et donner le ²³⁹Pu.

L'américium 241 est émetteur alpha, et donc environ 10^4 fois plus nuisible par ingestion ou inhalation (dose efficace de $1,4 \cdot 10^{-4}$ Sv/Bq) que les PF (i.e. pour le césium 137 : $8,7 \cdot 10^{-9}$ Sv/Bq), qui sont, quant à eux, toujours émetteurs bêta. Aux ²⁴¹Pu et ²³⁸Pu près, ²⁴¹Am a la demi-vie la plus courte (433 ans) et est donc le plus radioactif des actinides abondants dans les descendants du combustible.

Le taux des réactions nucléaires de capture et de fission dépend du flux de neutrons, tandis que le taux de désintégration de ce noyau en est indépendant. Donc, par exemple, augmenter le flux de neutrons rapides modifie la proportion des noyaux, ici d'²⁴¹Am, d'²⁴²Am, de ²⁴²Cm, de ²⁴⁴Cm, etc. Les différentes sections efficaces de ces noyaux, tant pour la fission que pour la capture d'un neutron, modifient i) la proportion des noyaux et aussi ii) leur valeur absolue. En particulier, pour diminuer les ennuis dus à ces noyaux lourds, on a intérêt à durcir le flux de neutrons et à l'augmenter. Dans la plupart des cœurs de réacteurs à neutrons rapides, ce flux de neutrons rapides est d'environ $4 \cdot 10^{15}$ neutrons/cm² s. Aller au-delà de ce flux (neutrons/cm² s) entraîne une augmentation de la puissance thermique spécifique dans le cœur. On se heurte alors à la difficulté qu'a le fluide caloporteur à évacuer hors du cœur cette puissance thermique [22].

C.1.2. Le combustible ²³³U, obtenu à partir du thorium 232

L'²³³U possède des caractéristiques de fission qui le situent, pour ce qui est de la neutronique, entre le ²³⁵U et le ²³⁹Pu. Les caractéristiques nucléaires de ²³³U, ²³⁵U, ²³⁹Pu sont respectivement :

- nombre de neutrons par fission : 2,7, 2,65, 3,0 ;
- rapport capture/fission : 0,1, 0,15, 0,1 ;
- nombre de neutrons par neutron absorbé : 2,45, 2,3, 2,7 pour des neutrons incidents d'énergie cinétique 1 MeV.¹⁶⁰

Le ²³³U se compare excellemment avec les autres actinides stables pour ce qui est du phénomène de fission et de capture de neutrons.

¹⁵⁴ La possibilité qu'un « bouchon » de sel solidifié par refroidissement local obstrue un des circuits de combustible doit être supprimée en toutes circonstances par une température du sel combustible en fonctionnement au moins égale à 500 °C.

¹⁵⁵ La vidange du combustible hors du cœur pourrait se faire d'une manière passive, par gravité si nécessaire, vers un réservoir adéquat.

¹⁵⁶ Voir [63,75,115].

¹⁵⁷ Voir [36,31,35,55,103,91,104,40,113,41,43,44,12,68].

¹⁵⁸ Voir [116,35,36,68,43,56,52,54].

¹⁵⁹ Absorption : capture et/ou fission, ces sections efficaces sont très petites (quelques 10^{-24} cm²).

¹⁶⁰ Dans le domaine des neutrons en équilibre thermodynamique avec la matière, les nombres de neutrons par fission sont respectivement 2,49, 2,42, 2,87 et le nombre de neutrons émis par neutron absorbé sont respectivement, 2,29, 2,07 et 2,87 (voir page 41 de [21] et [35]).

Ces comparaisons quantitatives, pour un spectre complet des neutrons d'un réacteur à neutrons rapides, avec la prise en compte simultanée de tous les actinides présents dans le réacteur étudié, ont été effectuées dans [36,51,52]. L'auteur y obtient la consommation de neutrons (normalisée à une fission) de l'isotope j placé dans un flux de neutrons, notée D_j .¹⁶¹

Cette consommation de neutrons est de 0,38 unités pour le ^{232}Th . À titre de comparaison avec un autre noyau fertile, notons que, pour l' ^{238}U , cette consommation de neutrons est de 0,62. C'est dire que le processus produisant de l' ^{233}U consomme des neutrons, alors que celui qui génère du ^{239}Pu en produit [35].

Il n'y a pas d'élément expérimental concernant des accidents majeurs avec du combustible nucléaire au thorium.

L'irradiation du ^{232}Th comme noyau fertile conduit au ^{233}Th , puis au ^{233}Pa comme noyau fissile.

Rappel : ^{233}Pa , demi-vie : $27 \text{ j} \rightarrow \beta + ^{233}\text{U}$ (demi-vie : $1,6 \cdot 10^5$ ans). C'est dire que le ^{233}Pa est fortement radioactif, et donc émet une puissance résiduelle très élevée [36].

Dans le cas où l'on souhaiterait utiliser le thorium comme matériau fertile pour les réactions nucléaires $^{232}\text{Th} + \text{neutron} \rightarrow ^{233}\text{Pa} \rightarrow ^{233}\text{U}$, un soutirage continu du fluide combustible ou d'un fluide fertile, si celui-ci était séparé du fluide combustible, ne soutirerait pas de l' ^{233}U , mais du ^{233}Pa , avec sa longue demi-vie ce qui nécessiterait une période d'attente pour en extraire chimiquement l'uranium (dont le ^{233}U), outre la période d'attente due aux autres désintégrations. Faudrait-il extraire le ^{233}Pa et attendre sa désintégration en ^{233}U ? C'est une optimisation des désintégrations, des captures de neutrons, du taux de soutirage du fluide combustible, des radionucléides qu'on en extrait qui permet ce choix.

C.1.3. La durée nécessaire

Afin de comparer les diverses manières de retirer les PF du flux de combustible irradié, indiquons la durée nécessaire, si on laisse un noyau dans le cœur d'un réacteur à neutrons rapides, pour arriver, par captures successives, à un noyau stable. La demi-vie indique que la moitié des noyaux (par exemple, le ^{137}Cs) serait désintégrée. Mais, si on veut que 90% ou 95% soit désintégré, il faut attendre plusieurs demi-vies, soit 2^n . Pour le césium 137, ce serait entre 200 et 300 ans.

C.1.4. Les noyaux non radioactifs qui le deviennent

Parmi les noyaux radioactifs des fluides combustibles et/ou caloporteurs, il y a les noyaux non radioactifs constituant ces fluides, et qui deviendraient radioactifs en passant dans le cœur du réacteur. La considération de ce phénomène élimine ceux des sels qui sont des espèces chimiques comportant du chlore,¹⁶² à cause de la formation (par capture d'un neutron) de ^{36}Cl , dont la demi-vie β est de $3,1 \cdot 10^5$ ans. Le fluor a été choisi par l'ORNL et les autres concepteurs à cause de sa très petite section efficace de capture.

C.2. Maintenir la réaction en chaîne, c'est-à-dire la criticité stationnaire durant toute la durée d'exploitation nominale du réacteur. Le contrôle-commande du réacteur à combustible fluide

Le maintien de la criticité¹⁶³ dans le cœur (donc la neutronique du cœur, tant pour l'uranium 235, l'uranium 238¹⁶⁴ et le plutonium 239 que l'uranium 233) est une des fonctions principales d'un réacteur. Sa réalisation pour les réacteurs à combustibles liquides B, C et D comporte des dispositifs différents de ceux du contrôle-commande des réacteurs à combustible solide.

Le contrôle du flux de neutrons du cœur du réacteur peut s'effectuer en enfonçant des barres contenant des noyaux absorbant de neutrons, comme dans les RNR existant, à combustibles solides. Les étuis où coulissent ces barres subissent-ils les gradients de densité massique, de flux de neutrons, donc des gradients de puissance thermique? C'est là l'une des frontières des étanchéités entre équipements des fonctions dans le réacteur.

Retirer en continu les absorbeurs de neutrons que sont les produits de fission entraîne qu'il n'est pas nécessaire, pour assurer la criticité, de préparer des marges considérables de noyaux fissiles bien au-delà de la criticité. On peut donc fissionner une grande proportion des noyaux fissiles introduits plusieurs fois dans le cœur, par exemple 80% au lieu des 30% de l' ^{235}U dans le cas actuel des REP.

La durée d'irradiation du combustible est un paramètre libre, donc une variable de contrôle. Elle contrôle la composition des produits de fission et des actinides lors de leur sortie du cœur du réacteur et leurs autres propriétés physiques et chimiques. Les facteurs à prendre en considération pour commander cette durée sont i) les demi-vies de désintégration radioactive des noyaux présents dans le combustible irradié, donc du combustible introduit dans le réacteur, ii) la valeur

¹⁶¹ Voir page 79 de [21] et [36] et la table 5.8 de [35], page 129.

¹⁶² 76% du chlore naturel est le ^{35}Cl , dont la section efficace est inférieure à un barn dans un spectre de neutrons rapides.

¹⁶³ C'est-à-dire le maintien de la réaction en chaîne stationnaire des fissions dans le combustible.

¹⁶⁴ Nous avons vu, pour chacun des radionucléides (^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ou bien ^{232}Th ou/et ^{233}U), qui sont des actinides participant au cycle du combustible, leur destin dans la réaction en chaîne étudiée. À titre de repère, notons le comportement de l' ^{238}U dans le champ de neutrons. Sa section efficace de capture est de 0,3 barn et celle de fission de 0,04 barn dans le spectre moyen des énergies cinétiques des neutrons d'un RNR, soit 0,34 barn en tout. La vie moyenne de ce noyau d' ^{238}U dans un champ de neutrons rapides est d'environ 2,4 ans. L' ^{238}U , outre qu'il est la source privilégiée de l'énergie des surgénérateurs, est un combustible qui ne se détériore pas dans le champ des neutrons d'un RNR. De plus, sa radioactivité est suffisamment basse pour que, bien qu'abondant sur la Terre, il n'ait aucune influence néfaste sur le vivant. Ajoutons qu'il est la source principale, devant le thorium et le potassium 40, de la chaleur de la Terre (environ un dix millième de l'apport solaire). L'utilisation du thorium comme matériau fertile présente un immense avantage, mais en raison d'une autre propriété : les captures successives sur ce noyau ne conduisent pas à des radionucléides difficiles à traiter, comme l'américium 241 ou les curium.

du flux de neutrons, et donc la puissance thermique volumique qu'on sait extraire du cœur, iii) les caractéristiques de la séparation chimique, iv) la composition du combustible qu'on injecte à nouveau dans le réacteur. Tout cela relève des choix des concepteurs. Ce sont donc des variables de contrôle des projets de réacteurs B, C et D.

Finalement, le combustible introduit resterait dans les circuits du réacteur jusqu'à ce que l'une de ces trois éventualités se produise : i) soit que celui-ci soit complètement « fissionné » ; ii) soit que, capturant un neutron, puis par une chaîne de captures¹⁶⁵ ou par captures et désintégration, il engendre des actinides dans la région des fissions spontanées (voir [91]) ; iii) soit encore que, pour les PF, par une chaîne de captures et de désintégrations successives, on atteigne des radionucléides de demi-vies croissantes, puis un noyau stable.

On a vu plus haut que le contrôle du niveau du flux de neutrons entraîne la fixation de la puissance thermique volumique du réacteur. Celle-ci entraîne le niveau de puissance thermique globale optimale du réacteur et de sa température de sortie du cœur. Le niveau de ceux-là résulte d'une optimisation entre la neutronique et la thermodynamique de la source chaude, du circuit primaire caloporteur, des limites des matériaux de structures et de la tenue chimique du fluide combustible. Un niveau de 200 kW/dm³ a été obtenu dans le SMRE. Cette optimisation entraîne celle de la puissance totale électrique, donc de la taille optimale de la puissance électrique.

Ajoutons que, dans un régime de fonctionnement constant d'un tel concept de réacteur, la puissance thermique émise par les produits de fission placés hors du cœur du réacteur est, au début de leur sortie du cœur, la somme de celles de noyaux ayant des demi-vies très différentes (voir la référence [22]). À leur maximum, à partir par exemple de 1 j après leur sortie, cette puissance thermique est de l'ordre de 0,6%¹⁶⁶ de la puissance nominale P^0 . Au bout d'un mois, cela fait 0,3% de P^0 , au bout d'un an, 0,18% de P^0 .¹⁶⁷

Les radionucléides dont la présence peut advenir, en particulier à cause d'impuretés dans les matériaux, les fluides, etc., à cause des réactions (n, γ) sont, en particulier, dans les sels de chlore : i) le chlore 36 par les réactions nucléaires Cl 35 (n, γ) Cl 36, Cl 37 (n, γ) Cl 36, ii) le tritium¹⁶⁸ par les réactions nucléaires Li 6 (n, α) H 3 et Li 6 (n, tritium) α , iii) le soufre, l'oxygène etc. (voir [39]).

C.3. La stabilité intrinsèque du flux de neutrons par rapport aux perturbations dans le cœur des réacteurs à combustible liquide B, C et D

Le coefficient de vide de la réactivité doit impérativement être très négatif (car des bulles peuvent se former dans le fluide sous radiation et par modification des variables thermodynamiques des fluides entrant dans le cœur) dans un délai plus petit que la période de montée de la réaction en chaîne.¹⁶⁹ Ce programme été réalisé dans le cas d'un spectre de neutrons « thermalisés » pour le MSRE. Dans le cas d'un spectre rapide, l'effet Doppler est aujourd'hui garanti comme négatif. Pour le coefficient de vide, cela dépend du concept du cœur du réacteur.

Il y aura toujours des vides créés par les produits de fission xénon, krypton, etc. Si, par exemple, le cœur est à volume constant ainsi qu'à pression constante, les gaz émis feront sortir du cœur une partie du fluide combustible, ce qui diminuera la réactivité, en composant les constantes de temps des neutrons prompts de la réaction en chaîne des fissions avec celles des neutrons retardés [22]. Il en est de même pour le coefficient de température,¹⁷⁰ hors le coefficient Doppler déjà cité. Ajoutons que la densité massique des fluorures diminue quand leur température augmente, ce qui conduit à un coefficient de température de la réactivité fortement négatif et rapide par rapport à la période de variation du flux des neutrons.

C.4. Les variables de contrôle du destin des radioéléments dans les réacteurs à combustible liquide B, C et D

Les phénomènes exposés plus haut sont contrôlables. Par exemple, on peut irradier plus ou moins longtemps les produits de fission avant de les sortir du cœur du réacteur. Examiner tous ces degrés de liberté fait l'objet de cette [annexe B](#). Ce sont, pour ce qui est la définition scientifique et technique du cœur, pour une puissance électrique souhaitée : i) la puissance thermique par unité de volume du cœur et donc le volume de ce cœur ; ii) le taux de noyaux fissiles dans le cœur ; iii) le taux de renouvellement de ces noyaux fissiles dans le cœur (par la circulation du fluide combustible) ; iv) les fenêtres de température du combustible et celles du fluide caloporteur. Ces exemples de degrés de liberté sont autant de variables de contrôle du concept de cœur de la centrale EN.

¹⁶⁵ Par exemple, le césium 137 provient des désintégrations successives du produit de fission, l'iode 137 (demi-vie β : 24 s) \rightarrow xénon 137 (demi-vie β : 3,7 min) \rightarrow césium 137 (demi-vie β : 29 ans) \rightarrow baryum 137 (stable). Il existe une deuxième chaîne de désintégration, tant à partir de l'iode 137 qu'à partir du césium 137. Pour le césium 134, l'origine est une capture de neutron par le descendant ¹³³Cs du produit de fission ¹³³Sb. Le ⁹⁰Sr est un descendant du PF ⁹⁰Kr. Pour l'iode 131 (demi-vie β : 8,02 j), la chaîne des désintégrations est : ¹³¹Sn (demi-vie β : 3,4 min) \rightarrow ¹³¹Sb (demi-vie β : 23 min) \rightarrow ¹³¹Te (demi-vie β : 24 min) \rightarrow ¹³¹I (demi-vie β : 8 min) \rightarrow ¹³¹Xe (stable) ainsi que deux bifurcations minimes. Le xénon 133 provient du produit de fission ¹³³Sb (demi-vie β : 4,1 min) \rightarrow Te 133 (demi-vie β : 63 min en passant par ¹³³Te excité et 2 min en passant par ¹³³Te \rightarrow ²³³I (demi-vie β : 20,8 h) \rightarrow ¹³³Xe (demi-vie β : 5,25 j) \rightarrow ¹³³Cs, stable.

¹⁶⁶ Voir dans [22] le détail des produits de fission qui concourent principalement à cette quantité.

¹⁶⁷ La puissance P^0 est assurée par les fissions de la réaction en chaîne du combustible dans le cœur. Après la sortie du cœur et pendant environ 200 ans, la partie de la puissance thermique émise par les réactions α , β et γ des actinides est de l'ordre de 30% de celle des PF.

¹⁶⁸ Voir [94,96,102].

¹⁶⁹ La période de variation du flux de neutrons dans le cœur est la durée de vie d'un neutron naissant dans ce cœur. Certains produits de fission émettent des neutrons dits « retardés », qui se conjuguent avec les neutrons de la réaction en chaîne (voir chapitre XVII de [35]).

¹⁷⁰ La dilatation du sel de fluorure est de l'ordre de $9 \cdot 10^{-4}$ par °C (voir page 5 de [39] et [105]).

Les valeurs quantitatives de ces variables sont les conséquences de phénomènes physiques tels que : i) l'irradiation maximale permise pour les matériaux de structure du cœur ; ii) la production de gaz,¹⁷¹ et iii) la production maximale de radionucléides admissibles.

Les facteurs qui commandent la durée d'irradiation sont : i) les demi-vies de désintégration radioactives des noyaux présents dans le combustible irradié, donc du combustible introduit dans le réacteur, de la fluence qu'il subit, ii) les caractéristiques de la séparation chimique, iii) la composition du combustible qu'on injecte à nouveau dans le réacteurs. Tout cela relève des choix des exploitants du réacteur. Ce sont donc aussi des variables de contrôle.

- 1) Nous avons constaté dans l'annexe A que, dans les accidents majeurs, ce sont certains radionucléides, présents dans le cœur, qui étaient projetés hors du cœur par l'énergie chimique dégagée dans l'accident majeur, qui se dispersaient ensuite au gré des circulations géophysiques.
- 2) Cette source de radionucléides comportait les éléments suivants : ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{131}I , ^{133}Xe pour ce qui est des PF. La valeur numérique de cette source au moment d'un éventuel accident majeur est commandée, à tout moment, par la valeur du flux de neutrons, sa fluence, son spectre d'énergie, la densité massique des noyaux fissiles par unité de volume et la durée de l'irradiation. Nous pouvons, pour ajuster cette dernière, agir sur le taux d'extraction du combustible hors du cœur du réacteur, par unité de temps et de volume. On pourrait effectuer une démarche analogue pour les actinides à retenir.
- 3) Fixer tout cela, c'est fixer ce que nous sortirons du cœur par le circuit du combustible, en débit, en composition, en paramètres thermodynamiques.
- 4) À partir des substances ainsi retirées périodiquement du cœur, nous pouvons fixer les corps que nous séparerons par des procédés chimiques ou physicochimiques (substances gazeuses, ou volatiles ou solubles dans les fluides de l'environnement, ou futur combustible, ou dangereuses sur le plan sanitaire, par exemple, césium, strontium, iode, uranium, plutonium, américium, curium, tritium, etc.). Il nous faudrait aussi mettre au point ce que nous allons faire des autres radionucléides qui seraient sans emploi.
- 5) Il nous faut fixer les taux, donc aussi les durées, les sorties, les processus thermochimiques et thermodynamiques de ce processus de séparation chimique et physicochimique des espèces contenant les noyaux énumérés ci-dessus en 2).
- 6) Enfin, nous avons aussi la latitude de fixer la composition du flux de combustible à réintroduire dans le cœur du réacteur (en noyaux fissiles, en noyaux fertiles. en noyaux à transmuter), ainsi que ses caractéristiques thermodynamiques.

Encadré 6. Dans la conception d'un tel réacteur, il faut noter que le flux de neutrons n'est plus une quantité fixe, comme dans les réacteurs à combustible solide (fixé par la tenue de la gaine à quelques 10^{14} neutrons/cm²s), mais un paramètre à ajuster, ce qui permet de l'augmenter, et donc d'augmenter le taux de disparition des radionucléides parasites ou, au contraire, propageant la réaction en chaîne. De plus, ce paramètre commande la puissance thermique volumique, donc la thermodynamique du circuit du caloporteur, le taux de dégâts dans les matériaux irradiés.

Il nous faut aussi fixer les fonctions physiques, chimiques et physicochimiques pouvant être opérées sur le site de la centrale EN. Pour les processus nécessitant d'être effectués hors du site (par exemple, le stockage définitif de certains radionucléides), il nous faut évaluer les avantages et les inconvénients des diverses possibilités, en particulier les risques des transports des substances radioactives et ceux de leur entreposage sur le site. Pour évaluer ceux-ci, il faut des critères fixant ce qui est acceptable en cas d'accident majeur et ce qui ne l'est pas. Cela s'applique bien sûr à la protection des sociétés humaines.¹⁷² Toutefois, il faut aussi fixer des critères pour la protection des écosystèmes, de la biodiversité, de l'atmosphère, des eaux, des océans. On doit aussi prendre en compte comme impact éventuel extérieur, également participant aux critères, les évolutions climatiques, les événements extrêmes géophysiques, etc. Pour ce faire, une toxicologie des radionucléides a été élaborée (voir la référence [117]).

Parmi les produits de fission et les combustibles, nous pouvons ajuster la source nucléaire des radionucléides par fission et par unité de temps dans le cœur du réacteur, les quantités de ^{137}Cs (et ^{134}Cs), de ^{90}Sr , de ^{131}I , de ^{129}I , de ^{133}Xe créées par unité de temps par la valeur du flux de neutrons, sa fluence et son spectre d'énergie, tant par la densité massique des noyaux fissiles par unité de volume que par la durée de l'irradiation.

Nous pouvons, pour ajuster la durée de l'irradiation, ajuster le taux d'extraction du combustible hors du cœur du réacteur, par unité de temps et de volume.

À partir des substances ainsi retirées périodiquement du cœur, nous pouvons fixer les corps que nous séparerons par des procédés chimiques ou physicochimiques (substances gazeuses, ou volatiles ou solubles dans les fluides de l'environnement,

¹⁷¹ Par les PF et les α .

¹⁷² Voir [109].

ou futur combustible, ou dangereuses sur le plan sanitaire, par exemple, césium, strontium, iode, uranium, plutonium, américium, curium, tritium, etc.). Il nous faudrait aussi mettre au point ce que nous allons faire des radionucléides sans emploi.

Plus généralement, nous pouvons contrôler le concept complet, avec le cycle de combustible et le devenir des déchets. Ces considérations nous amènent à expliciter les variables de contrôle de la définition scientifique et technique du cœur pour une puissance électrique donnée : i) le volume de ce cœur, ii) le taux de noyaux fissiles, iii) le taux de renouvellement de ces noyaux fissiles dans le cœur (par la circulation du fluide combustible), iv) les fenêtres de température du caloporteur et celle du combustible, qui sont les conséquences des irradiations maximales permises pour les matériaux de structure du cœur, de la production de gaz¹⁷³ et de la production maximale admissible de radionucléides (encore une variable de contrôle).

Annexe D. La séparation chimique des produits de fission et éventuellement d'actinides mineurs gênants d'avec le combustible et la réinjection de celui-ci dans le cœur avec des ajouts pour compenser la fission

Pour diminuer la radioactivité en cas d'accident majeur, il faut identifier les substances radioactives, ce que nous avons examiné dans les [annexes A à C](#), puis les séparer, par des processus chimiques, des substances radioactives ne posant pas de problèmes. Ce dernière tâche est celle que allons effectuer dans cette [annexe D](#).

Le taux d'extraction chimique et physicochimique du combustible irradié afin d'en enlever les PF, les actinides mineurs et les autres corps radioactifs gênants est une variable libre du système complet réacteur, traitement chimiques, injection du combustible régénéré dans le cœur, etc.

Suivant les projets et les critères à optimiser (sûreté, bilan des précurseurs du nucléide combustible, etc.), ce taux est, par exemple, de l'ordre de 10^{-3} j^{-1} .¹⁷⁴

Cette extraction comporterait plusieurs fonctions¹⁷⁵ : i) l'extraction des PF gaz nobles ; ii) l'extraction des descendants du thorium irradié, par le procédé dit de « fluorination » – et en particulier, le protactinium 233 à laisser se désintégrer pendant plusieurs mois – ; l'extraction des lanthanides et des isotopes du zirconium,¹⁷⁶ par un procédé de type redox, etc.

Ceci permet-il de supprimer les arrêts de la réaction en chaîne dans le cœur des réacteurs à combustible liquide B, C et D ?¹⁷⁷

Limiter l'irradiation des éléments combustibles ou bien la capture « parasite » par les PF ou bien encore l'irradiation par captures successives jusque dans le domaine des fissions spontanées et pour le rechargement en corps fissile nous amène à comparer les combustibles à base d'uranium naturel ou de thorium,¹⁷⁸ avec pour objectif de borner les conséquences d'un accident.¹⁷⁹

Va-t-on devoir préparer le combustible sur le site ? Va-t-on devoir extraire du combustible, les PF, les actinides fissiles, les espèces nucléaires parasites (produits de corrosion, d'activation) en lots, par fournées, par quotas (*batch*) ou bien en continu ?

Le procédé aqueux utilisé pour les cycles de combustible des réacteurs à eau a fait la simplicité¹⁸⁰ du retraitement et donc son succès. Pour le cas du MSRE, l'ORNL a dû recourir à la pyrochimie,¹⁸¹ qui est compatible avec de hautes températures et les substances à séparer. Il est préférable de place cette unité de séparation sur le site du réacteur, mais distincte des équipements correspondant aux fonctions de nature nucléaire, radioactives.

Dans les réacteurs à combustible solide comme les REP, les RNR à sodium, etc., les diverses fonctions interférant dans le cœur (réaction en chaîne, niveau de la réactivité et criticité, thermodynamique du combustible, du caloporteur, irradiation des matériaux, contrôle-commande, etc.) sont multiples. Une des conséquences de cette limitation dans les REP et les RNR est celle de la puissance spécifique. Dans le cas des REP, celle-ci est de 140 kW/dm^3 . Pour un réacteur à combustible liquide, la borne haute de la puissance spécifique est la combinaison de i) des dégâts du matériau du cœur, par exemple comptés en dpa par année, ii) de la teneur en gaz dans le cœur. Dans un réacteur à combustible liquide, on peut multiplier la puissance spécifique par un facteur substantiel. Mais l'avantage crucial, c'est que les spécifications de chaque circuit dans le cœur et les circuits distincts qui les prolongent hors du cœur sont réduites à une seule fonction. Du coup, plus rien n'interfère et on peut concevoir des fonctions simples et distinctes dans ce cœur, qui serait sinon le carrefour de toutes des intrications des fonctions.

¹⁷³ (par les PF et les α).

¹⁷⁴ Voir la référence [46].

¹⁷⁵ Voir, pour les extractions chimiques qui suivent : [32,73,70,92,71,88,34,59,118,67,60,37,38,119,89,61].

¹⁷⁶ L'isotope 93 du zirconium (demi-vie β : $1,5 \cdot 10^6$ ans) est l'un des PF posant problème pour le stockage souterrain.

¹⁷⁷ Des études expérimentales à long terme pourraient permettre de sélectionner, parmi les cas A, B, C, D, les options préférées et les options crédibles.

¹⁷⁸ Le réacteur MSRE a fonctionné à l'ORNL en uranium 233 (39 kg de ²³³U, obtenu à partir du thorium, de 1968 à 1969, soit plus de 4000 heures équivalentes de la pleine puissance).

¹⁷⁹ Une autre manière d'examiner ce phénomène consiste à s'interroger sur les phénomènes qui vont limiter le flux rapide de neutrons, la densité relative de matière fissile dans le cœur, la puissance thermique volumique, la fluence en neutrons, la thermodynamique du transfert d'énergie et donc la température.

¹⁸⁰ Le procédé utilisé, appelé PUREX, en usage au centre de La Hague, est un processus aqueux qui se déroule par précipitation d'une solution aqueuse à température voisine de l'ordinaire.

¹⁸¹ Voir [71].

Références

- [1] C. Perrow, *Normal Accidents, Living with High-Risk Technologies*, Princeton University Press, Princeton, NJ, États-Unis, 1999.
- [2] C. Perrow, *The Next Catastrophe, Reducing Our Vulnerabilities to Natural, Industrial and Terrorist Disasters*, Princeton University Press, Princeton, NJ, États-Unis, 2007.
- [3] R. Posner, *Catastrophe, Risk and Response*, Oxford University Press, 2004.
- [4] La gestion des sites et sols contaminés par la radioactivité, Contrôle (revue de l'Autorité de sûreté nucléaire), no 195, novembre 2012.
- [5] IAEA, Human consequences of the Chernobyl accident, A strategy for recovery, UN report, 6 février 2002.
- [6] Health effects of Tchernobyl accident, World Health Organization, 2006.
- [7] (a) International Chernobyl Portal. International Chernobyl Research and Information Network (ICRIN), IAEA, 2012 ;
(b) Map of contamination of the territory of Ukraine by plutonium isotopes (ICRIN).
- [8] NEA databank, OECD, 2006.
- [9] STUK, Finland, Radiation and nuclear safety authority, 21/10/2011. Chernobyl and Finland.
- [10] Three Mile Island, Les retombées lors de l'évacuation contrôlée des gaz contenus dans l'enceinte, 15 ans après l'accident, IRSN, http://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/Les-accidents-nucleaires/three-mile-island-1979.
- [11] IAEA team to Japan reports Fukushima findings, Fukushima Status reports – International Atomic Energy Agency (IAEA). 2011. Fukushima, International Atomic Energy Agency (IAEA). Final report, 23 mai 2013, 21 octobre 2013.
- [12] M. Bernat, *Les isotopes de l'uranium et du thorium et les terres rares dans l'environnement marin*, Orstom, Paris, France, 1975.
- [13] INPO, Special report on the nuclear accident at the Fukushima Daiichi nuclear power station, Institute of Nuclear Power Operations, novembre 2011.
- [14] A. Stohl, et al., Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant, determination of the source term, atmospheric dispersion and deposition, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 11 (2011) 28319–28394.
- [15] T. Matsui, Deciphering the measured ratios of iodine-131 to cesium-137 at the Fukushima reactors, arXiv:1105.0242v2 [nucl-th], 27 juin 2011.
- [16] NISA, Corradini M., University of Wisconsin, Energy Institute, The future of nuclear power after Fukushima 2013.
- [17] NISA, Radiological measures at Fukushima.
- [18] A. Carpentier, É.-É. Baulieu, É. Brézin, J. Friedel, L'accident majeur de Fukushima, considérations sismiques, nucléaires et médicales, *Académie des sciences, EDP Sciences, Les Ulis, France*, mars 2012.
- [19] D. McGeoghegan, et al., Mortality and cancer registration experience of the Sellafield workers known to have been involved in the 1957 Winslow accident, 50 years of follow up, *J. Radiol. Prot.* 30 (3) (2010) 407–431.
- [20] J.R. Cooper, K. Randle, R.S. Sokhi, *Radioactive Releases in the Environment: Impact and Assessment*, Wiley, 2003 [An assessment of the radiological impact of the Windscale reactor fire, October 1957].
- [21] R. Dautray, Documents 55, 56, 57, 58, 59, 60, 61, 62, 63, pp. 242–250, L'énergie nucléaire civile dans le cadre temporel des changements climatiques, rapport à l'Académie des sciences, Paris, décembre 2001, TEC Doc Lavoisier.
- [22] R. Dautray, J. Friedel, Y. Bréchet, *Réflexions sur l'avenir de l'énergie nucléaire*, C. R. Physique 13 (5) (2012) 480–518.
- [23] R. Guillaumont, et al., Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium, *Nuclear Energy Agency, Elsevier*, 2003.
- [24] National Analytical Management Programme, www.wipp.energy.gov/namp/. Training, Education, Chemistry of Actinides.
- [25] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, John Wiley, 1976.
- [26] J.-L. Boutard, S.L. Dudarev, Materials subjected to fast neutron irradiation, *C. R. Physique* 9 (3–4) (2008) 285–475.
- [27] R.C. Rodney, et al., Nuclear waste disposal—pyrochlore (A₂B₂O₇) : Nuclear waste form for the immobilization of plutonium and “minor” actinides, *J. Appl. Phys.* 95 (11) (2004) 5949–5971.
- [28] P. Alakseiv, Micro particle fuel, Mars reactor, 2010.
- [29] Greene Sherrell, Small modular reactors, 2010.
- [30] S. Villani, *Uranium Enrichment*, Springer-Verlag, 1979.
- [31] R. Dautray, J. Friedel, Y. Bréchet, F. Carré, Y. Bamberger, F. Gauché, E. Brézin, G. Martin, A. Pineau, Les fluides caloporteurs dans les réacteurs de puissance de IV^e génération, in : *Compte Rendu du Colloque de l'Académie des Sciences*, 19–20 février 2013, Éditions de Physique, Les Ulis, France, 2014.
- [32] D. Heuer, Incidence du choix des sels fondus sur la conception et le fonctionnement d'un réacteurs à sels fondus, échangeurs de chaleur, fluide intermédiaire, sûreté, LSPC, IN2P3, CNRS dans [31], 2013.
- [33] C. Lebrun, L. Matthieu, D. Heuer, A.L. Nuttin, Impact of the MSBR concept technology on long lived radio toxicity and proliferation resistance, LSPC, GEDEPEON, IN2P3/CNRS, 2007.
- [34] J.-M. Loiseaux, S. David, D. Heuer, A. Nuttin, La filière thorium, une option intéressante pour le nucléaire du futur, *C. R. Physique* 3 (7–8) (2002) 1023–1034 [dossier «Du combustible nucléaire aux déchets»].
- [35] A. Weinberg, E. Wigner, *The Physical Theory of Neutron Chain Reactors*, The University of Chicago Press, 1958.
- [36] M. Salvatores, ADS, physics principles and specificities, innovative options for nuclear energy, in honour of Raimond Castaing, Centre de physique, Les Houches, France, 27 avril–1^{er} mai 1998.
- [37] D. Grenèche, in : Thorium Energy Conference 2013 – ThEC13, CERN Globe of science and innovation, Genève, Suisse, 27–31 octobre 2013.
- [38] D. Mathers, Thorium fuel cycle, in : Thorium Energy Conference 2013 – ThEC13, CERN Globe of science and innovation, Genève, Suisse, 27–31 octobre 2013.
- [39] E. Merle-Lucotte, Physics of molten-salt fast reactor, in : Thorium Energy Conference 2013 – ThEC13, CERN Globe of science and innovation, Genève, Suisse, 27–31 octobre 2013.
- [40] Department of energy and climate change, the role of thorium in UK nuclear RD, Current trends and MSFR modelling, october 28, 2013 Thorium Energy Conference 2013 – ThEC13, CERN Globe of science and innovation, Genève, Suisse, 28 octobre 2013.
- [41] Madden P., Salanne M., Levesque M., Thorium molten salts, theory and practice, EVOL, Euratom project, 13 groups, UPMC, France and Oxford, UK, Thorium Energy Conference 2013 – ThEC13, CERN Globe of science and innovation, Genève, Suisse, 28 octobre 2013.
- [42] K. Sorensen, et al., Liquid fluoride thorium reactor development strategy, Flibe energy (USA), in : Thorium Energy Conference 2013 – ThEC13, CERN Globe of science and innovation, Genève, Suisse, 28 octobre 2013.
- [43] PACEN/CNRS (Programme sur l'aval du cycle et l'énergie nucléaire), www.cnrs.fr.
- [44] G. Aliberti, G. Palmiotti, M. Salvatores, T.K. Kim, T.A. Taiwo, M. Anitescu, I. Kodeli, E. Sartori, J.C. Bosq, J. Tommasi, Nuclear data sensitivity, uncertainty and target accuracy assessment for future nuclear systems, *Ann. Nucl. Energy* 33 (2006) 700–733.
- [45] Conférence CERN, Le thorium liquide, 28 octobre 2013.
- [46] M. Benedict, H. Levi, T. Pigford, et al., *Nuclear Chemical Engineering*, NucUSA, 1982.
- [47] E.J. Moniz, T.H. Moss, R.L. Pigford, Report to the American Physical Society by the study group on nuclear fuel cycles and waste management, *Rev. Mod. Phys.* 50 (1978) S1–S176.
- [48] S. Hecker, N. Englert, M.C. Miller, Nuclear non-proliferation, in : D.S. Ginley, D. Cahen (Eds.), *Fundamentals of Materials for Energy and Environmental Sustainability*, Cambridge University Press, 2012, Chapter 14.

- [49] W. Corwin, D. Wilson, Fluoride salt cooled high temperature reactor (FHR) materials challenges, in : FHR Workshop, 20 September 2010.
- [50] GEN IV forum, [2www.gen-4.org/](http://www.gen-4.org/).
- [51] M. Salvatores, The physics of transmutation in critical and subcritical reactors, *C. R. Physique* 3 (7–8) (2002) 999–1012 [dossier « Du combustible nucléaire aux déchets »].
- [52] Giuseppe Palmiotti, Massimo Salvatores, Monchai Assawaroongruengchot, Impact of the core minor actinide content on fast reactor reactivity coefficients, *J. Nucl. Sci. Technol.* 48 (4) (2011) 628–634.
- [53] Table of radioactive isotopes, ie.lbl.gov/toi/nucleide.asp?iZA=91023.
- [54] M. Allibert, V. Ghetta, D. Heure, Merle-Lucotte, LPSC-IN2P3-CNRS/UJF/Grenoble INP, groupe physique des réacteurs, Le MSFR, une réelle innovation, janvier 2011.
- [55] P. Reuss, *Éléments de neutronique*, CEA/INSTN, collection d'enseignement.
- [56] J. Bussac, P. Reuss, *Traité de neutronique*, Hermann, 1985, p. 395.
- [57] É. Brézin, Du combustible nucléaire aux déchets, recherches actuelles, *C. R. Physique* 3 (7–8) (2002) 759–1088.
- [58] Epelbaum, H.W. Hammer, U.G. Meissner, Modern theory of nuclear forces, *Rev. Mod. Phys.* 81 (2009) 1773–1825.
- [59] C. Madic, M. Lecomte, P. Baron, B. Boullis, Separation of long-lived radionuclides from high active nuclear waste, *C. R. Physique* 3 (7–8) (2002) 797–812 [dossier « Du combustible nucléaire aux déchets »].
- [60] S. Delpech, Pyroprocessing, in : Thorium Energy Conference 2013 – ThEC13, CERN Globe of science and innovation, Genève, Suisse, 27–31 octobre 2013.
- [61] Handbook of Chemistry and Physics, 60th edition, CRC Press, Boca Raton, FL, États-Unis.
- [62] C. Madic, Overview of the hydro-metallurgical and pyro-metallurgical processes studied worldwide for the partitioning of high active nuclear wastes, in : NEA/OECD 6th Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Madrid, Espagne, 11–13 décembre, 2000.
- [63] S. Delpech, E. Merle-Lucotte, D. Heuer, M. Allibert, V. Ghetta, C. Le-Brun, X.B. Doligez, G. Picard, Reactor physics and reprocessing scheme for innovative molten salt reactor system, *J. Fluorine Chem.* 130 (1) (2009) 11–17.
- [64] N.H. Briggs, et al., Summary of experiences with high temperature thermo couples used in the ORNL-GCR program fuel irradiation, ORNL, gov. 1964.
- [65] Haynes international, High Temperature Alloys, www.haynesintl.com.
- [66] Arian Pregenzer, Sandia Laboratory, The Freeman Sogli Institute for international studies at Stanford University, 2013.
- [67] R.B. Lindauer, Processing of the MSRE flush and fuel salts, ORNL, – TM-2578, 1969.
- [68] M. Salvatores, *C. R. Physique* 3 (2002) 999–1012.
- [69] C. Forsberg, et al., Liquid salt applications and molten salt reactors, in : Revue générale nucléaire, SFEN, International Congress on the Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP'07), Nice, France, 13–18 mai 2007.
- [70] Fluoride salt cooled high temperature reactor agenda, Oak ridge National laboratory, 20 September 2010.
- [71] D. Williams, Salt Chemistry, 2010.
- [72] P.N. Haubenreich, J.R. Engel, Experiment with the molten salt reactor, *Nucl. Appl. Technol.* 8 (1970) 118–136.
- [73] V. Getta, les caloporteurs sel fondu. Mise en œuvre dans les réacteurs à neutrons rapides, LPSC, Grenoble, Université Joseph-Fourier, PACEN CNRS, Institut Carnot, énergies du futur, EVOL, NEEDS, 2013 dans [31].
- [74] C.W. Forsberg, P.F. Peterson, Dave Williams, Salt chemistry, Liquid salt cooling for advanced high temperature reactors, in : ORNL/ICAPP 2005, Proceedings of the International Congress on Advances in Nuclear Power Plants, Seoul, Korea, 15–19 mai 2005, www.ornl.gov.
- [75] L.C. Lichty, *Combustion Engine Process*, MacGraw–Hill, 1967 [Cycle de George Brayton (1830–1892)].
- [76] C. Forsberg, Is hydrogen the future of nuclear energy ? in : American Nuclear Society, International Topical Meeting on the Safety and Technology of Nuclear Hydrogen Production, Boston, MA, États-Unis, 24–28 juin 2007.
- [77] Walker J. Samuel, *Three Mile Island, A Nuclear Crisis in Historical Perspective*, University of California Press, Berkeley, CA, États-Unis, 2004.
- [78] Accident de la centrale nucléaire de Fukushima–Daiichi. État des lieux deux ans après l'évènement, IRSN, 2014.
- [79] P. Renaud, et al., Contamination of Japanese foodstuffs of terrestrial origin after the Fukushima nuclear accident and related dos assessments, part foodstuff contamination, *Radioprotection* 48 (4) (2013) 493–500.
- [80] R. Dautray, Sécurité et utilisation hostile du nucléaire civil. De la physique à la biologie. Rapport à l'Académie des sciences, Paris, juin 2007.
- [81] Le programme PHEBUS, IRSN, 21/01/2014.
- [82] T. Haste, F. Payot, P.D.W. Bottomley, Transport and deposition in the Phébus FP circuit, *Ann. Nucl. Energy* 61 (2013) 102–121.
- [83] Impact environnemental d'un accident nucléaire. Comparaison entre Tchernobyl et Fukushima–Daiichi, IRSN, 2014.
- [84] J.-B. Thomas, Nuclear power plant types and the management of plutonium and minor actinides – in search of fuel cycle flexibility, *C. R. Physique* 3 (7–8) (2002) 783–796 [dossier « Du combustible nucléaire aux déchets »].
- [85] Small nuclear power reactors, World Nuclear Association, November 2013, www.world-nuclear.org.
- [86] F. Gros, et al., Problems associated with the effects of low doses of ionising radiations, Académie des sciences, rapport n° 38, février 1997, Tec Doc Lavoisier, Cachan, France.
- [87] R. Dautray, Les isotopes du plutonium et leurs descendants dans le nucléaire civil, rapport à l'académie des sciences, Paris, Tec Doc, Lavoisier, Cachan, France, mai 2005.
- [88] J.R. Keiser, Status of Tellurium N studies in MFS, ORNL/TM-2002 (H N is strongly affected by oxidation potential of salt, ORNL-DWG 77-4680, ORNL/TM-5783, May 1977.
- [89] R. Guillaumont, Communication personnelle.
- [90] G. Aliberti, et al., Impact of nuclear data uncertainties on transmutation of actinides in accelerator driven assembly, CEA, DEN.
- [91] C.M. Lederer, V.S. Shirley, et al., *Table of Isotopes, seventh edition*, Brookhaven National Laboratory, Wiley, 1978.
- [92] B. Corwin, D. Wilson, High temperature salt cooled, materials challenges, 2010.
- [93] G. Yoder, Facilities and components, 2010.
- [94] G. Yoder, Fluorine salt test loop facility at Oak RidgeWhite H., Haynes international capabilities, Hastelloy N, 2010.
- [95] C. Forsberg, MIT, 2010.
- [96] D. LeBlanc, Molten salt reactors, a new beginning of an old idea, *Nucl. Eng. Des.* 240 (6) (2010) 1644–1656.
- [97] Oak Ridge, Boucles, corrosion, LSMRE.
- [98] J.T. Venard, Tensile and creep properties of INOR-8 for the molten salt reactor experiment, Oak Ridge National Laboratory, ORNL-TM-1017, 1965.
- [99] J.T. Venard, The mechanical properties of INOR-8, Oak Ridge National laboratory, ORNL-2860, 1961.
- [100] F.W. Fink, Corrosion investigation of INOR-8 under fluorination conditions, Science Gov., 1961.
- [101] M.W. Rosenthal, et al., Current progress in molten salt reactor development, *At. Energy Rev.* IX (1971) 601–650.
- [102] R.B. Briggs, Tritium in molten salt reactor, *React. Technol.* 14 (1971–1972) 335–342, Oak Ridge National Laboratory, Tennessee, États-Unis.
- [103] F. Gunsing, Nuclear data for MSRE and thorium, in : Thorium Energy Conference 2013 – ThEC13, CERN Globe of science and innovation, Genève, Suisse, 27–31 octobre 2013.
- [104] E. Merle-Lucotte, et al., Introduction to the physics of the molten salt fast reactor, LPSC/Grenoble and al, IN2P3, PACEN, NEEDS, Thorium Energy Conference 2013 – ThEC13, CERN Globe of science and innovation, Genève, Suisse, 28 octobre 2013.

- [105] EVOL, Evaluation and viability of liquid fuel fast reactor, FP7 (2011–2013) Euratom/Rosatom cooperation.
- [106] A.M. Weinberg, R.C. Briantz, Molten Fluorides as Power Reactor Fuels, ORNL report, 13 juin 1957.
- [107] Charles W. Forsberg, Per F. Peterson, Paul S. Pickard, Molten-salt-cooled advanced high-temperature reactor for production of hydrogen and electricity, *Nucl. Technol.* 144 (3) (2003) 289–302.
- [108] M. Anderson, Heat transfer to water at supercritical pressures in a circular and square annular flow geometry, *Int. J. Heat Fluid Flow* 29 (1) (2008) 156–166.
- [109] W.L. Reckley, Nuclear Safety and Regulatory Considerations for Nuclear Hydrogen Production, US Nuclear Regulatory Commission, États-Unis, 2010.
- [110] C. Anderson, Technology University of Wisconsin, 2010.
- [111] G. Bell, Fuel development, 2010.
- [112] J.H. Devan, Effect of alloying additions on corrosion behaviour of nickel molybdenum alloys in fuse fluoride mixture.
- [113] Chiaveri E., et al., the n₂ collaboration, CERN, 28 octobre 2013, www.cern.ch/ntof, Thorium Energy Conference 2013 – ThEC13, CERN Globe of science and innovation, Genève, Suisse, 28 octobre 2013.
- [114] J. Laidler, Pyro chemical separations technologies envisioned for the US AT of waste system, in : NEA/OECD, Workshop on Pyro Chemical Separations, Avignon, France, 14–15 mars 2000.
- [115] Wright S. Brayton, Power cycles, 2010.
- [116] D.F. Winchell, New web-based access to nuclear structures datasets, Brookhaven National Laboratory, États-Unis [BNL-73537-2005-CP].
- [117] M.T. Ménager, J. Garnier-Laplace, M.I. Goyffon, Toxicologie Nucléaire et Environnementale, Éditions Lavoisier, Cachan, France, 2014.
- [118] D. Mathers, The thorium fuel cycle, NNL (UK's National Nuclear Laboratory), EC, 2013.
- [119] MARS, Minor actinides recycling in molten salt, Rosatom.
- [120] R.J. Levin, Incidence of thyroid cancer in residents surrounding the Three Mile Island nuclear facility, *Laryngoscope* 118 (4) (2008) 618–628.
- [121] K.O. Kvashnina, S.M. Butorin, Role of resonant inelastic X ray scattering in high-resolution core-level spectroscopy of actinide materials, *Phys. Rev. Lett.* 111 (2013) 253002, arXiv:1310.4004.
- [122] (a) P. Renaud, et al., Contamination of Japanese foodstuffs of terrestrial origin after the Fukushima nuclear accident and related dose assessment, part 1: food stuff contamination, *Radioprotection* 48 (4) (2013) 493–509 ;
(b) P. Renaud, et al., Contamination of Japanese foodstuffs of terrestrial origin after the Fukushima nuclear accident and related dose assessment, part 2: ingestion dose assessment for the first year after the accident, *Radioprotection* 49 (1) (2014) 17–22.
- [123] J.-C. Brachet, et al., LOCA and beyond studies of nuclear fuel cladding tube materials at CEA, Berkeley LWR accident testing meeting, organized by ORNL, Berkeley, Californie États-Unis, 1–2 mai 2012.
- [124] G.S. Was, Fundamentals of Radiation Materials Science, Metals and Alloys, Springer, 2007.