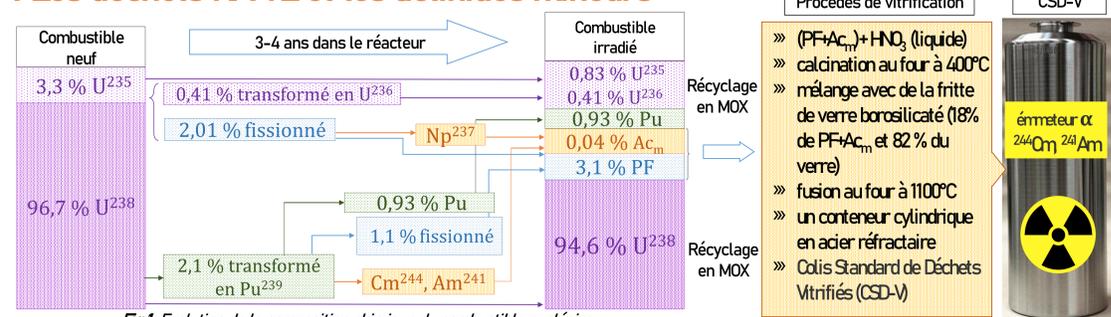


Introduction

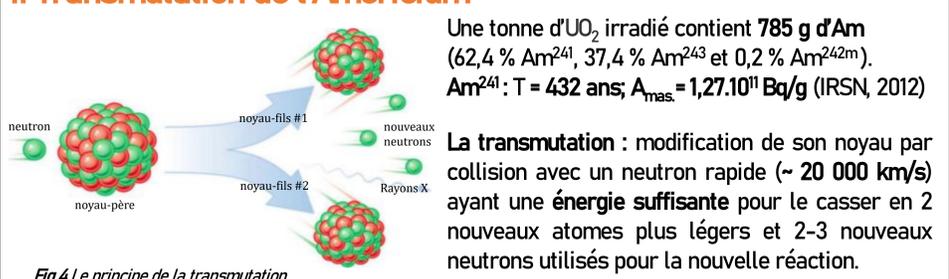
Après son séjour en réacteur nucléaire, le combustible utilisé de dioxyde d'uranium (UO_2) est composé de 96 % de produits revalorisables (95 % d' U^{235} et 238 + 1 % du Pu) pouvant être retraité pour la fabrication du combustible MOX (Mixed OXidized). Les 4% restants correspondent à des Produits de Fission (PF) et des Actinides mineurs ($Ac_m \Rightarrow Np, Am, Cm$) qui représentent des déchets HAVL (Haute Activité Vie Longue). En France, la loi Bataille du 30 décembre 1991, appuyé sur la loi du 28 juin 2006, définit un axe de recherche, dont le pilotage a été confié au CEA, sur la transmutation des déchets à vie longue issus des centrales nucléaires. Il est alors envisagé d'utiliser la transmutation pour transformer des isotopes radioactifs à vie longue, en isotopes radioactifs à vie courte ou en isotopes stables, en vue de réduire la dangerosité de ces déchets radioactifs et d'améliorer leur gestion. Cette solution innovante rencontre encore des obstacles techniques. Aujourd'hui il n'est toujours pas possible d'effectuer la transmutation des Ac_m dans les réacteurs du parc nucléaire français (filière REP (Réacteurs à Eau Pressurisée)), mais cela s'effectue dans les RNR (Réacteurs à Neutrons Rapides).

La transmutation des actinides mineurs comme un maillon essentiel d'une stratégie nucléaire française ou un rêve scientifique?

I Les déchets HA VL et les actinides mineurs



II Transmutation de l'Américium



4190 m³ : le volume de CSD-V soit 0,2% de tous les déchets radioactifs français (ANDRA, 2019) représentant 98 % de la radiotoxicité totale (due à la présence des Ac_m). Après 300 ans, près de 99 % de la radiotoxicité résiduelle et de la puissance thermique des déchets vitrifiés, sont dus à la présence d'Am et de ses descendants (Np^{237}, Np^{239}). Parmi tous les Ac_m , il est celui qui rend la gestion des colis HAVL difficile. Il est donc la cible considérée prioritaire dans les recherches et les travaux effectués par CEA. La transmutation de l'Am est susceptible d'apporter des gains notablement plus importants que celle des autres Ac_m : la réduction de la radiotoxicité et de la puissance thermique.

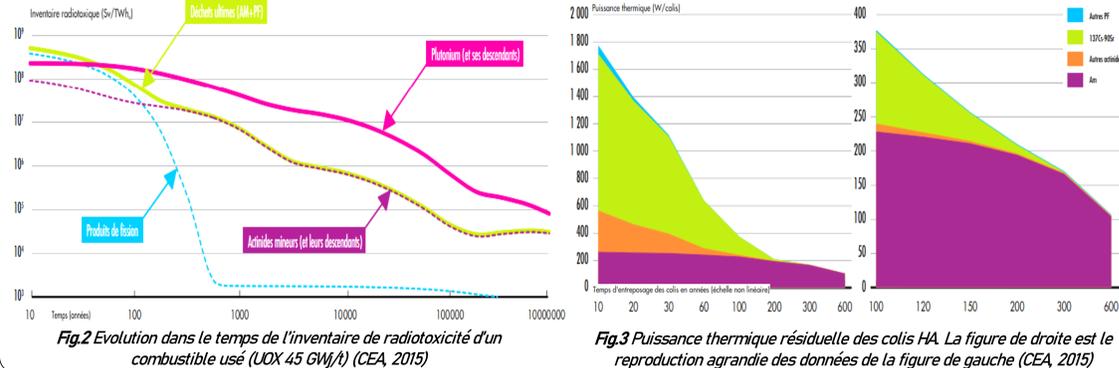
Les études ont été menées pour les couvertures chargées en Am (CCAm), placées en périphérie du cœur de RNR.

Issus des nombreux R&D, 2 scénarios ont été développés :
 Scénario « C » avec 40% du parc en RNR
 Scénario « D » avec 100% du parc en RNR

Inventaire Am	Palier C	Palier D1
Sans transmutation	+2,2 t/an	+1,4 t/an
1 rangée de CCAm à 10%	+2,0 t/an	Stabilisé
2 rangées de CCAm à 10%	+1,5 t/an	-0,6 t/an
2 rangées de CCAm à 15%	+0,9 t/an	-1,3 t/an

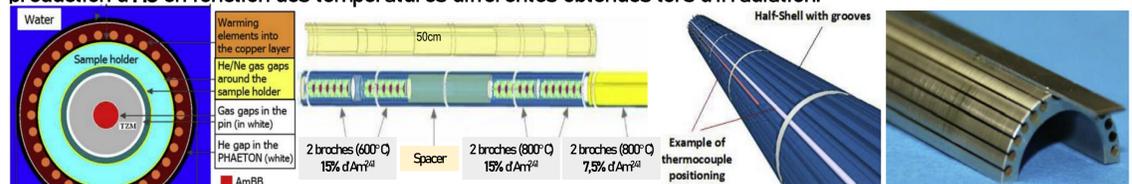
Fig.5 Inventaire en Am selon les différents options envisagées pour la transmutation (CEA, 2015)

Aujourd'hui, sur le territoire français, la mise en œuvre de la transmutation n'est approuvée et efficace que pour une contribution de RNR majoritaire du parc.



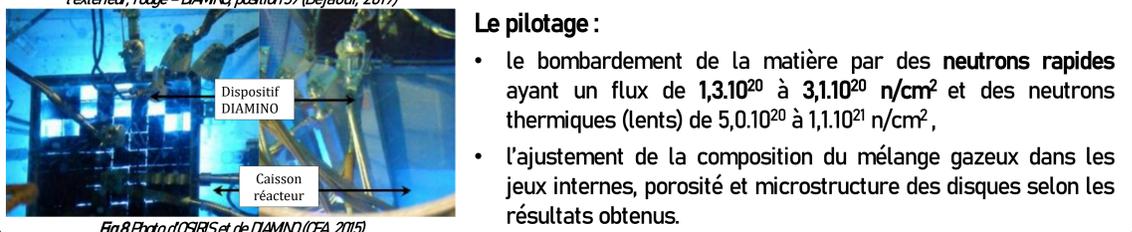
III Expérience DIAMINO au sein d'OSIRIS

De février 2014 au décembre 2015 L'expérience DIAMINO (faisant partie des 4 projets internationaux gouvernés par le CEA) a été réalisée dans le réacteur expérimental OSIRIS situé sur le site du CEA de Saclay. Elle vise à étudier le gonflement et la microstructure du combustible (UAm)₂ en CCAm ainsi que le dégagement gazeux et les taux de production d'He en fonction des températures différentes obtenues lors d'irradiation.



Les six broches contenant chacune les 6 disques (d = 4,5 mm, h = 1,5 mm) chargés en Am^{241} ont été irradiées à l'extérieur du cœur du réacteur (position J9) jusqu'à 134 EFPD (Effective Full Power Day) pendant les cycles F270-F276.

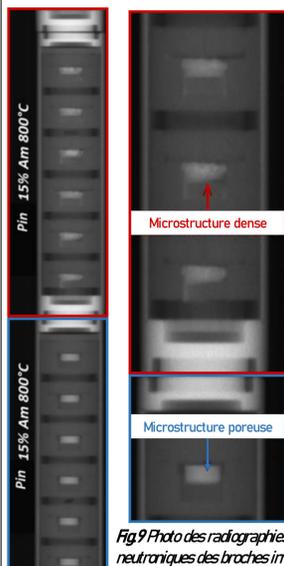
Ce dispositif est conçu pour irradier des matériaux et combustibles à haute température et en ambiance inerte. Les broches ont été exposées à plus de 600°C.



Le pilotage :

- le bombardement de la matière par des neutrons rapides ayant un flux de $1,3.10^{20}$ à $3,1.10^{20}$ n/cm² et des neutrons thermiques (lents) de $5,0.10^{20}$ à $1,1.10^{21}$ n/cm²,
- l'ajustement de la composition du mélange gazeux dans les jeux internes, porosité et microstructure des disques selon les résultats obtenus.

IV Résultats



- une forte production d'He (1,7-6,7 mg/cm³ selon les disques) est associée à la transmutation de l' Am^{241} (désintégration α de Cm^{242}),
- une augmentation significative de la puissance des disques au cours de l'irradiation due à la transmutation (de 100-170 W/cm³ à 310-560 W/cm³), selon leur positionnement dans l'appareil,
- la puissance fissile levée a un impact sur le gradient de température dans les disques chargés d'Am, mais peu sur les autres parties du crayon,
- les disques avec une microstructure poreuse ont conservé leur forme et leur géométrie d'origine.

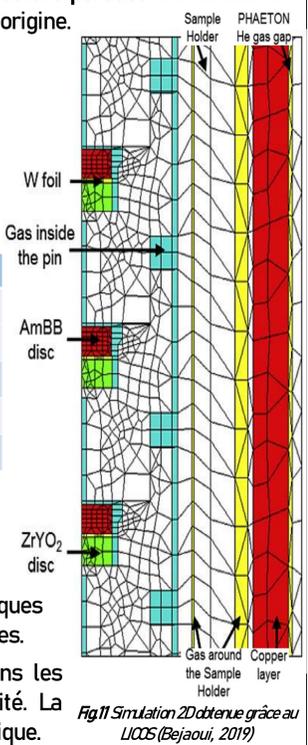
Microstructure	Teneur en Am	Densité relative	Porosité ouverte	Composition nucléotidique (atome/cm ³)			
				Am^{241}	U^{238}	U^{235}	U^{234}
Standard	15,4%	95,7%	1,6%	$3,46.10^{21}$	$1,91.10^{22}$	$1,40.10^{20}$	$1,17.10^8$
Optimisée	13,7%	82,0%	13,0%	$2,63.10^{21}$	$1,67.10^{22}$	$1,23.10^{20}$	$1,03.10^8$
Standard	7,1%	96,7%	0,2%	$1,64.10^{21}$	$2,16.10^{22}$	$1,59.10^{20}$	$1,33.10^8$
Optimisée	7,4%	84,9%	10,9%	$1,50.10^{21}$	$1,88.10^{22}$	$1,38.10^{20}$	$1,16.10^8$

Fig.10 L'ajustement de la composition et la physique des disques (Bejaoui, 2019)

L'expérience a démontré que les taux de transmutation de l'Am pour les broches N¹ et N² étaient de 28 % et 56 %. Alors que les taux de fission pour les mêmes étaient de 0,5 % et 1,8 %.

A la suite : cela met en évidence que les neutrons thermiques favorisent les fusions contre les fissions chez les neutrons rapides.

Une partie des études de CCAm reste réalisable, a priori, dans les installations existantes soumises au maximum de leur capacité. La réalisation du projet requiert encore une certaine ampleur technique.



Conclusion

Le spectre des neutrons rapides ouvre la possibilité de transmuter les actinides mineurs, et permet de réduire la dangerosité à long terme de ces radionucléides dans les déchets HAVL, et par conséquent d'optimiser leur gestion. Les études sur la transmutation s'intéressent aux Couvertures Chargées en Américium, qui consistent à opérer en périphérie du cœur des RNR. Pour assurer la gestion durable des matières, le concept de CCAm seul ne peut avoir un sens qu'en accompagnant la stratégie de multirecyclage du plutonium (CEA, 2015). Cela crée un double enjeu des RNR qui sont capables de répondre aux objectifs demandés : la présence du flux des neutrons rapides, la possibilité de multi recycler le plutonium. Aujourd'hui, les irradiations envisagées pendant l'expérience DIAMINO permettront de faire progresser le développement du concept de CCAm. A plus long terme, pour approfondir les connaissances, de nouvelles installations (les nouveaux RNR) ainsi que les nouveaux investissements (les études semi-industrielles, les essais industriels) seront nécessaires pour assurer la fabrication des combustibles associés, allant jusqu'aux assemblages complets.

Les résultats d'expérience DIAMINO ne composent qu'une des premières étapes d'avancement de la démarche scientifique de la transmutation de l'Am qui font partie du futur domaine nucléaire.

Baneshad, A., Safarzadeh, O., 2021. Effects of the move towards Gen IV reactors in capacity expansion planning by total generation cost and environmental impact optimization. Nuclear Engineering and Technology 53, 1369-1377. <https://doi.org/10.1016/j.net.2020.07.005>
 Bejaoui, S., Helfer, T., Bendotti, S., Lambert, T., 2019. Description and thermal simulation of the DIAMINO irradiation experiment of transmutation fuel in the OSIRIS reactor. Progress in Nuclear Energy 113, 28-44. <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2019.01.012>
 CEA, 2015. Avancées des recherches sur la séparation-transmutation et le multi-recyclage du plutonium dans les réacteurs à flux de neutrons rapides. [Paris] Gif-sur-Yvette.
 CEA, 2008. Les combustibles nucléaires, E-den. Ed. "Le Moniteur" CEA, [Paris] Gif-sur-Yvette.
 CEA, 2005. Séparation et transmutation des radionucléides à vie longue AXE I RAPPORT FINAL. [Paris] Gif-sur-Yvette.
 Delbecq, J.-M., Carlier, B., Chabert-Korotewski, C., Eschbach, R., Favet, D., Garat, V., Garzenne, C., Gauthier, L., Laugier, F., Zaetta, A., 2015. Cycle du combustible des réacteurs nucléaires : de la 3e à la 4e génération.
 La 4ème génération et les déchets nucléaires - Assemblée nationale, Enjeux économiques de la filière industrielle énergétique - [WWW Document], n.d. URL <https://www2.assemblee-nationale.fr/15/tes-groupes-d-etudes/tes-comptes-rendus/comptes-rendus-ge-enjeux-economiques-de-la-filieres-industrielle-energetique/la-4eme-generation-et-les-dechets-nucleaires> (accessed 12.13.22).