

Séparation des produits de fission

Par A. RAGGENBASS

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay

Zusammenfassung

Die Rückstände von der Aufarbeitung nuklearer Brennstoffe stellen einen bedeutenden Vorrat von radioaktiven Produkten dar, der mit der Zahl der in Betrieb genommenen Reaktoren immer größer werden wird.

Die Möglichkeit einer Verwendung dieser Strahlungsreserve hat zu zahlreichen Studien über die verschiedenen Kernspaltungsprodukte in diesen Rückstandslösungen geführt.

Ihre charakteristischen Eigenschaften, wie Art der Strahlung, Zerfallsperiode, chemische Eigenschaften usw., ergeben in der Tat die verschiedensten Verwendungsmöglichkeiten:

Caesium 137: Gammagraphie, Teletherapie, industrielle Verwertung der γ -Strahlung (Polymerisation, Vernetzung).

Strontium 90: Dicken-Eichmasse.

Promethium 147: Phosphoreszierende Produkte, elektrische Batterien.

Krypton 85: Beleuchtungskörper.

Cerium 144: Wärmequellen.

Es wurden deshalb Trennungsmethoden für diese verschiedenen Produkte ausgearbeitet und Installationen entwickelt, die erlauben, intensive Strahlenquellen unter dem notwendigen Strahlenschutz für Mensch und Material zu handhaben. Die hier freiwerdenden, sehr beträchtlichen Strahlungsenergien stellen auch den Chemikern vor neue Probleme, wie das der Zerstörung der Reagenzien und Lösungsmittel, die Phänomene der Oxydo-Reduktion und andere mehr. Diese radioaktiven Produkte kommen in der Mehrzahl in Form versiegelter Strahlungsquellen zur Anwendung, deren Herstellung, Kontrolle und Handhabung gewisse technologische Voraussetzungen erfordern. Die Entwicklungspläne für die Gewinnung nuklearer Energie lassen voraussehen, daß in nicht allzuferner Zeit außerordentlich große Mengen von Kernspaltungsprodukten vorhanden sein werden, die in nicht zu unterschätzender Weise auf die Gesteungskosten der Kernenergie einwirken werden (Lagerung, Konditionierung). Schon jetzt existieren Schätzungen, die eine Behandlung der sich aus Lagerung und Verbrauch solcher Produkte ergebenden Probleme auf weite Sicht erlauben.

La découverte de la fission du noyau d'uranium s'insère logiquement dans la remarquable suite de découvertes qui, entre 1930 et 1945, ont jeté les bases de l'énergie nucléaire :

1932 : découverte de l'eau lourde par UREY, découverte du neutron par CHADWICK et JOLIOT.

Janvier 1934 : découverte de la radioactivité artificielle par les rayons α , puis par les neutrons.

FERMI eut l'idée d'essayer de former des transuraniens par action des neutrons sur le dernier élément connu de la classification de MENDELEW. Dans cette voie, HAHN et STRASSMAN en 1934, puis JOLIOT, L. MEITNER et FRISCH mirent clairement en évidence un phénomène : la rupture du noyau de l'uranium suivant immédiatement la capture d'un neutron. JOLIOT, HALBAN et KOWARSKI montrèrent que cette rupture libère des neutrons, et qu'il y avait alors possibilité théorique d'une réaction en chaîne.

En 1940, NIER isolant les premiers microgrammes d'uranium 235 montra que s'était cet isotope de l'uranium qui était responsable de la fission.

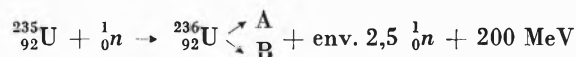
Les bases théoriques de l'énergie atomique étaient établies et il s'en suivit le développement que nous connaissons tous.

La fission

L'uranium comprend pratiquement deux isotopes : l'isotope 238 dont l'abondance relative est de 99,2%, l'isotope 235 seul responsable de la réaction de fission dont l'abondance relative est de 0,7%.

Les neutrons émis dans la fission ont une énergie de quelques MeV. Si on les ralentit jusqu'à une vitesse de l'ordre de 0,01 à 0,1 MeV, ils acquièrent une affinité beaucoup plus grande pour l'uranium 235 et la pile peut alors diverger.

Chaque noyau d'uranium 235 captant un neutron :



la probabilité de formation de A (et par conséquent de B) n'est pas la même suivant la masse de A.

La fission est préférentiellement dissymétrique, ainsi que l'indique le cliché, et les proportions les plus grandes

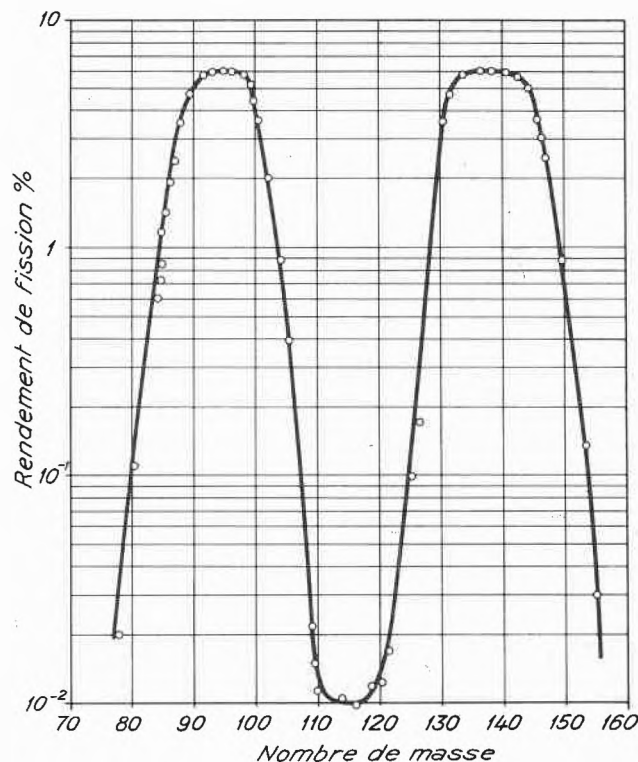
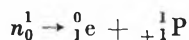


Fig. 1

fournies par une masse A, sont de 6,5 % (nombre A formé pour 100 noyaux d'uranium 235 détruits).

La stabilité du noyau atomique est assurée par la proportion neutron/proton et l'on sait que ce rapport passe de 1, pour les éléments les plus légers, à 1,6 pour l'élément le plus lourd, c'est-à-dire l'uranium.

Les deux fragments formés par la fission vont donc présenter un excès de neutrons, donc seront instables, donc radioactifs. Ils vont tendre vers une stabilité plus grande par désintégration successive bêta (en effet, une désintégration bêta équivaut à la transformation d'un neutron en proton) :



pour chaque type de fission possible, il y aura donc 2 chaînes ou familles d'éléments radioactifs : chaînes plus ou moins longues se terminant, soit par un isotope stable, soit par un corps radioactif de période longue.

Ce qu'il se passe pratiquement dans une pile

Très rapidement, les différentes chaînes radioactives de fission se mettent à l'équilibre, sauf pour les corps de période longue et les corps stables qui s'accumuleront dans le temps.

Lorsqu'on laisse refroidir des éléments combustibles, très rapidement les corps de période courte disparaissent et il ne reste, soit que les corps stables, soit des corps de période suffisamment longue pour exister encore après le retraitement des éléments combustibles.

Examinons ces derniers produits de fission

Ce sont pratiquement tous les corps radioactifs de période supérieure à 1 mois (tableau 1).

Ajoutons à cette liste le krypton 85, gaz rare de période 10,6 an qui fournit un rayonnement bêta pur de 0,67 MeV.

Les produits de fission et les piles

Au bout d'un certain temps de marche et avant que l'uranium 235 soit entièrement consommé, il est nécessaire actuellement d'arrêter les piles et de traiter les éléments combustibles.

En effet, l'accumulation de produits de fission de forte section de capture diminue la réactivité ; en outre, l'action combinée de différents facteurs (fluage, effet de désorganisation des cristaux par le rayonnement, gonflement du métal sous l'effet des gaz de fission accumulés) limite la vie des éléments combustibles.

Tous les traitements consistent en une dissolution des éléments combustibles, puis une extraction par solvants permettant de récupérer l'uranium et le plutonium formé.

Au cours de ce traitement, les produits de fission sont soit dégagés, comme les gaz rares de fission (krypton 85 et xénon), soit restés dans les solutions épuisées de leur uranium. Ces solutions sont concentrées et stockées.

Quantités de produits de fission disponibles

Le tableau 2 donne les quantités de produits de fission radioactifs fournis par la désintégration d'un kilo d'uranium 235 (énumération des produits).

Tableau 1: Caractéristiques radioactives des produits de fission à vie longue

Radioélément	Période	Corps en équilibre	Période	Rayonnement des deux		Poids du curie	Poids du curie total M + isotope stable
				β	γ		
^{137}Cs	33 ans	^{137}Ba	2,6 min	0,53 95% 1,19 5%	0,66	12,7 mg	31,7 mg
^{87}Rb ^{90}Sr	$6,3 \cdot 10^{10}$ ans 20 ans	^{90}Y	62 h	0,13 0,6 MeV 2,2 MeV	pas de γ	5,1 mg	9,5 mg
^{144}Ce ^{147}Pm	290 jours 4,4 ans	^{144}Pr ^{147}Sm	17 min stable	0,35 0,22	0,2 1,2 pas de γ	0,3 mg 1,1 mg	2 mg 1,1 mg
^{155}Eu ^{106}Ru	2 ans 1 an	^{155}Go ^{106}Rh	stable 30 sec	2,3 18% 3,55 82%	0,51 17% 0,73 17%	0,87 mg 0,3 mg	5 mg 26 mg
^{98}Tc	10 ⁶ ans			0,3 MeV	pas de γ	280 g	280 g

Tableau 2: Rendement de fission et limite de tolérance des principaux produits de fission

Quantité de P.F. provenant de 1 kg de ²³⁵ U			Rayonnement γ utilisable en Watt	Limite de tolérance en $\mu\text{C/ml}$	
	en grammes	en curies		air	eau
¹³⁷ Cs	96 g	3,02 · 10 ³ C	9 W	2 · 10 ⁻⁷	1,5 · 10 ⁻³
⁹⁰ Sr	35 g	3,7 · 10 ³ C	40 W	2 · 10 ⁻¹⁰	8 · 10 ⁻⁷
¹⁴⁴ Ce	102 g	51 · 10 ³ C		2 · 10 ⁻⁹	8 · 10 ⁻³
¹⁴⁷ Pm	16,2 g	1,5 · 10 ³ C		2 · 10 ⁻⁷	1
¹⁵⁵ Eu	1,19 g	0,23 · 10 ³ C	2,2 W	3 · 10 ⁻⁸	0,1
¹⁰⁶ Ru	57,2 g	2,2 · 10 ³ C			
⁹⁹ Te	29 g	90 C			

Figurent en regard les limites de tolérance admissibles dans l'eau et dans l'air des mêmes produits de fission.

Pour connaître les quantités de produits de fission fournis par l'emploi de l'énergie nucléaire en Europe, prenons pour base de calcul les prévisions en besoins d'uranium européen fournies par l'O. E. C. E. pour l'année 1965.

Ce sont :

5000 tonnes d'uranium naturel représentant 35 tonnes de ^{235}U ,

500 tonnes d'uranium enrichi à 2% représentant 10 tonnes de ^{235}U .

Cet uranium 235 sera brûlé à 50%, ce qui représente une consommation annuelle d'environ 20 tonnes d'uranium 235 et donne, vers 1965, une production annuelle multipliant par 20000 les chiffres du tableau.

Ces produits de fission par l'obligation qu'ils créent d'un stockage onéreux sont une charge additionnelle au coût de l'énergie nucléaire.

Il serait donc très intéressant de les utiliser afin de les valoriser (tableau 3 et 4).

Utilisations possibles de ces produits de fission

Distinguons les applications existantes des applications espérées dans l'avenir.

Césium 137: émetteur gamma de 0,66 MeV, peut concurrencer le ^{60}Co dans ses applications; actuellement, il est employé en gammagraphie et un certain nombre d'unités de téléthérapie au césium 137 utilisant des sources de plusieurs milliers de curies ont été construites dans les pays anglo-saxons.

Les atouts du césium par rapport au cobalt 60 sont une période plus grande (33 ans contre 5 ans) et un rayonnement plus mou nécessitant une protection plus faible, mais exigeant par contre une plus grande quantité de curies de césium pour produire le même effet que le cobalt.

Ses applications possibles dans l'avenir sont les applications industrielles du rayonnement gamma (stérilisation, polymérisation et greffage des matières plastiques, cracking...).

Krypton 85 – Prométhéum 147: émetteurs bêta pur de rayonnement assez mou, peuvent fournir des applications importantes dans le domaine de la luminescence; le krypton 85, particulièrement intéressant en raison de sa faible toxicité relative (des lampes au krypton pour balisage existent à l'heure actuelle).

Strontium 90: émetteur bêta pur d'une énergie de 2,2 MeV, permet actuellement un certain nombre d'applications intéressantes dans le domaine de la mesure industrielle (jauges d'épaisseur, etc...). Malheureusement ces applications utilisent de faibles quantités de strontium.

On peut espérer que l'utilisation du rayonnement X de freinage, provenant du rayonnement bêta du strontium, fournira de nouveaux débouchés.

Il est possible que, dans certains cas, des utilisations en radiochimie (greffage des matières plastiques) soient possibles à l'aide du rayonnement bêta (communication à la Conférence de Varsovie sur les applications industrielles du rayonnement).

Tableau 3: Emetteurs gamma existant dans les solutions de produits de fission disponibles à Marcoule

Nuclide	Activités en curies disponibles à différents moments après sortie de l'usine plutonium									
	$t = 0$		$t = 1 \text{ an}$		$t = 2 \text{ ans}$		$t = 5 \text{ ans}$		$t = 10 \text{ ans}$	
	total	%	total	%	total	%	total	%	total	%
^{95}Zr	$3,6 \cdot 10^5$	0	$7,2 \cdot 10^3$							
^{95}Nb	$7 \cdot 10^5$	9	$1,4 \cdot 10^4$	1						
^{106}Rh	$3,1 \cdot 10^5$	9	$1,5 \cdot 10^5$	11	$7,5 \cdot 10^4$	11	$5,7 \cdot 10^4$	12	$3,1 \cdot 10^2$	
^{137}Ba	$2,8 \cdot 10^5$	8	$2,7 \cdot 10^5$	22	$2,6 \cdot 10^5$	39	$2,5 \cdot 10^5$	80	$2,2 \cdot 10^5$	100
^{144}Pr	$1,9 \cdot 10^6$	4	$8 \cdot 10^5$	66	$3,4 \cdot 10^5$	50	$2,5 \cdot 10^4$	8	$3,4 \cdot 10^2$	
Total	$3,6 \cdot 10^6$		$1,2 \cdot 10^6$		$6,7 \cdot 10^5$		$5,1 \cdot 10^5$		$2,2 \cdot 10^5$	

Tableau 4: Puissance dissipée sous forme de rayonnement dans les solutions de produits de fission disponibles à Marcoule

Nuclide	Puissance γ disponible en watts à différents moments après sortie de l'usine plutonium									
	$t = 0$		$t = 1 \text{ an}$		$t = 2 \text{ ans}$		$t = 5 \text{ ans}$		$t = 10 \text{ ans}$	
	total	%	total	%	total	%	total	%	total	%
^{106}Rh	160	4	70	3	37	3	18	2		
^{137}Ba	1010	30	980	49	940	68	900	95	790	100
^{144}Pr	2300	66	960	48	410	29	30	3		
Total	3470		2010		1387		948		790	

Méthodes chimiques de séparation des produits de fission

A. Séparation du césium 137

Cinq méthodes principales ont été décrites :

1° – Séparation du césium et du strontium mélangés par précipitation des autres corps en solution

par précipitation des hydroxydes des autres P.F.

soit en ajoutant de l'ammoniaque,

soit par passage sur une colonne de résine anion,

soit par élimination de l'acide nitrique par électrolyse à travers une membrane anion;

par calcination à 300° des résidus secs des solutions de fission. Seuls, les hydroxydes de césium 137 et de strontium 90 restent solubles dans l'eau et on récupère de 90 à 98% du ^{137}Cs et de 60 à 80% par lavage à l'eau.

2° – Syncrystallisation d'alun de césium

L'alun de césium étant plus insoluble que les aluns de potassium et d'ammonium, la cristallisation d'une solution saturée de ces derniers entraînent de façon quantitative la quasi totalité (99%) du césium 137. Cette opération doit être effectuée entre 2 et 5 comme pH.

Par opérations successives, on enrichit progressivement les cristaux d'alun de césium fin. Toujours par cristallisation, on réduit la masse des cristaux et on peut parvenir à éliminer le rubidium 85 et 87 de fission qui réduisait l'activité spécifique du césium 137. Il faut ensuite éliminer les ions SO_4 , Al et NH_4 ou bien K. Cette méthode est d'emploi facile; un peu longue, elle fournit un bon rendement et une très bonne décontamination; elle exige malheureusement un milieu peu acide.

3° – Précipitation par le tétraphényl de bore

Ce réactif doit être employé entre 0,2 et 0,5 N, la solution étant froide. Ce réactif étant fragile, la séparation doit être effectuée en moins d'une heure. Le précipité obtenu est très fin et difficile à filtrer. Le rendement est excellent (99,5%). La fragilité du réactif permet d'obtenir le sel de césium désiré en chauffant avec l'acide correspondant.

4° – Précipitation par un ferrocyanure

On précipite par un ferrocyanure de nickel ou un ferrocyanure alcalin. Le rendement est d'autant meilleur qu'il y a un excès de réactif et que l'acidité de la solution à traiter est plus basse.

Tableau 5: Rendement de la précipitation en ^{137}Cs

Normalité de la solution NO_3H	Léger excès de réactif	Grand excès de réactif
1 N	70%	92%
4 N	50%	75%
8 N	10%	25%

Cette méthode est intéressante car elle permet de traiter des solutions à fortes teneurs en nitrate d'aluminium (et la présence de cet aluminium empêche la

précipitation de ferrocyanure ferrique avec le fer, impureté en solution).

5° – Précipitation par l'acide phosphotungstique

Le césium est précipité en milieu acide jusqu'à 10 N par l'acide phosphotungstique avec un excellent rendement (99%). On précipite en même temps le rubidium et l'ammonium. Ce précipité très fin, peu facile à filtrer mais décantant bien, fournit une assez bonne décontamination alpha (contamination physique du précipité). Le césium est ensuite remis en solution en repassant en milieu alcalin dans lequel l'acide phosphotungstique n'est pas stable.

Diverses méthodes ont été décrites pour ramener ensuite le césium à l'état de sel neutre :

dissolution du précipité par la soude, séparation sodium-césium sur résine cationique (Carter 4).

dissolution du précipité par l'ammoniaque, séparation de l'acide phosphotungstique sur résine anion, élimination de l'ammoniaque par distillation (Warner 5) (fig. 2).

Description de notre méthode

Cette méthode à l'acide phosphotungstique a été très étudiée car c'est la seule qui permet de récupérer directement le césium 137 de solutions fortement acides.

B. Séparation du strontium 90

1° – Des méthodes décrites précédemment pour la récupération du strontium et du césium mélangés, il faut noter toutefois que tant que dans la précipitation des hydroxydes, que dans la calcination à 300° le rendement de la récupération du strontium 90 est moins bon.

2° – Précipitation par acide nitrique

C'est la seule précipitation d'un sel insoluble alcalino-terreux que l'on puisse faire en milieu acide concentré avec un bon rendement.

Nitrate	NO_3H 15 N	17 N	19 N
Strontium	40	6	1,8
Baryum	12	1	0,4
Plomb	200	25	7
Aluminium	1430	880	210

Il faut donc malgré tout traiter des solutions concentrées pour avoir un bon rendement d'une part, et pour éviter la consommation de grandes quantités d'acide nitrique fumant, d'autre part; la principale impureté chimique qui risque de précipiter est l'aluminium. GLUCKAUF et HEALY ont évité cette précipitation de l'aluminium en précipitant à 50 – 60°. La principale impureté radiochimique est le cérium 144. Le baryum et le plomb coprécipitent avec le strontium 90. D'autre part, des impuretés comme le fer et l'uranium favorisent la précipitation du nitrate et améliorent son rendement par l'effet d'ion commun.

C. Séparation du ruthénium 106

La séparation du ruthénium 106, de loin la plus utilisée, est l'utilisation du tétraoxyde de ruthénium que

l'on peut faire distiller en milieu nitrique ou sulfurique en oxydant par le bromate, le bismuthate ou le permanganate. Il est recueilli en milieu chlorhydrique ou nitrique additionné d'eau oxygénée pour réduire le ruthénium à la valence 3.

D. Séparation du cérium 144

Le cérium 144 peut être séparé de tous les autres produits de fission en solution nitrique concentrée 6N-9N par le tributylphosphate en présence de bromate de sodium pour avoir le cérium à la valence 4. On le ré-extrait ensuite par une solution aqueuse d'eau oxygénée. Si le cérium 144 est à l'état de traces, l'extraction par solvant est d'autant plus complète que l'acidité de la solution est plus grande. Dans ce cas, une simple ré-extraction à l'eau suffit.

Les Américains, pour séparer le cérium des autres terres rares, après séparation du césium, du strontium et du ruthénium, le précipitent sous forme de phosphate cérique à pH contrôlé. Ils se débarrassent ensuite du phosphate par précipitation de l'hydroxyde céreux.

E. Séparation des terres rares ^{147}Pm et ^{155}Eu

Après la séparation du cérium 144, la solution résiduelle des produits de fission contenant les autres terres

rares est beaucoup plus facile à manier, car elle n'émet ni des rayons gamma ni des rayons bêta durs ; on peut alors effectuer la séparation Eu-Pm sur résine cation. De nombreux éluants ont été essayés : acide citrique EDTA, acide lactique, acide alpha-isobutyrique.

Nous avons effectué des séparations Eu-Pm excellentes sur Dowex 50 en employant une colonne chauffée à 80° et l'acide lactique comme éluant. L'acide alpha-isobutyrique donnerait aussi d'excellents résultats.

Les schémas de traitement

Américain. – Les Américains ont publié à Genève en 1955 un schéma de traitement très complet comprenant les extractions de presque tous les produits de fission à longue période. Voici succinctement ce schéma :

Les solutions de fission, après concentration, subissent une précipitation fractionnée des hydroxydes à pH 2,5, ce qui laisse dans le filtrat de césium, le strontium et les terres rares et dans le précipité le ruthénium et le technécium.

Le technécium est séparé sous forme de pertechnetate de triphénylarsenium et purifié en précipitant le sulfure. Le ruthénium est purifié par distillation du tetroxyde en présence de permanganate.

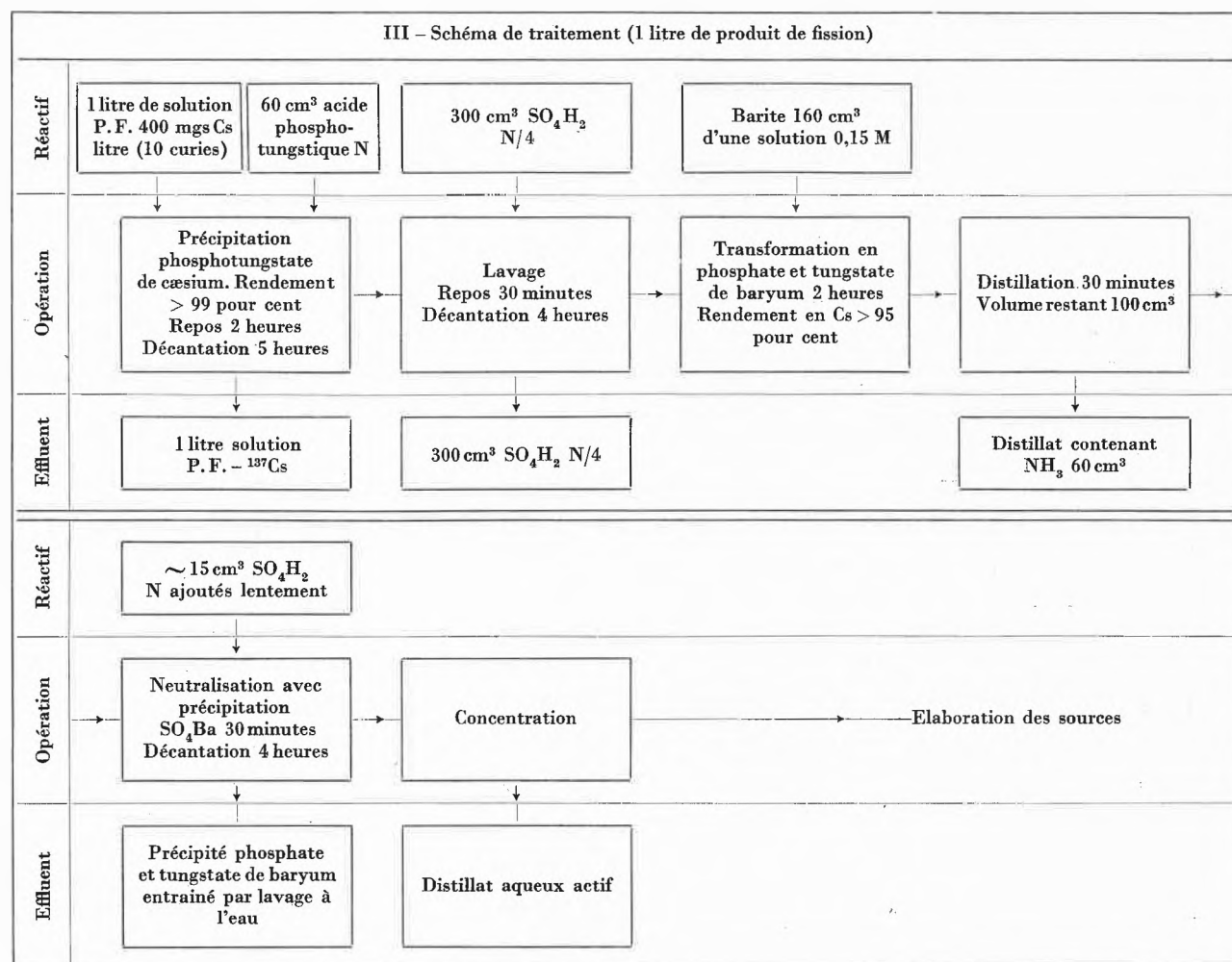


Fig. 2. Description de notre méthode

Les terres rares sont séparées du césium et du strontium par précipitation des hydroxydes, puis le césium du strontium par la carbonate de sodium.

Le césium est alors purifié par cristallisation en alun d'ammonium, séparé du rubidium par cristallisation fractionnée, débarrassé de l'aluminium par précipitation par l'ammoniaque, débarrassé des ions sulfate par échange d'ion, et de l'ammoniaque par distillation.

Le strontium est purifié par précipitation par l'acide nitrique fumant et séparé du baryum inactif par précipitation du chlorure.

Les terres rares peuvent être ensuite séparées, le cérium d'abord, par précipitation ménagée du phosphate cérique.

L'euporium est séparé du prométhéum par réduction électrolytique de l'euporium à la valence 2, suivie d'une précipitation des sulfates en utilisant comme entraîneur le strontium.

Le traitement a surtout été prévu pour le césium. Il est toujours possible d'effectuer la préparation d'une quantité déterminée d'un produit de fission moins demandé.

Le procédé a été récemment modifié sur les points suivants :

- dans le traitement, remplacement de l'échange d'ions par une précipitation de chloroplatinate, l'échangeur d'ions ayant été le siège de trop de dégradations radio-lytiques.
- le cérium est précipité à l'arséniate au lieu de phosphate.
- l'élimination de l'américium qui souillait le prométhéum a été réalisée.

Anglais. - Un schéma de traitement des produits de fission a été publié par les Anglais au cours du Congrès de Chimie Industrielle qui a eu lieu à Paris en 1956. Le schéma n'a pas uniquement pour but de préparer des produits de fission séparés, mais il a aussi été conçu pour résoudre le problème des énormes quantités de résidus radioactifs que fourniront normalement les centrales électriques utilisant l'énergie atomique. Nous reviendrons plus loin sur cet aspect important de la question.

Après avoir concentré au centième la solution initiale, on précipite le strontium 90 par l'acide nitrique fumant, ce qui fournit 95 % de strontium 90 en solution. On précipite une deuxième fois après avoir ajouté du strontium entraîneur pour enlever le strontium 90 restant, puis on concentre en réduisant l'acide nitrique par le formol. A la solution concentrée qui est 2N nitrique environ, on ajoute de l'acide phosphotungstique, ce qui permet de récupérer 99,5 % du césium 137 présent. De la solution résiduelle, on peut récupérer du cérium 144 ou du ruthénium 106 si on le désire.

Russes. - Les Russes ont publié à Genève en 1958 une méthode de traitement : « partant apparemment d'une solution neutre contenant du fer et un peu de calcium,

on sépare tout d'abord les produits de fission en deux groupes par une précipitation d'oxalate de calcium à pH 5. L'yttrium, le strontium et les terres rares précipitent. Le zirconium, le niobium et le ruthénium restent en solution.

» Le précipité d'oxalate de calcium est redissout dans l'acide nitrique ; on détruit l'acide nitrique par chauffage et le cérium est extrait par le nitrométhane après avoir été amené à la valence 4 par l'ozone.

» Le strontium est ensuite coprecipité avec le nitrate de calcium par l'acide nitrique concentré, puis séparé du calcium par l'acide nitrique fumant.

» Les terres rares et l'yttrium sont extraits par solvant dans une série de mélangeurs décanteurs en utilisant comme solvant organique le phosphate de tributyle. » Les auteurs ont obtenu par cette méthode : yttrium 91, prométhéum 147 et euporium 155.

De la solution primitive, les auteurs ont extrait : le zirconium-niobium par coprecipitation par l'hydroxyde de fer (redissolution dans l'acide nitrique et extraction en contrecourant par le phosphate de tributyle).

On réextrait :

- par l'eau oxygénée : le niobium.
- par l'acide nitrique dilué : l'yttrium restant.
- par l'acide oxalique : le zirconium.

Enfin, le ruthénium est coprecipité par un sulfure de nickel, puis extrait sous forme de nitrosocomposé, par le phosphate de tributyle.

Les installations existantes

Les Américains ont consacré 2 millions de dollars à la construction d'une unité pilote pouvant produire 300 000 curies de césium 137 et 7 autres produits de fission principaux. Cette unité a été mise en service au début de l'année 1959.

Les Anglais possèdent une unité pouvant fournir quelques milliers de curies de césium 137 et des quantités moindres de strontium 90. Il envisagent la possibilité d'une installation produisant 1 million de curies de césium 137 par an.

Les Russes ont certainement des installations de production de produits de fission.

Nous disposerons pour 1960 d'une installation pouvant fournir quelques milliers de curies par an de césium 137. Nous envisagerons ensuite la possibilité d'une installation fournissant quelques centaines de milliers de curies par an.

Aspect à long terme du traitement des produits de fission

Le but principal des recherches nucléaires est la production d'énergie et, à l'heure actuelle, plusieurs pays, dont l'Angleterre et la France, ont un programme d'équipement nucléaire pour produire de l'électricité industrielle.

Les produits de fission apparaissent alors comme des sous-produits gênants de la production d'énergie. En effet, si dans quelques dizaines d'années la France a

remplacé $60 \cdot 10^6$ tonnes de charbon par de l'uranium, cela équivaut à une consommation annuelle de 20 tonnes d'uranium 235. Cette consommation d'uranium fournira par an :

$60 \cdot 10^6$ curies de césium 137 soit 180 kW utilisables
 $60 \cdot 10^6$ curies de strontium 90
 $300 \cdot 10^6$ curies de cérium 144
 $60 \cdot 10^6$ curies de ruthénium 106
 $60 \cdot 10^6$ curies de zirconium 95, etc...

contenues dans des dizaines de milliers de m^3 de solutions très radioactives. Ces quantités sont à multiplier par un facteur 50 pour obtenir un chiffre de consommation mondiale.

De telles quantités de radioéléments sont-elles utilisables?

Une estimation américaine des besoins en sources de radiations donnait pour 1965 :

	an 1965	an 2000
Radiographie, téléthérapie	50 kW	250 kW
Sterilisations médicales . . .	100	500
Chimie sous radiation . . .	1000	5000
Sterilisation de nourriture en général polymérisation	30 000	100 000

Cette estimation hasardeuse représente les besoins totaux en radiations qui peuvent être également fournies par les appareils de rayons X, les générateurs électrostatiques, le cobalt 60, les cuves de refroidissements des barreaux d'uranium, etc... Or, pour le seul césium 137 la production mondiale fournira 12000 kW de rayonnement utilisable en l'an 2000. La quantité de produits de fission créée par les besoins énergétiques sera donc très probablement largement excédentaire sur les besoins en radiations.

Il y a très probablement un autre intérêt à traiter les solutions de fission pour en extraire certains produits. En effet, suivant le schéma de traitement que propose GLUCKAUF, la récupération poussée du césium 137 et du strontium 90 peut faciliter considérablement la solution du problème de ces grandes quantités de déchets radioactifs.

GLUCKAUF propose de traiter les solutions pour récupérer le césium 137 et le strontium 90 puis de laisser la solution restante décroître pendant 20 ans. On aura au bout de 20 ans :

le $1/10^6$ du ^{144}Ce initial
 le $1/10^6$ du ^{106}Ru initial
 le $1/16$ du ^{147}Pm initial
 le $1/10^{40}$ du ^{95}Zr initial
 le $1/10^3$ du ^{155}Eu initial

Le césium et le strontium, seraient, soit utilisés comme sources de rayonnement, soit comme sources de chaleur, et au bout de vingt ans, les solutions stockées seraient traitées pour récupérer les produits de fission stables particulièrement précieux comme le ruthénium, le rhodium, le palladium.

En effet, par tonne d'uranium 235 consommé, il y a dans les solutions de fission :

Ru 38 kg valant 380 000 francs le kg
 Rh 16 kg valant 680 000 francs le kg
 Pd 7 kg valant 128 000 francs le kg
 Tc 31 kg

Conclusion

Les produits de fission ont un double aspect : intéressants comme sources de rayonnement, ce sont eux cependant qui augmentent le prix de revient de l'énergie nucléaire à cause de la protection et de la télécommande des réacteurs et des usines de traitement du stockage des solutions résiduelles.

Les utilisations éventuelles, en valorisant les produits de fission, peuvent contribuer à baisser ce prix de revient.

Ainsi, les Américains ont publié qu'ils estimaient rentable de consacrer deux à trois millions de dollars pour créer une installation destinée à la séparation des produits de fission.

De nombreuses incertitudes quantitatives telles que les concentrations possibles des solutions résiduelles, liées à l'évolution rapide de la technique des réacteurs (utilisation d'alliages d'uranium, par exemple), empêchent malheureusement à l'heure actuelle de se faire une idée très exacte sur ce problème important.