

# *Faut - il repenser au thorium ?*



**Dominique Greneche (AREVA) - Adrien Bidaud, Sylvain David (CNRS)**

Convention SFEN – 12 et 13 Mars 2008

**Le Monde 2****Internet**La grande  
évasion**Portfolio**Les villes folles  
de Tom Leighton**Supplément** « The New York Times

## A LA UNE ... du 17 novembre 2007

### L'Inde mise sur le nucléaire au thorium pour s'affranchir de l'uranium

**E**n lançant une filière exploitant le thorium comme combustible, l'Inde a décidé de s'engager dans une voie nouvelle du nucléaire civil. Le pays va ainsi engager la construction, dans les prochaines semaines, d'un prototype de réacteur fonctionnant avec cet élément. L'emploi du thorium dans le cycle de combustion présente de nombreux avantages. Entre autres, il produit moins de déchets radioactifs. Il permettra en outre à l'Inde, qui n'est pas autorisée à importer de l'uranium et en possède peu, de s'en affranchir et de répondre à la croissance de ses besoins énergétiques tout en augmentant la part du nucléaire dans sa production d'électricité.

Alors que les ressources mondiales identifiées d'uranium pourraient s'épuiser dans une soixantaine d'années, sauf si l'on recourt à la technique de la surgénération, le thorium est un élément plus abondant. L'Inde possède le quart des réserves mondiales et prévoit de l'utiliser dans sa production d'électricité à partir de 2020.

C'est la première fois qu'un pays s'engage dans cette voie. Elle a cependant été explorée, dès les années 1960, par les principaux acteurs du nucléaire. En France, cette filière reste l'objet d'études, essentiellement au CNRS. Des travaux qui font office de veille technologique pour les industriels comme EDF. ■

*Lire page 7*

- ▶ **Généralités**
  - ◆ Pourquoi, comment, combien ...
- ▶ **Le thorium en réacteur**
  - ◆ Avantages/inconvnients, quelles économies d'uranium
- ▶ **Les challenges industriels**
  - ◆ Mines, fabrication, retraitement,
- ▶ **Questions génériques**
  - ◆ déchets, non prolifération
- ▶ **L'état de l'art**
  - ◆ Expérience industrielle, développements en cours
- ▶ **Conclusion**

► Th est un isotope **FERTILE** qui génère un isotope fissile : **U 233**



comparable à :



► **U 233 est le meilleur des isotopes fissiles pour le neutrons thermiques** (propriété caractérisée par le nombre moyen de neutrons émis pour un neutron absorbé dans le noyau fissile, appelé Eta)

	U 233	U 235	Pu 239
Eta in <b>thermal</b> energy range	<b>2.29</b>	2.07	2.11
Eta in <b>fast</b> energy range	2.27	1.88	<b>2.33</b>

➔ « **SURGENERATION thermique** » possible avec des cycles *Th-U233*

**MAIS ...**

**Th n'est pas un substitut à l'Unat.**

**car**

**Avec Unat on peut entretenir une réaction en chaîne.**

**Avec le Th NON !**

- **Un matériau fissile doit être mélangé avec le Th dans réacteur :**
  - U 235 : cycle **Th/HEU** cycle (exclu aujourd'hui → prolifération)
  - Plutonium : cycle **Th/Pu** cycle (= MOX)
  - U233 : **Th/U233** (des stocks d'U233 doivent être disponibles)
  - U enrichi à 20 % : cycle **Th/MEU** cycle (limite 20 % → prolifération)

## ► Concentration moyenne naturelle

	Uranium (U)	Thorium (Th)	Th / U
Croûte terrestre (ppm)	2.7	9.6	<b>3.5</b>
Eau de mer ( ppm)	0.0033	< 0,00001	< 0,01

## ► Ressources estimées (économiquement récupérables)

- De **1,2 Mt** ( USGS, 2005) à **1,7 Mt** (Red book, 1967). Mais très mal connues (car peu ou pas d'exploration)
- Principaux pays : Australie, Inde, Norvège, USA, Canada
- Source principale monazite (Th + phosphates de terres rares )

## CONCLUSION :

→ rien ne permet d'affirmer que les réserves de Th sont 3 à 4 fois plus importantes que celles de l' U

MAIS

→ elles sont sans doute du même ordre de grandeur

► **Généralités**

- ◆ Pourquoi, comment, combien ...

► **Le thorium en réacteur**

- ◆ Avantages/inconvénients, quelles économies d'uranium

► **Les challenges industriels**

- ◆ Mines, fabrication, retraitement,

► **Questions génériques**

- ◆ déchets, non prolifération

► **L'état de l'art**

- ◆ Expérience industrielle, développements en cours

► **Conclusion**

## ► Inconvénient :

- ◆ Concentration élevée de Pa-233 (27 j)
  - Accroissement de réactivité après l'arrêt (formation U233)
  - Limitation du flux neutronique (densité de puissance) pour éviter des captures stériles dans le Pa233 (perte de U233)
- ◆ En RNR performances de régénération moindres que cycle U/Pu

## ► Avantages : (comparés à U)

- ◆ Point de fusion plus élevé de l'oxyde ( $\text{ThO}_2$  : 3300°C,  $\text{UO}_2$  : 2800°C)
- ◆ Meilleur comportement sous irradiation (→ burnup + élevé)
- ◆ Caractéristiques de sûreté plus favorables :
  - coefficient de température
  - réactivité chimique avec l'eau et la vapeur
  - COEFFICIENT DE VIDE beaucoup plus favorable (< 0 ?) dans les RNR/Na
- ◆ Le thorium est un bon candidat pour « brûler » du plutonium

# Les économies d'uranium en réacteur thermique

- ▶ Dans les réacteurs thermiques actuels, l'utilisation du thorium thorium ne permettrait pas des économies substantielles d'uranium, car le facteur de conversion (FC) est faible (< 0,7), même avec du thorium / U233
- ▶ Par contre, pour des concepts “avancés”, on pourrait atteindre des conditions proches de l’isogénération (“**Near breeding**”) voire même la surgénération avec des cycles Th/U233:
  - ◆ En **REL** (Shippingport) mais au prix d’astuces technologiques **difficilement extrapolable à une échelle industrielle**.
  - ◆ En réacteur à eau lourde (**CANDU**) : **attrayant** (études en cours)
  - ◆ En **HTR** : intéressant en **faible flux neutronique** ( $\text{Pa233} \rightarrow \text{U233}$ ), ce qui est pénalisant économiquement
  - ◆ En **RSFs très attractif**, mais la technologie des RSF reste à développer (études en cours au CEA, EDF, CEA)

► **Généralités**

- ◆ Pourquoi, comment, combien ...

► **Le thorium en réacteur**

- ◆ Avantages/inconvénients, quelles économies d'uranium

► **Les challenges industriels**

- ◆ Mines, fabrication, retraitement,

► **Questions génériques**

- ◆ déchets, non prolifération

► **L'état de l'art**

- ◆ Expérience industrielle, développements en cours

► **Conclusion**

## ► Mines

- ◆ En cas de déploiement du cycle au thorium, un gros effort de prospection serait nécessaire
- ◆ Irradiation externe nettement accrue par rapport à l'Uranium avant l'étape de purification (à cause du Th-208)
- ◆ Mais, l'extraction de la monazite à ciel ouvert est plus facile que la plupart des minerais d'uranium
- ◆ La gestion des résidus miniers apparaît également plus simple que pour l'uranium à cause de la période nettement plus courte du « thoron » (= Rn 220 : 55 sec, descendant du Ra 224 = 3,7 jours) par rapport au Radon (=Rn 222 : 3,8 jours, descendant du Ra 226 = 1600 ans)
- ◆ Par contre la préparation du Th, similaire à celle des terres rares, implique sa séparation de nombreux autres composants (souvent valorisables), et elle n'est donc pas simple.

## ► Fabrication du combustible

- ◆ Il existe une expérience industrielle mais à petite échelle : PWRs (Elk River, Indian Point 1, Shippingport), HTRs (USA, Allemagne), PHWRs and LMFBRs (Inde)
- ◆ Plusieurs procédés ont été testés ou mis en oeuvre: poudre (USA, India), sol-gel (USA, Allemagne pour les HTRs), vibro-compaction (USA : ORNL et B&W), imprégnation, etc...
- ◆ Conception et exploitation des usines :
  - Si du plutonium est utilisé comme matière fissile → Boîte à gands
  - Si U233 est utilisé → cellules chaudes sans doute (à cause des radiations émises par les descendants de U232 inévitablement présents avec U233 :  $T_{1/2} = 2,6$  Mev)

- ▶ Le déploiement d'un cycle au thorium ne peut être **attractif** que si **U233 est recyclé** ce qui implique le **retraitement**
- ▶ Retraitement des combustibles à base de thorium :
  - ◆ Un procédé existe (testé à ORNL pendant plusieurs années : **THOREX**)
  - ◆ Sa mise en oeuvre est plus **compliquée que** celle de **PUREX** à cause notamment des problèmes de corrosion dûs à l'emploi de **fluorures** pour parvenir à une dissolution efficace
  - ◆ THOREX génère 50-70 % plus de verres PUREX (étude Indienne, à voir)
  - ◆ R & D importante pour développer un procédé industriel compétitif
- ▶ Refabrication de combustible avec U233 :
  - ◆ C'est **la difficulté majeure** du cycle au thorium. C'est certainement faisable mais à quel prix ?

► **Généralités**

- ◆ Pourquoi, comment, combien ...

► **Le thorium en réacteur**

- ◆ Avantages/inconvénients, quelles économies d'uranium

► **Les challenges industriels**

- ◆ Mines, fabrication, retraitement,

► **Questions génériques**

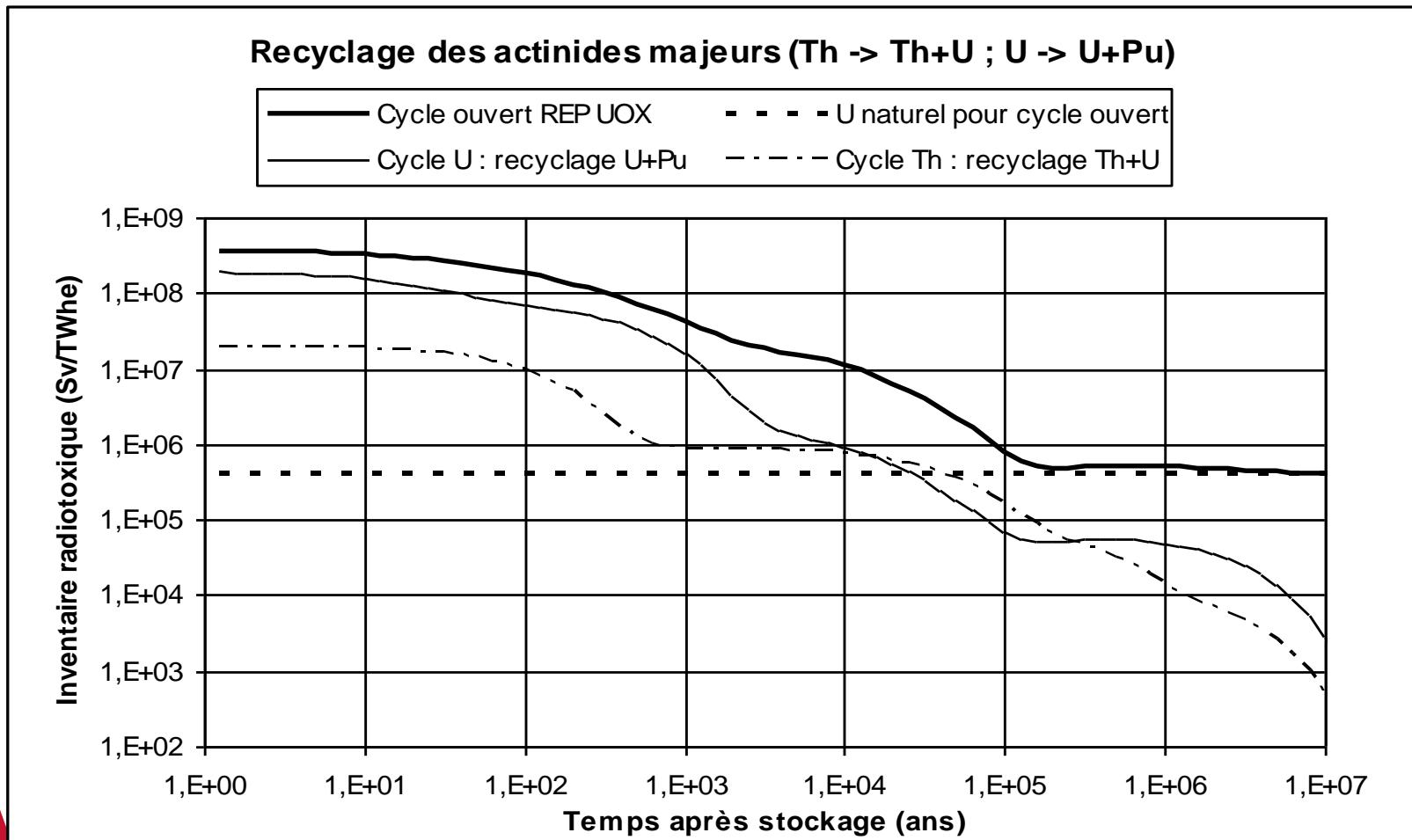
- ◆ déchets, non prolifération

► **L'état de l'art**

- ◆ Expérience industrielle, développements en cours

► **Conclusion**

► Inventaire radiotoxique des noyaux lourds dans les déchets (avec actinides mineurs) : par rapport au cycle U/Pu, on observe un gain d'un facteur **facteur 10** jusqu'à **presque 10 000 years** avec le cycle Th/U233 (ensuite l'écart s'inverse à cause du **Th 229**)



## *Les aspects « non-prolifération »*

- ▶ Une bombe atomique (« gun type ») peut être fabriquée avec U233 (test US en 1957) et la masse critique U233 est même plus faible que celle de U235 (16 kg au lieu de 48 kg)
- ▶ Le principal obstacle vient des fortes radiations émises par certains descendants de U232 (toujours présent avec U233)
- ▶ Mais différents moyens peuvent être mis en œuvre pour remédier à cette difficulté: fabrication « rapide » après séparation de U233, blindages, réduction de U232 (faible TC, couverture thorium en RNR, etc...)
- ▶ A l'inverse, des mesures dissuasives peuvent être mises en œuvre comme par exemple le mélange de Th avec U238 (mais on produit du Pu !) ou la dilution de U233 avec U238 au retraitement. Néanmoins ces mesures diminuent beaucoup l'intérêt même du cycle au thorium !

► **Généralités**

- ◆ Pourquoi, comment, combien ...

► **Le thorium en réacteur**

- ◆ Avantages/inconvénients, quelles économies d'uranium

► **Les challenges industriels**

- ◆ Mines, fabrication, retraitement,

► **Questions génériques**

- ◆ déchets, non prolifération

► **L'état de l'art**

- ◆ Expérience industrielle, développements en cours

► **Conclusion**

## ► Réacteurs:

- ◆ Les pioniers (USA): Shippingport, PWR de 60 MWe (1957) → **surgénération Th/U233 démontrée**, Elk river, BWR de 22 MWe (1963), MSRE : Molten Salt Reactor Experiment (Oak Ridge)
- ◆ HTRs: USA (Peach Bottom, 40 MWe et FSV, 300 Mwe) et Allemagne (AVR, 15 Mwe et THTR de 300 Mwe, à boulets)

## ► Cycle:

- ◆ Mines: près de 40 000 tonnes de Th extraites (monazites)
- ◆ Séparation / purification: plus délicate que U (terres rares)
- ◆ Fabrication: nombreux procédés semi industriels testés
- ◆ Retraitements: THOREX (Oak Ridge), délicat (fluor → corrosion)
- ◆ **Refabrication** combustible U233: **INCONVENIENT majeur** du cycle au Th car forte radiations → opérations à distance derrière des blindages (très faible expérience)

# Developpements actuels sur le Thorium

- ▶ **INDE**, affiche depuis très longtemps sa volonté de développer ce cycle (« 3 steps program ») . 4 raisons à cela:
  - ➔ Programme nucléaire très ambitieux nuclear program
  - ➔ Très peu de réserves domestiques d' uranium
  - ➔ Pas d'accès libre au marché mondial de l'uranium (politique)
  - ➔ Enormes réserves de thorium sur leur territoire (> 500 000 t ?)
- ▶ D'autres pays manifestent aujourd'hui leur intérêt:
  - ◊ **Canada**: programme actif chez AECL
  - ◊ **Turquie**: Beaucoup de thorium (TCP de l'AIEA)
  - ◊ **Norvège**: compagnie « Thor Energy » – Le nucléaire est perçu comme plus acceptable par le public si il est basé sur le thorium !
  - ◊ **Chine**: peu d' U mais beaucoup de Th – Ont encore un programme de R&D sur le sujet (recent séminaire international à Beïing)

► **Généralités**

- ◆ Pourquoi, comment, combien ...

► **Le thorium en réacteur**

- ◆ Avantages/inconvénients, quelles économies d'uranium

► **Les challenges industriels**

- ◆ Mines, fabrication, retraitement,

► **Questions génériques**

- ◆ déchets, non prolifération

► **L'état de l'art**

- ◆ Expérience industrielle, développements en cours

► **Conclusion**

- ▶ **Les ressources potentielles en thorium sont sans doute au moins aussi abondantes que celles de l'uranium**
- ▶ **Les opérations amont du cycle au thorium ne soulèvent pas de difficultés majeures et il existe une certaine expérience industrielle sur ce cycle**
- ▶ **Dans l'ensemble les propriétés et le comportement des combustibles au thorium (métal ou oxyde) en réacteur sont plus favorables que celles de l'uranium (sauf pour la question du Pa233) et le thorium, comme l'uranium, peut être utilisé dans tous les types de réacteurs**
- ▶ **L'expérience sur l'aval du cycle (retraitement et surtout refabrication, qui sont pratiquement nécessaires pour un cycle au thorium) est presque inexistante. Elle suffit cependant à montrer que ces opérations seraient industriellement possibles mais sous réserve d'une importante R&D préalable et/ou de développements technologiques significatifs.**

- ▶ Le cycle au thorium offre des perspectives intéressantes sur le plan des économies d'uranium (si l'U-233 est recyclé). A cet égard, son atout majeur réside dans la possibilité d'atteindre la surgénération en réacteurs thermiques (cycle T/U233). Un autre avantage est de pouvoir réduire notablement la production d'actnides mineurs.
- ▶ Toutefois, beaucoup de R&D et de gros investissements industriels (y compris pour la prospection et l'extraction du thorium) seraient nécessaires pour un déploiement à grande échelle de ce cycle. Il est peu probable que cela se puisse se justifier dans un avenir proche, au moins en France.
- ▶ A plus long terme, de nouvelles contraintes pourraient cependant apparaître (ex: raréfaction U + difficultés déploiement RNR).

**Il convient donc de maintenir un minimum de compétences et de recherche sur le cycle au thorium**

# *Slides complémentaires*

# Nuclear reactors loaded with thorium

Nuclear reactors using (or having used) thorium fuels (partially or completely)						
Country	Name	Type	Power (MW)	Startup date	Fuel	Comments
USA	Indian point 1	PWR	265 <sub>e</sub>	1962	ThO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub>	Power includes 104 Mw e from oil-fired superheater
	Elk River	BWR	22 <sub>e</sub>	1964	ThO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub>	Power includes 5 Mw e from coal-fired superheater. Th loaded in the first core only
	Shippingport	PWR	60 <sub>e</sub>	1957	ThO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub>	Used both U235 and Pu as the initial fissile material. Successfully demonstrated <b>thermal breeding</b> using the "seed/blanket" concept (TH/U233)
	Peach Bottom	HTR	40 <sub>e</sub>	1967	ThC <sub>2</sub> - UC <sub>2</sub>	Coated particles fuel in prismatic graphite blocs - <b>TH/HEU</b>
	Fort St. Vrain	HTR	330 <sub>e</sub>	1976	ThC <sub>2</sub> - UC <sub>2</sub>	Coated particles fuel in prismatic graphite blocs - <b>TH/HEU</b>
	MSRE	MSR	10 <sub>th</sub>	1965	ThF <sub>4</sub> - UF <sub>4</sub>	Did operate with U233 fuel since october 1968 - No electricity production
UK	Dragon	HTR	20 <sub>th</sub>	1964	ThC <sub>2</sub> - UC <sub>2</sub>	Coated particles fuel - No electricity production - <b>Many types of fuel irradiated</b>
Germ.	AVR	HTR	15 <sub>e</sub>	1967	ThC <sub>2</sub> - UC <sub>2</sub>	Coated particles fuel in <b>pebbles</b> - Maximum burnup achieved : 150 GWd/t - <b>TH/HEU</b>
	THTR	HTR	300 <sub>e</sub>	1985	ThC <sub>2</sub> - UC <sub>2</sub>	Coated particles fuel in pebbles - Maximum burnup achieved : 150 GWd/t - <b>Th/HEU</b>
	Lingen	BWR	60 <sub>e</sub>	1968	Th / Pu	Th/Pu was only loaded in some fuel test elements
India	Kakrapar (KAPS) 1 - 2	PHWR	200 <sub>e</sub>	1993/95	UO <sub>2</sub> -ThO <sub>2</sub>	Fuel : 19-elements bundles. - <b>500 kg of Th loaded</b>
	Kaiga 1 - 2	PHWR	200 <sub>e</sub>	2000/03	UO <sub>2</sub> -ThO <sub>3</sub>	Fuel : 19-elements bundles. Th is used only for power flattening
	Rajasthan (RAPS) 3 - 4	PHWR	200 <sub>e</sub>	2000	UO <sub>2</sub> -ThO <sub>4</sub>	Fuel : 19-elements bundles. Th is used only for power flattening
	KAMINI	Neut. S.	30 Kwe	-	<b>U233</b>	Experimental reactor used for neutron radiography
Th. fuels have been also tested in several experimental reactors : <b>CIRUS (India), KUCA (Japan), MARIUS (France), etc.</b>						

# Fast Neutron Reactor loaded with Thorium : uranium composition in blankets

- Reactor power : 1500 MWe (3600 MWth)
- Height of fuel (active core) : 160 cm – thickness of axial blankets : 40 cm
- Results are given for an irradiation of 1700 EFPD

		Proportion (in % atoms) of uranium isotopes					Total mass of uranium (kg)
Type of blanket		U232	U233	U234	U235	U236	
Axial	Upper	0,020	99,04	0,91	0,013	$1,4 \cdot 10^{-4}$	128
	Lower	0,027	97,94	1,96	0,066	$1,7 \cdot 10^{-3}$	431
Radial	1st row <sup>(1)</sup>	0,037	98,06	1,84	0,054	$1,23 \cdot 10^{-3}$	476
	2nd row	0,0057	99,10	0,88	0,014	$1,61 \cdot 10^{-4}$	255
	3rd row <sup>(2)</sup>	0,0010	99,60	0,39	0,003	$1,74 \cdot 10^{-5}$	109
						Total mass	1399

(1) Nearest to the active core

(2) External radial blanket

# Can a nuclear weapon be made with U 233 ?

## ► Nuclear properties of U233 for « weaponisation »

	Neutron emission (n/s.kg)	Heat génération W/kg	Radiation emission	Bare sphere Critical Mass	Comments
U233	1,23	0,281	High (see comments)	16	Radiation results from daughter products of U232 (Ti 208, Bi 212)
U235	0,364	0,00006	Very low	48	Can be used in a « Gun-Type » Nuclear Weapon
« Civil » Pu (50 GWd/t)	470 000	20	Low to average	13	Impossible to use in a gun type device - Very difficult in imploding device
Weapon Grade Pu	60 000	2	Very low	11	Used in imploding device only



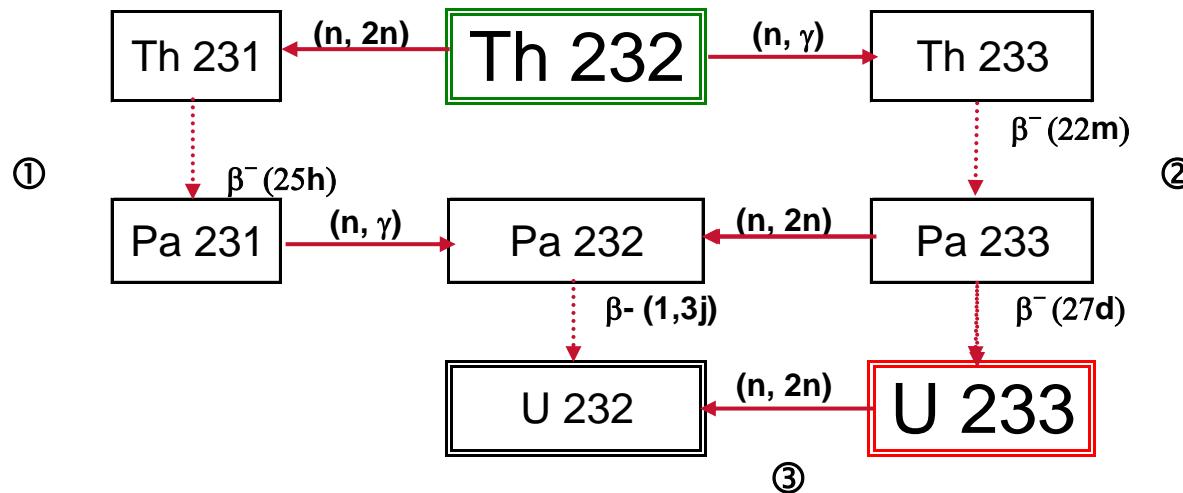
A « Gun type » nuclear weapon is feasible with U233

► Thus ...

**The answer is YES**

(US conducted quite number of tests using U233 ex : Teapot MET in 1957)

## ► U232 build up in a reactor using Th cycle



## ► Radiation emission of U232 decay chain



Very energetic  $\gamma$  emission of Bi212 and especially *Th 208* 2,6 Mev

► Example of radiation level (at 1 meter) for a 10 kg sphere of U233 containing 0.5 % to 1 % U232 :

Time after Separation of U233 + U232	Rem/h (100 Rem = 1 Sv)	Note
1 month	11	• ICRP limit for workers: 5 rem/Y
1 year	110	• Clinical effect for a dose > 100 rem
2 years	200	• Letale dose: 800 rem

**Note :** Radiation can be a safety problem for a fully assembled weapon with U233 but it can be largely reduced by thick tampers in a crude device

► Means to manage the problem

- ◆ **Weapon fabrication soon after U233 separation (i.e. < 2 to 3 weeks)**
- ◆ **Remote weapon fabrication : feasible but require rather sophisticated technology**
- ◆ **Reduce U232 buildup in the reactor : low burnup or U233 generation in Fast Neutron Reactor thorium blanket : can reduce U232 content by a factor ten (< 0.05 %) or even much more, but increases the volume of spent fuel to reprocess**
- ◆ **Isolate Pa233 ! (MSR ?)**
- ◆ **U232 Laser isotopic separation**

# Comparison of Nuclear properties of the main fissiles isotopes

		Thermal range (at 0,025 ev)			Fast range (SFR neutron spectrum)		
		U233	U235	Pu239	U233	U235	Pu239
$\sigma$ (barn)	Fission ( $\sigma_f$ )	525	577	742	2,79	1,81	1,76
	Capture ( $\sigma_c$ )	46	101	271	0,33	0,52	0,46
Average number of neutrons per fission $\nu$		2,498	2,442	2,880	2,53	2,43	2,94
$\eta = \frac{\nu \cdot \sigma_f}{\sigma_f + \sigma_c}$ $\eta - 1$		1,30	1,08	1,11	1,27	0,88	1,33
Delayed neutron fraction ( $\beta_{\text{eff}}$ ) $\times 10^{-5}$		267	650	210	About the same as in thermal range		

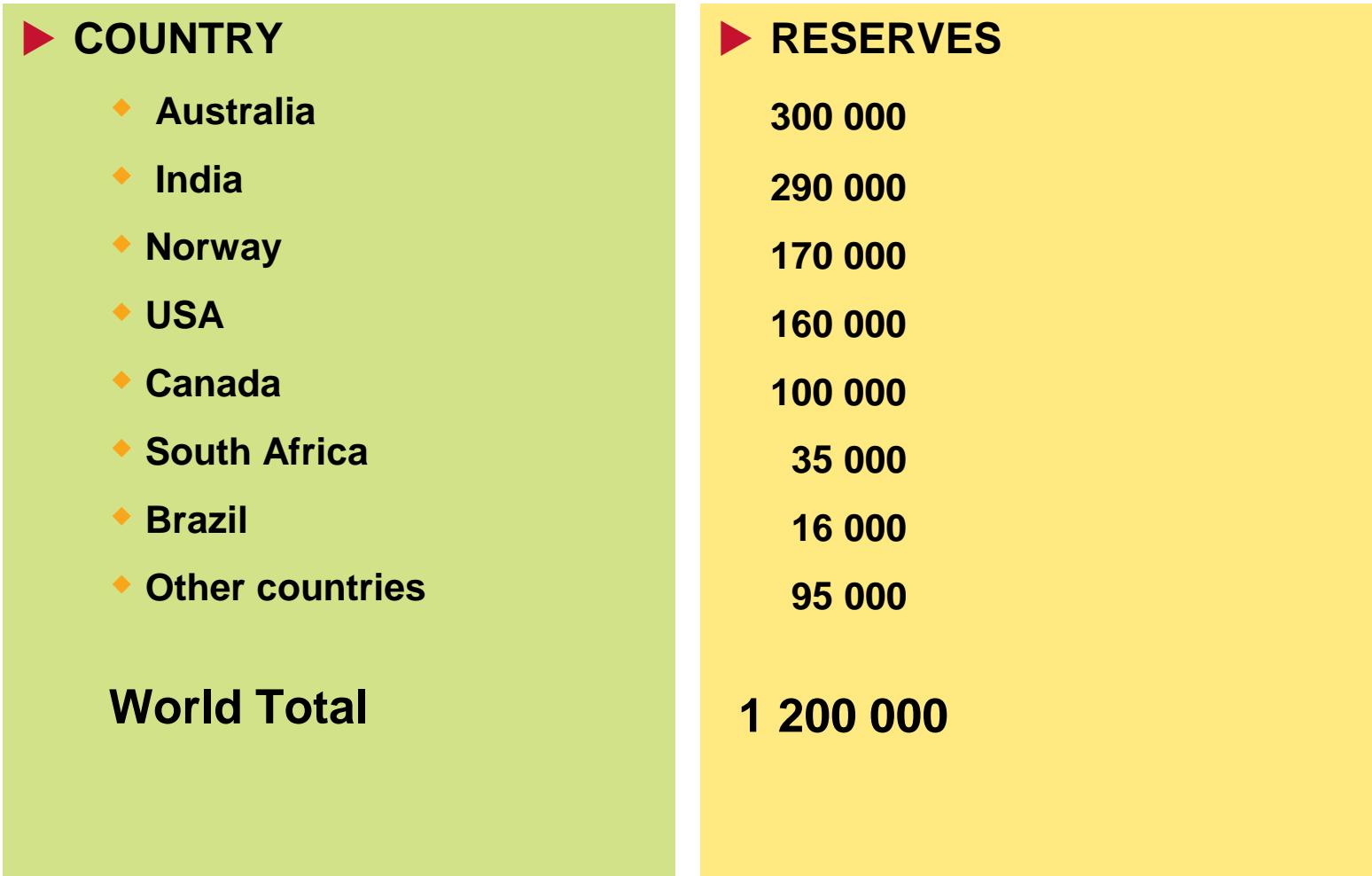
# Comparison of nuclear properties of Th232 and U238

			Th232	U238	
Cross sections (barn)	Fission ( $\sigma_f$ )	Thermal range (0,025 ev)	0	0	
		Fast range	0,01	0,05	
	Capture ( $\sigma_c$ )	Thermal range (0,025 ev)	7,40	2,73	
		Fast range	0,35	0,3	
Resonance capture integral in infinite dilution (barn)			85	275	
Fission threshold (MeV)			~ 1,3	~ 0,8	
Delayed neutron fraction ( $\beta_{eff}$ )			2030	1480	

# Comparison of physical properties of Uranium (U) and Thorium (Th)

	URANIUM		THORIUM	
	U	UO <sub>2</sub>	Th	ThO <sub>2</sub>
Melting point (°C)	1130	2760	1750	3300
Phase changing (°C)	660	-	1400	-
Theoretical density	18,9	10,96	11,7	10,00
Thermal conductivity at 600°C W/cm/°C	0,42	0,0452	0,45	0,044

# World Thorium Reserves (economically extractable)



Source : US Geological Survey, Mineral Commodity Summaries, January 2005